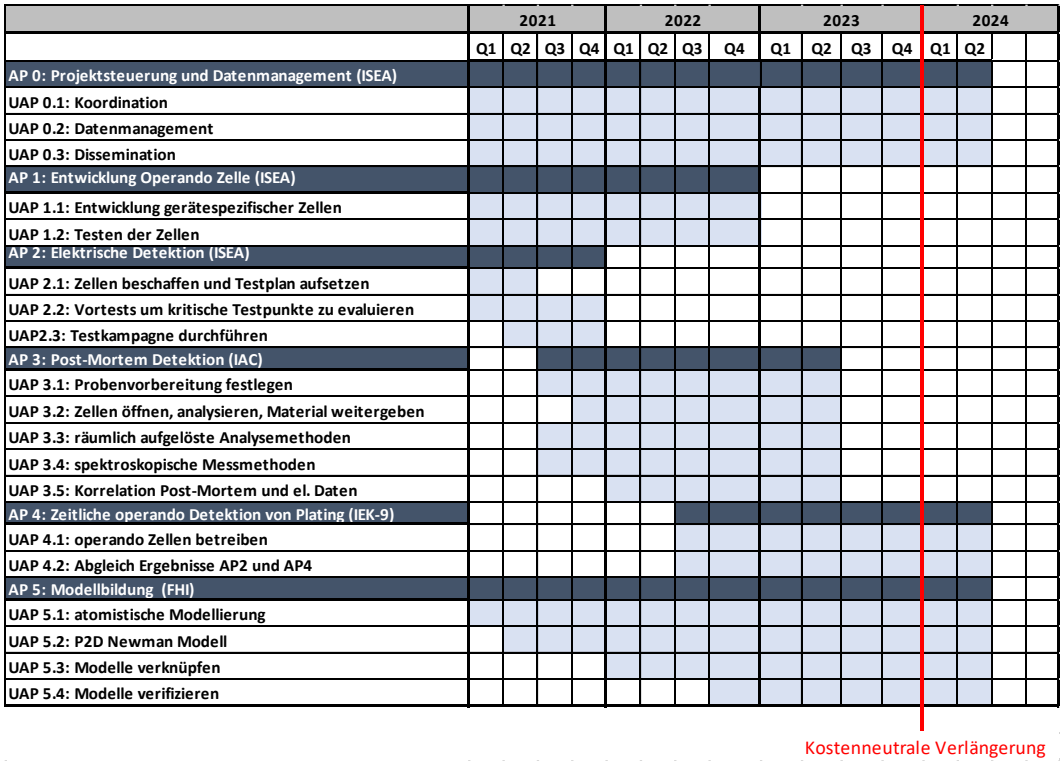
Abschlussbericht zum Förderprojekt
im BMBF Rahmenprogramm „Vom Material zur Innovation“
und im BMBF-Dachkonzept Batterieforschung

Vorhabenbezeichnung:	
InOPlaBat - In situ und Operando Plating Detektion in Batterien	
Zuwendungsempfänger:	**Förderkennzeichen**
RWTH Aachen	03XP0532A
Projektleiter & -mitarbeiter	**Berichtszeitraum**
Projektkoordinator: Prof. Dr. D. U. Sauer (ISEA) Dr.-Ing. Christiane Rahe (ISEA)	01.01.2021 - 30.06.2024

0. Übersicht

Im übergeordneten Projektziel geht es um die Entwicklung und Optimierung von *in situ/operando*-Zellen für elektrochemische Untersuchungen mit dem Fokus auf die zeit- und ortsaufgelöste Messung der Lithiumabscheidung (sog. Lithium-Plating). Lithium Plating wurde sowohl an Laborzellen (z.B. modifizierte Knopfzellen) als auch an kommerziellen Batteriezellen während des Lade-/Entladeprozesses von Lithium-Ionen-Batterien. Im Folgenden werden die Ergebnisse der Arbeitspakete (AP) des Projektes vorgestellt.

Im Berichtszeitraum vom 01.01. bis 30.06. (kostenneutrale Projektverlängerung) wurden Arbeiten aus dem vorherigen Berichtszeitraum fortgeführt und beendet.



1. Aufzählung der wichtigsten wissenschaftlich-technischen Ergebnisse und anderer wesentlicher Ereignisse

	2021				2022				2023				2024			
	Q1	Q2	Q3	Q4	Q1	Q2	Q3	Q4	Q1	Q2	Q3	Q4	Q1	Q2		
AP 1: Entwicklung Operando Zelle (ISEA)																
UAP 1.1: Entwicklung gerätespezifischer Zellen																
UAP 1.2: Testen der Zellen																

AP1: ISEA: Entwicklung Operando Zelle fürs CT

Ein wesentlicher Bestandteil des Projektes war die Entwicklung eines neuen Messaufbaus inkl. Messkonzept für die Analyse mittels Mikro-Computertomographie (Mikro-CT) und dessen Validierung. Im **Projektjahr 2021** wurde diesbezüglich nach einer umfangreichen Literaturrecherche mit dem Nachbau von zwei bereits bekannten Zelldesigns begonnen. Die beiden übernommenen Messaufbauten: „Modifizierte (CR2032) Knopfzelle“ und „Swagelok-Typ-Zelle“ unterscheiden sich grundlegend im Aufbau, wie im Folgenden noch erläutert wird, reduzieren jedoch in beiden Fällen den Metallanteil (Gehäuse, Stromableiter, etc.) im CT-Strahlengang und sorgen damit für eine bessere Durchstrahlbarkeit und somit für eine präzisere Bildgebung.

Zur Herstellung der modifizierten Knopfzelle musste sowohl in das metallische Gehäuse der CR2032-Knopfzelle als auch in den Abstandshalter (eng. Spacer) ein Bohrloch eingebracht werden. Eine Herausforderung beim Einbringen der Bohrung war die Verformung des dünnen Gehäuses sowie die Bildung von scharfen Schnittkanten. Diesbezüglich wurde eine universelle Knopfzellenbohrführung entwickelt, die in Abbildung 1 dargestellt ist. Mit der konstruierten Führung konnten Gehäusebohrungen mit hoher mechanischer Qualität hergestellt werden. Um das Zellgehäuse anschließend wieder gegen das Eindringen der Atmosphäre abzudichten, wurde das Bohrloch mit einer geklebten (2k Exoxidharz) Kapton/Polyimid-Folie wieder verschlossen. Anschließend wurden die Knopfzellen unter Argonatmosphäre (Glovebox) gebaut und darauffolgend elektrisch getestet. Die Ergebnisse

Abbildung 1 : Universelle Bohrführung zum Bohren von Löchern in ein CR2032 Knopfzellengehäuse, einschließlich gebohrter und anschließend wieder mittels Kaptonfolie verschlossener Gehäuse.

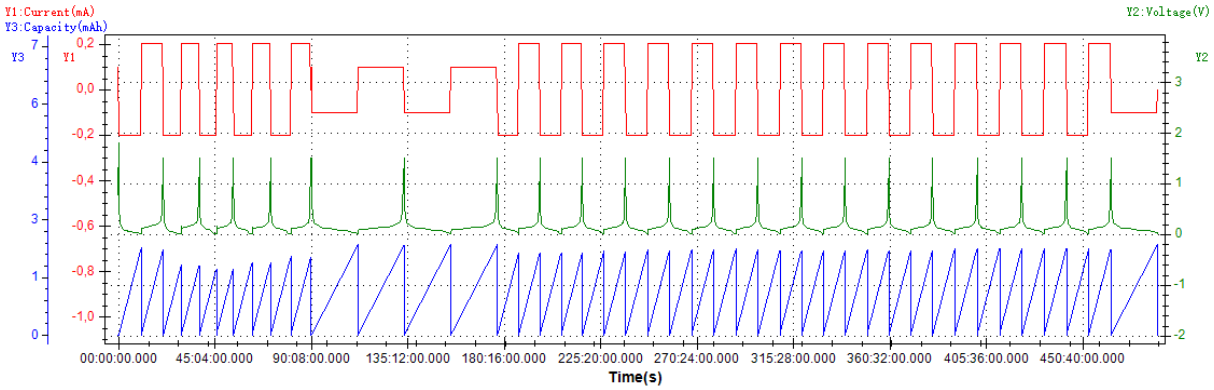


Abbildung 2: Ergebnisse der elektrischen Zyklisierung der modifizierten Knopfzelle

der elektrischen Tests sind in Abbildung 2 dargestellt. Die elektrischen Messergebnisse waren reproduzierbar und der Zellaufbau über Wochen stabil.

Die Zelle vom Typ „Swagelok“ wurde von Grund auf neu konstruiert, mit dem Ziel, auf metallische Komponenten im Gehäuse zu verzichten. Als Herstellungsverfahren wurde die additive Fertigung mittels 3D-Drucker gewählt. Zur Verifizierung der verwendbaren 3D-druckbaren Materialien wurde eine Studie über deren chemische Stabilität gegenüber dem Standardelektrolyten LP30 durchgeführt. Getestet wurden die acht Materialien PEEK, PETG, Tough-PLA, PC, PA, TPU, PLA und PP. Dazu wurden die Materialproben mit einem 3D-Drucker hergestellt und anschließend für 1 Woche in einen Behälter mit LP30 Elektrolyt gelegt. Die folgende Tabelle fasst die Ergebnisse zusammen:

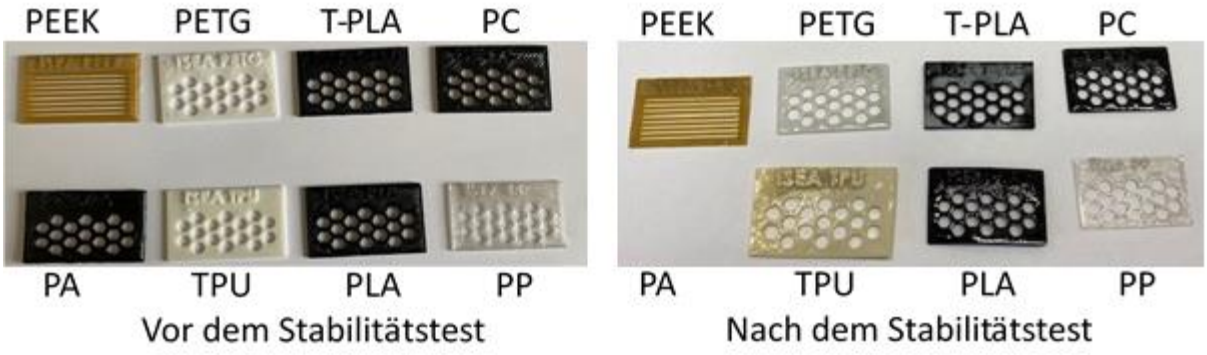


Abbildung 3:Ergebnisse des chem. Stabilitätstestes von 3D-Druck-Materialien

PA	Komplett aufgelöst
TPU	Stark angeschwollen
PLA & T-PLA	Starkes „warping“ / starker Verzug
PETG	Leichte Veränderung der Oberfläche
PEEK, PP & PC	Keine Veränderung beobachtbar

Aufgrund der Ergebnisse wurden nur die Materialien PEEK, PP und PC für die weiteren Untersuchungen/Versuche in Betracht gezogen. Aufgrund der hervorragenden mechanischen Eigenschaften von PEEK (im Vergleich zu PP und PC) wurde das Gehäuse der „Swagelok-Typ-Zelle“ final aus PEEK 3D-gedruckt (Abbildung 4).

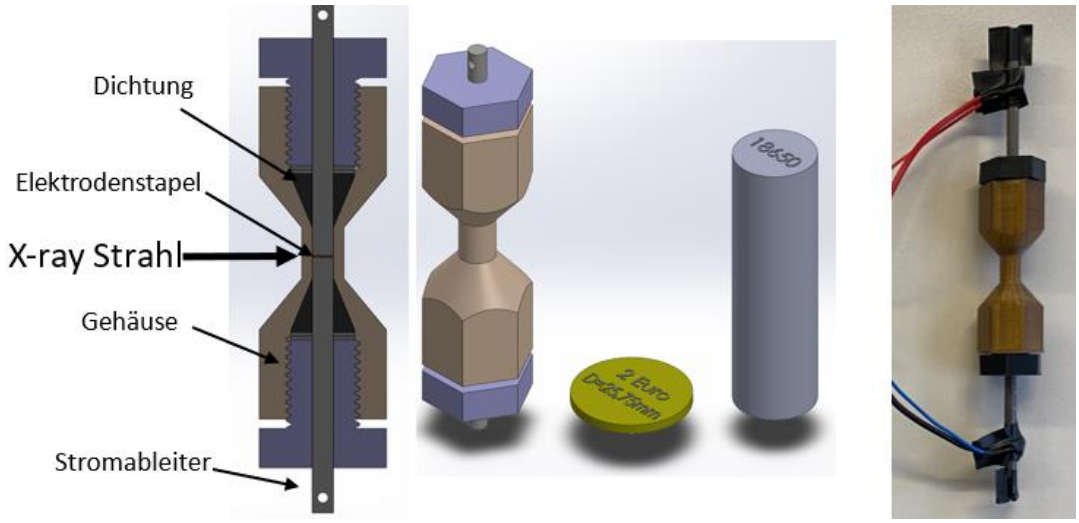


Abbildung 4: Schematischer Aufbau der „Swagelok-Typ-Zelle“ und 3D-gedruckter

Nach Herstellung und mehrfacher Überarbeitung von Prototypzellen wurden auch hier elektrische Tests durchgeführt. Bei den Tests zeigte die „Swagelok-Typ-Zelle“ das klassische Strom/Spannungs-Verhalten einer Batterie, welches jedoch noch nicht langzeitstabil war. Diese Herausforderung sollte während der Projektlaufzeit gelöst werden.

Mit der Fertigung der beiden Zellen wurde **Meilenstein 1** *„funktionsfähige Prototypen der operando Zellen wurden hergestellt und können in den Geräten betrieben werden“* erreicht. In den folgenden Projektjahren sollten die Prototypen stetig weiter optimiert werden.

Im **Projektjahr 2022** wurden erste CT-Messungen von der GFE an den gefertigten operando Prototypzellen (modifizierte Knopfzelle) durchgeführt. Diese Messungen zeigten jedoch, dass mit einer einzigen Bohrung der Öffnungswinkel für eine Vielzahl von CT-Projektionen nicht groß genug ist, um eine hochauflösende Rekonstruktion der aktiven Materialoberfläche zu erhalten. Daher wurde entschieden, ein Langloch einzubringen, welches einerseits den Öffnungswinkel für die CT-Messung vergrößert (Reduzierung des Metallgehäuses, welches in den Strahlengang gedreht wird) und gleichzeitig noch genügend mechanische Stabilität bietet, um die Zelle elektrisch betreiben zu können (Abbildung 5). Für den operando-Betrieb der Zellen im CT wurde zudem ein Zellhalter konstruiert und gefertigt, der einerseits die Zyklisierung der Zelle (über eine 4-Punkt-Messung) ermöglicht und anderseits den CT-Strahlpfad durch das Kapton-Fenster freilässt.

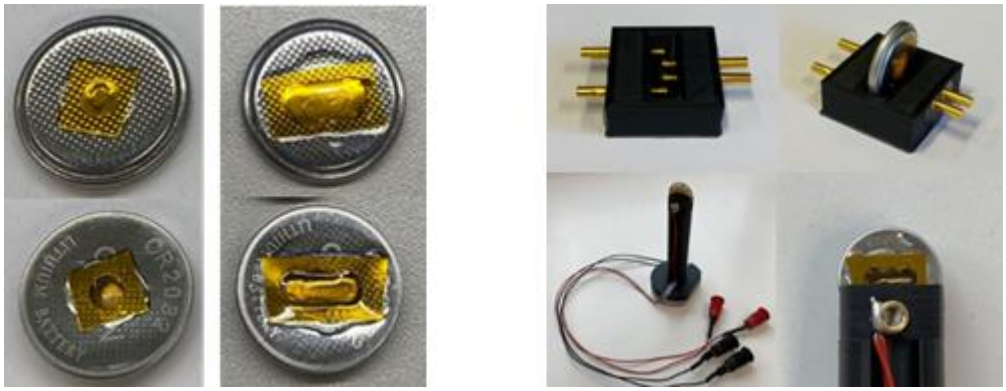


Abbildung 5: CR2032 Knopfzellgehäuse mit Rund- und Langloch. Verschiedene 4-Punkt-Knopfzellhalter zur operando Messung im CT

Nach der Herstellung der ersten Swagelok-Typ Zellen zeigten erste elektrische Tests, dass die Zelle nicht langzeitstabil war. Durch Optimierungen, wie z.B. die Verwendung von Swagelok Keildichtringen und die Optimierung der 3D-Druckparameter, die zu einer erhöhten

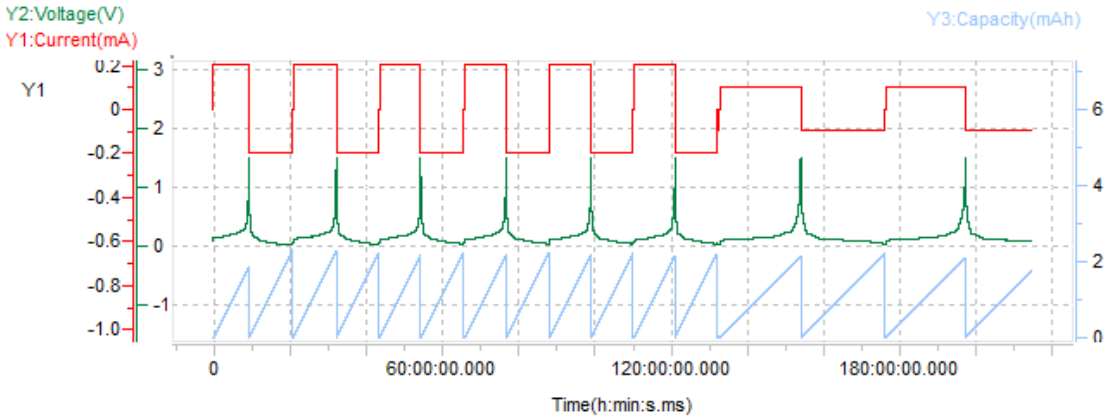


Abbildung 6: Ergebnisse der elektrischen Zyklisierung der Swagelok-Typ-Zelle

Dichtigkeit der Zelle führten, konnte ein stabiles Batterie-Spannungsverhalten über mehrere Tage erreicht werden (Abbildung 6).

Mit der Entwicklung und dem Funktionstest der beiden operando Zellformate war ***AP1: Entwicklung Operando Zelle*** für die Micro-CT Zelle vorerst abgeschlossen. Im dritten **Projektjahr 2023** entstand jedoch die konstruktive Idee einer „Voll-PEEK Knopfzelle“, die die Vorteile der beiden bisherigen Zellformate vereint. Mit der Konstruktion, Fertigung und Inbetriebnahme der neuen „Voll-PEEK Knopfzelle“ (Abbildung 7), die eine metallfreie Durchstrahlung der Batterieelektroden ermöglicht und gleichzeitig ähnlich einer CR2032 Knopfzelle gebaut und zyklisiert werden kann, konnte die Qualität der Lithium Plating Detektion nochmals stark verbessert werden, wie im späteren ***AP4: Zeitliche operando Detektion von Plating*** noch dargestellt wird.

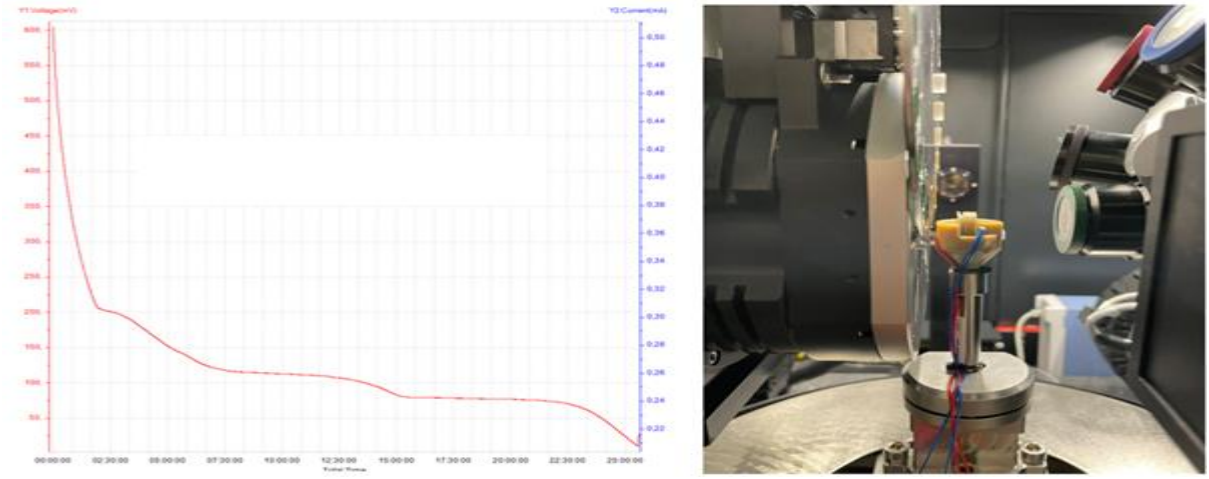


Abbildung 7: Voll-PEEK Knopfzelle: Das neue Design kombiniert die Vorteile der beiden vorangegangen operando Zellen

AP1: IAC – TEM-Zelle

Nach den im vorangegangenen Zwischenbericht dargelegten Lieferverzögerungen des Elektrodenherstellers konnten die Tests an den Elektrodenchips in der kostenneutralen Projektverlängerung fortgeführt werden. Das Elektrodenmaterial wies herstellungsbedingt einen hohen Anteil an amorphem Kohlenstoff auf, so dass weitere Versuche unternommen

wurden, durch intensive Bestrahlung im Rasterelektronenmikroskop (SEM) den graphitischen Anteil zu erhöhen. Die Umwandlung von amorphem in graphitischen Kohlenstoff lässt sich mithilfe der Raman-Spektroskopie verfolgen, indem die Entwicklung der für Graphit charakteristischen Signale im Bereich von 1200 bis 1750 cm^{-1} (D- und G-Band) beobachtet wird.

Experimente im vorletzten Berichtszeitraum zeigten, dass in den ersten Testchips Wasser und Verunreinigungen im Material vorhanden waren, die im letzten Berichtszeitraum an den finalen Chips durch Erhitzen des Substrats mithilfe eines regelbaren Heizchips effektiv entfernt werden können (Abbildung 8a, b). Dadurch lässt sich eine höhere Elektronendosisstrahlung, die zum Ätzen des amorphen Kohlenstoffs führt, vermeiden. Frühere Ergebnisse deuteten darauf hin, dass eine höhere Elektronendosis die Graphitisierung fördert. Um die Auswirkung der Elektronendosis auf die Graphitisierung weiter zu untersuchen, wurde die Bestrahlung mit verschiedenen Dosen von $15 \cdot 10^6$ $C \cdot m^{-2}$ bis $155 \cdot 10^6$ $C \cdot m^{-2}$ fortgesetzt. Abbildung IAC-1c zeigt ein REM-Bild nach der Bestrahlung von drei Bereichen. Jeder Bestrahlungspunkt weist eine vulkanähnliche Form auf, mit einer zentralen Bestrahlungszone, die wie zuvor von weiteren Ablagerungen umgeben ist. Dieses Phänomen stimmt mit den früheren Ergebnissen überein. Die AFM-Messungen von den früheren Ergebnissen zeigten, dass die Höhe des bestrahlten zentralen Bereichs der Höhe des unbestrahlten Bereichs entspricht. Die erhöhte Höhe der Randbereiche deutet jedoch darauf hin, dass die Bestrahlungsränder durch mögliche Verunreinigungen von Umgebung beeinflusst wurden, die zu den erhöhten Ablagerungen führten. Die Ramanspektren im inneren Bereich (Abbildung IAC-1d) zeigen, dass mit steigender Elektronendosis die Intensität zwischen 1200 und 1750 cm^{-1} zunimmt und bei den höheren Dosen G- und D-Bande getrennt sichtbar sind. Die Intensität der G-Bande steigt dabei stärker als die Intensität der D-Bande. Dies deutet darauf hin, dass sich der amorphe Kohlenstoff allmählich in graphitischen Kohlenstoff umwandelt. In Abbildung IAC-1e sind die aus den Einzelspektren ermittelten G/D-Verhältnisse der Intensitäten der D- und G-Banden für die eingesetzten Dosen von $15 \cdot 10^6$ $C \cdot m^{-2}$ bis $155 \cdot 10^6$ $C \cdot m^{-2}$ aufgetragen. Über den untersuchten Bereich steigt das G/D-Verhältnis für geringe Dosenzunahmen zunächst stark an und geht in einen linearen Anstieg für die höheren Dosen über. Auch wenn der absolute Graphitanteil nicht ermittelt werden konnte, lässt hiermit sich die Zunahme des graphitischen Anteils verfolgen.

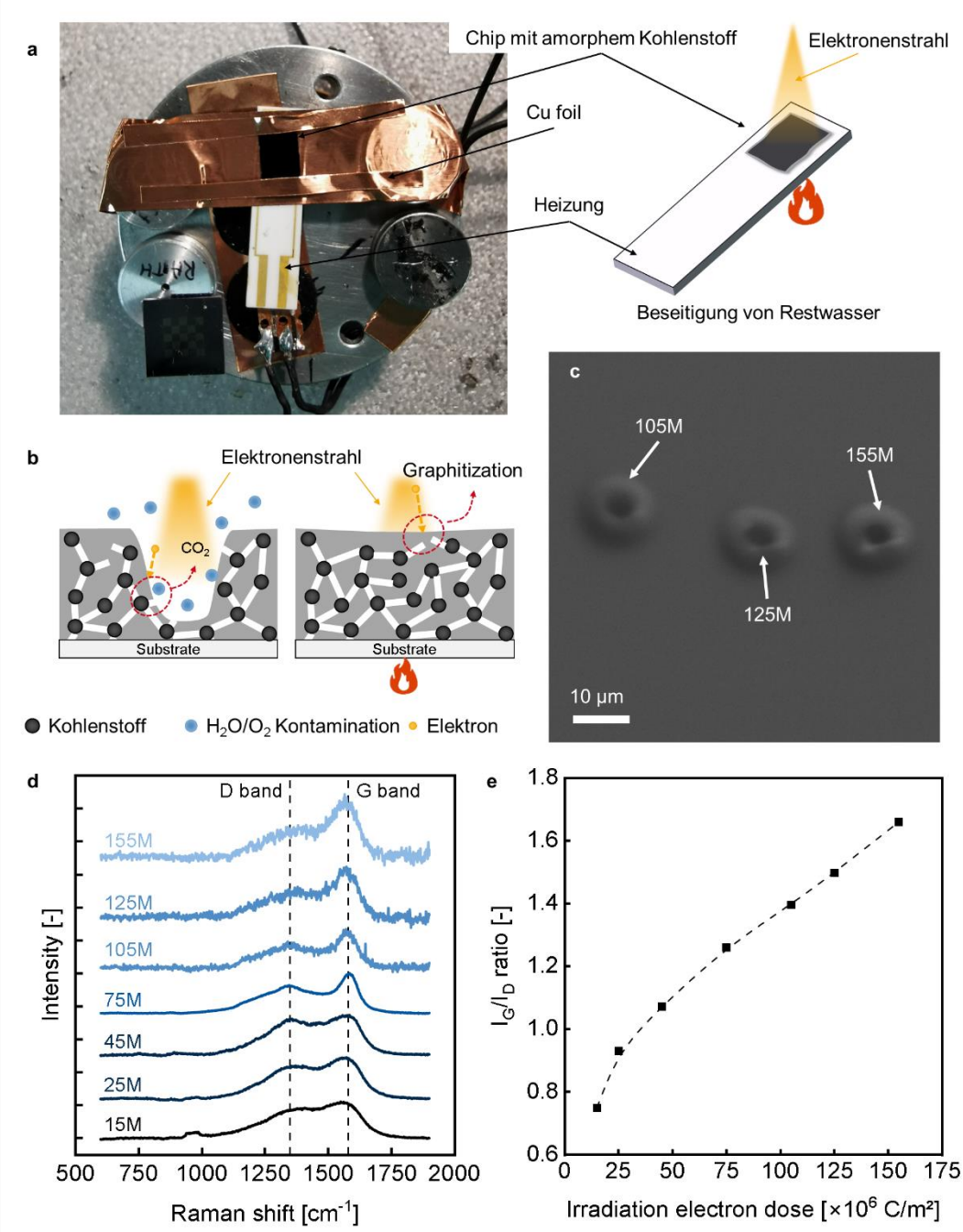


Abbildung 8: a. das Bild und die schematische Darstellung des Bestrahlungsaufbaus mit einem Heizsystem; b. Die schematische Darstellung des Wasserätzmechanismus (links) und des Bestrahlungsprozess nach dem Erhitzen zur Entfernung des Wassers (rechts); c. REM-Bilder von den Gebieten nach der Bestrahlung mit den drei höchsten Elektronendosen, d. Raman-Spektren der bestrahlten Bereiche mit steigender Elektronendosis von 15·106 C·m-2 (15M) bis 155·106 C·m-2 (155M); e. G/D-Verhältnisse der Intensitäten der D- und G-Banden.

AP2: ISEA: Elektrische Detektion

	2021				2022				2023				2024			
	Q1	Q2	Q3	Q4	Q1	Q2	Q3	Q4	Q1	Q2	Q3	Q4	Q1	Q2		
AP 2: Elektrische Detektion (ISEA)																
UAP 2.1: Zellen beschaffen und Testplan aufsetzen																
UAP 2.2: Vortests um kritische Testpunkte zu evaluieren																
UAP2.3: Testkampagne durchführen																

Im zweiten Arbeitspaket ***Elektrische Detektion*** soll das Lithium-Plating-Verhalten an kommerziellen Zellen analysiert werden, um ein tieferes Verständnis der zugrunde liegenden Prozesse zu generieren. Zu **Projektbeginn 2021** wurde daher eine umfangreiche Recherche zu möglichen kommerziellen Projektzellen durchgeführt. Da Plating ein großes Sicherheitsrisiko darstellt (interne Kurzschlüsse und thermisches Durchgehen der Zelle), fiel die Vorauswahl auf kleinere Zellen mit <1Ah. Darüber hinaus wurde sich auf das Pouch-Zellformat (idealerweise mit gestapelten Einzelelektroden) geeinigt, da hier die Post-Mortem Untersuchungen wie auch die Probenweitergabe vereinfacht gegenüber z.B. dem Rundzellformat ist. Von gealterten Rundzellen ist u.a. bekannt, dass sich das Aktivmaterial nach dem Öffnen der Zelle oft vom Ableiter löst und nicht mehr untersucht werden kann. Darüber hinaus ist bei prismatischen Zellen der Öffnungsprozess im Vergleich zum Pouch- und Rundzellenformat wesentlich komplizierter, sodass dieses Format auch nicht in Betracht gezogen wurde.

Nach diesen Kriterien wurden 5 verschiedene Batteriezellen des Typs „LiPo“ (Lithium-Polymer-Akkumulator) gekauft (Hersteller: Drone Art, Tattu, Red Power, Conrad Energy, Renata) und anschließend durch elektrische (qOCV, Kapazitäts-Messung) und Post-Mortem-Analysen (Geometrie, Gewicht, Lasermikroskop, REM/EDX, GC-MS, ICP, Knopfzellbau) charakterisiert. Die LiPo-Zelle des Herstellers Tattu zeigte unter den untersuchten Zellen die besten Eigenschaften (u.a. einzeln gestapelte und nicht gefaltete Elektroden sowie Verwendung von Standardmaterialien für Aktivmaterial, Elektrolyt und Separator), so dass die Zelle „Tattu 850mAh 11,1 V 75 C XT-30“ für die weitere Projektbearbeitung verwendet wurde. Die Zelle besteht aus 42 Graphit Anoden (4,0 cm x 2,8 cm), 41 Lithium-Cobalt-oxid (LCO) Kathoden (3,9 cm x 2,7 cm), einem Kunststoffseparator und einem flüssigen Elektrolyten.

Für die anschließenden elektrischen Tests wurde mit dem Projekt BALd (Cluster BattNutzung) zusammengearbeitet. Im BALd-Projekt wurde ein Aufbau für die mechanische Verspannung der Zellen entwickelt (Abbildung 9). Im InOPlaBat-Projekt wird ein Aufbau benötigt, der eine gleichmäßige Temperaturverteilung sowie eine gute Wärmeableitung gewährleistet. Durch die Verwendung des gleichen Aufbaus können sowohl Entwicklungskosten gespart werden, als auch die Ergebnisse im weiteren Projektverlauf miteinander verglichen werden. Damit wurde der Grundstein für eine Zusammenarbeit der beiden Projekte gelegt.

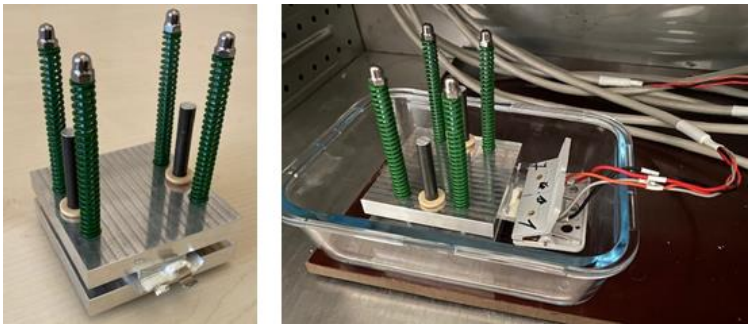


Abbildung 9: Aus dem BALd Projekt übernommener Zellhalter

Nach der Durchführung von elektrischen Vorversuchen wurde eine Testmatrix basierend auf Zelltemperatur (-15°C → 45°C) und Laderate (C/10 → 4C) erstellt. Die Testmatrix wurde dann im ersten Projektjahr weitgehend bearbeitet und in den Messergebnissen mittels „Differential Voltage Analysis“ (DVA) nach Indikatoren gesucht, die auf Lithium Plating oder eine verminderte Aufnahme von Li-Ionen in der Anode (Graphit) hinweisen. Die Vorstellung der Ergebnisse der elektrischen Tests auf Projekttreffen, Clustertreffen sowie Konferenzen während der gesamten Projektlaufzeit führte zu einem immer größeren Verständnisgewinn, so dass die elektrischen Tests während der gesamten Projektlaufzeit in Teilen weitergeführt und adaptiert wurden.

Die Ergebnisse des elektrischen Tests zur Detektion also auch Quantifizierung von Lithium Plating wurden im Rahmen der Dissemination der wissenschaftlichen Ergebnisse (siehe **AP0**) in einer Publikation mit dem Titel: *Lithium Plating in Commercial Lithium-Ion Cells: An Extensive Study Combining Electrical Methods with Post-Mortem Analysis* (Ditler et al.) zusammengefasst. Zum Zeitpunkt der Berichterstellung befindet sich die Publikation im Peer-Review-Prozess. Ein exemplarisches Ergebnis aus dem Projekt ist die Abhängigkeit der Li Plating Menge von der Batterietemperatur, der Laderate oder der elektrischen Detektionmethode (Abbildung 10).

Durch diese Versuche konnten für die Projektzelle Wertepaare aus Temperatur und Laderate

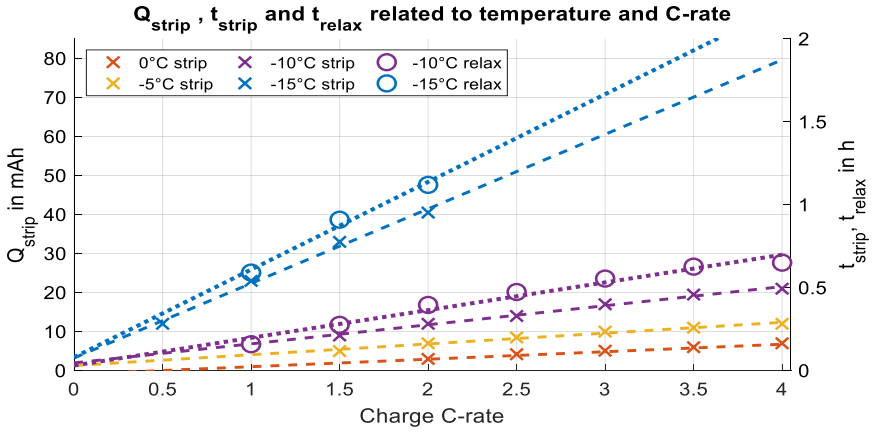


Abbildung 10: Einfluss von Temperatur, Laderate und auf die detektierbare Lithium Plating Menge

ermittelt werden, bei denen der Lithium-Plating-Prozess einsetzt. Neben dem bereits erwähnten Einfluss von Laderate und Temperatur auf das Lithium Plating Verhalten wurde im Rahmen von InOPlaBat auch der Einfluss variabler Entladeraten bei der sogenannten „Stripping-Messung“ untersucht. Basierend auf den Ergebnissen der variablen Entladerate, die ebenfalls im Rahmen der oben genannten Publikation veröffentlicht werden, wird vermutet, dass mit dieser Messmethode eine genauere Quantifizierung der Lithium Plating Menge möglich ist. Weitere Ergebnisse bzw. Forschungsfragen der Publikation sind die Untersuchung des Reinterkalations-verhaltens von metallischem Lithium in Graphit sowie die Reversibilität des Lithium Plating Prozesses und wie dieser beeinflusst werden kann.

Neben den elektrischen Tests zur Detektion von Lithium Plating wurde auch eine Vielzahl von elektrischen Charakterisierungsmethoden an der Projektzelle durchgeführt, sodass anschließend ein vollständiger Datensatz zur Modellierung der Zelle zur Verfügung steht. Beispielsweise wurden Messungen mit der Elektrochemischen Impedanzspektroskopie (EIS) durchgeführt und die aufgenommenen Spektren anschließend in ein elektrisches Ersatzschaltbild gefittet. Die Ergebnisse (Abbildung 11) zeigen eine exponentielle Temperaturabhängigkeit (nach Arrhenius) der internen Prozesse. Von +25°C bis -15°C steigt

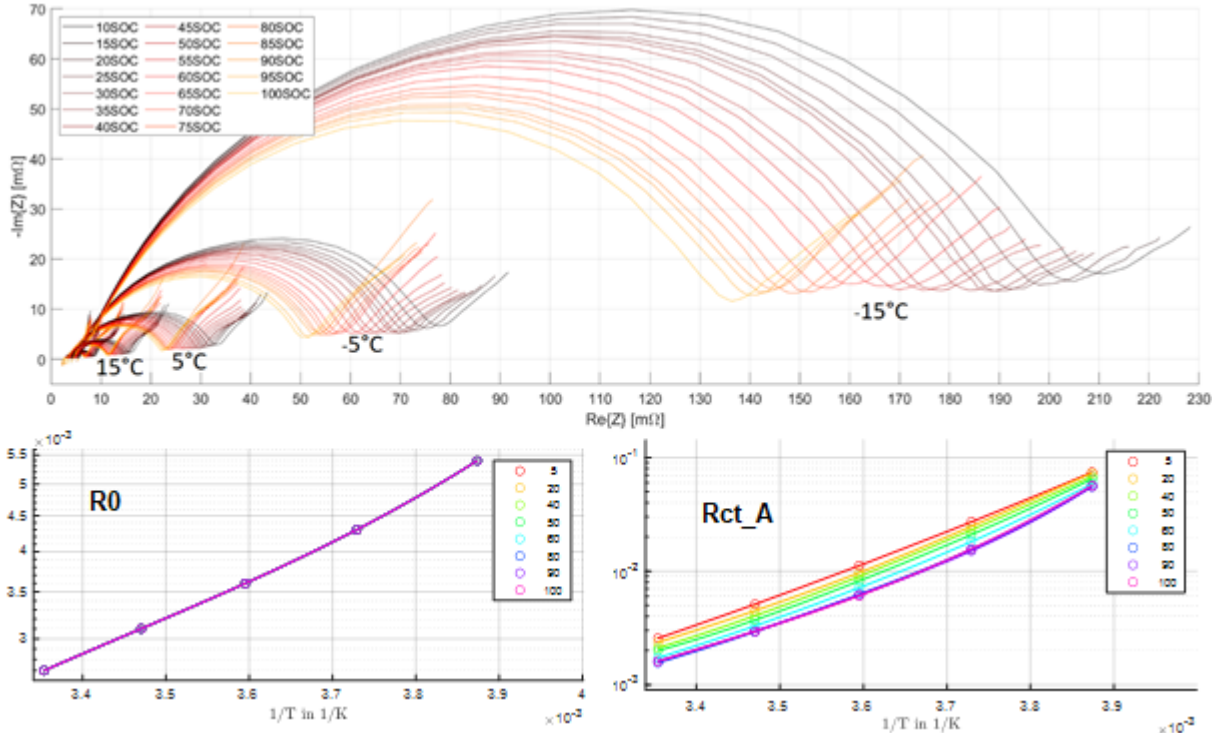


Abbildung 11: EIS-Charakterisierung der Tattu Projektzellen von -15°C bis 45°C inkl. Extraktion des Innenwiederstand R0 wie auch des Ladungsdurchtrittwiderstand der Anode Rct_A

z.B. der Innenwiderstand der Zelle um ca. den Faktor 2 und der Ladungsdurchtrittswiderstand Anodenseitig sogar um den Faktor 35. Gerade letzterer hat vermutlich einen entscheidenden Einfluss auf das Lithium Plating Verhalten der Zelle, welches im Modellierungsarbeitspaket **AP5** des Projektes weiter untersucht werden soll.

	2021				2022				2023				2024			
	Q1	Q2	Q3	Q4	Q1	Q2	Q3	Q4	Q1	Q2	Q3	Q4	Q1	Q2		
AP 3: Post-Mortem Detektion (IAC)																
UAP 3.1: Probenvorbereitung festlegen																
UAP 3.2: Zellen öffnen, analysieren, Material weitergeben																
UAP 3.3: räumlich aufgelöste Analysemethoden																
UAP 3.4: spektroskopische Messmethoden																
UAP 3.5: Korrelation Post-Mortem und el. Daten																

AP3: ISEA: Post-Mortem Detektion

Nachdem in **AP2** mittels elektrischer Methoden die Bedingungen ermittelt wurden die zu Lithium Plating führen, wurde in AP3 die Detektion als auch Validierung des metallisch abgeschiedenen Lithiums untersucht. Dazu über die gesamte Projektlaufzeit hinweg weit über 50 Projektzellen in einer Glovebox mit Argon Atmosphäre geöffnet. Da u.a. die Lithium Plating Menge auch räumlich aufgelöst analysiert und eine Korrelation mit den elektrischen Ergebnissen möglich sein sollte, wurden alle Anoden direkt nach dem Öffnen der Zelle mit einem Flachbettscanner digitalisiert und anschließend mit Methoden der Computer Vision verarbeitet (Abbildung 12). Diese Methode umfasste die Erfassung, Detektion und Analyse von Regionen des Interesses (ROIs) auf den Anodenoberflächen, die Anwendung von Deep Learning zur Bereinigung von Überhängen, k-NN-Clustering zur Identifikation von Ankerwerten und die Generierung von Masken zur Analyse der Lithium-Plattierungsintensität. Zusätzlich ermöglichte der Computer Vision Ansatz eine räumliche Analyse der Lithium Plating Verteilung mittels Heatmap-Visualisierung und 3D-Visualisierungstechniken, sodass anschließend ein tieferes Verständnis für die örtliche Lithium Plating Verteilung möglich war. So war ein Ergebnis, dass Lithium Plating bevorzugt an den Außenelektroden sowie am Elektrodenrand auftritt. Dies wird zum einen auf die Temperaturverteilung innerhalb der Zelle sowie auf die Nähe zum Anodenüberstand begründet.

Mit dem Datensatz von >4000 gescannter Anodenoberflächen war eine Korrelation zu den elektrischen Daten möglich. Das heißt es gibt einen ähnlichen „Onset-Point“ zur Lithium Plating Detektion wobei sowohl elektrische Methoden wie auch post-mortem Methoden jeweils ihre Stärken haben. Die vollständigen korrelativen Ergebnisse befinden sich in der bereits erwähnten im Peer-Review Prozess befindenden Publikation: *Lithium Plating in Commercial Lithium-Ion Cells: An Extensive Study Combining Electrical Methods with Post-Mortem Analysis* (Ditler et al.).

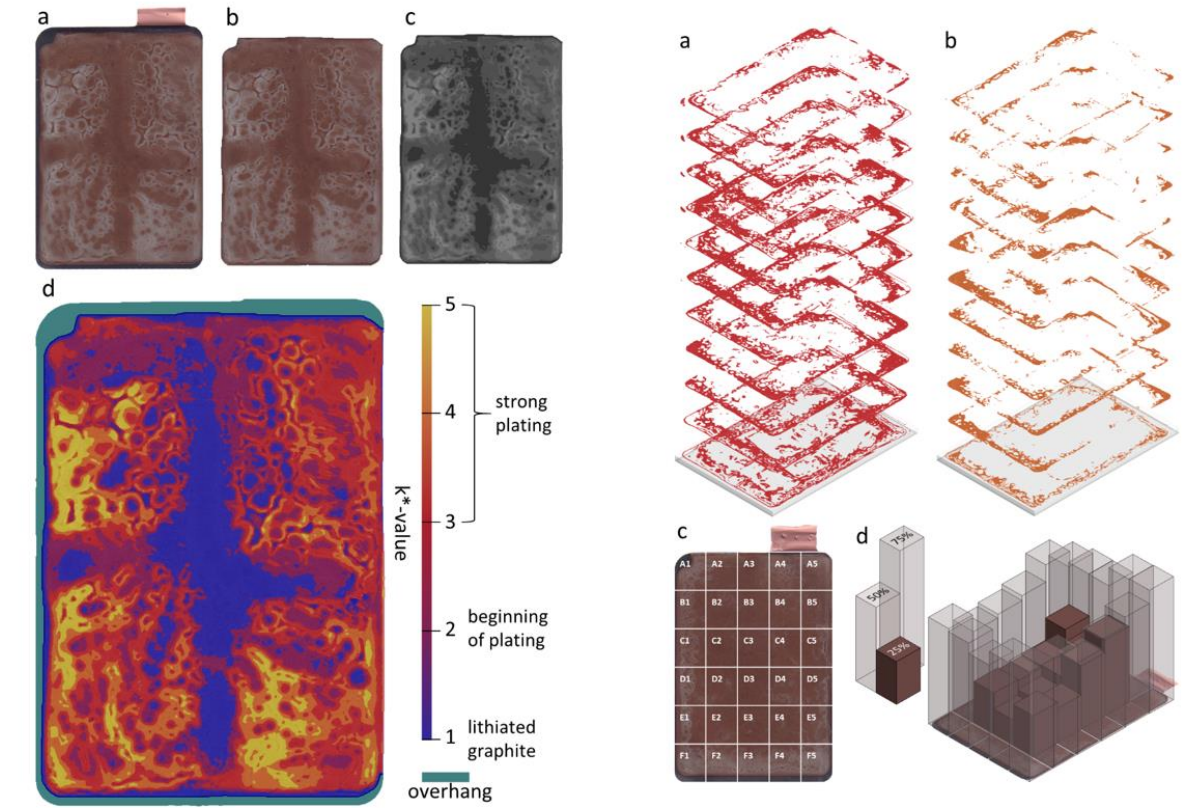


Abbildung 12: Digitale Bildauswertung (Clustering) von geplateten Zelloberflächen (links) und Anwendungsbeispiele für geclusterte Zellen (rechts)

Ein weiteres nennenswertes Ergebnis von AP3 war die Entdeckung und spektroskopische Bestätigung einer neuen Lithium Plating Morphologie: Rhombisch Dodekaedrisch (Rhombic Dodecahedral). Die neue polyedrische Plating Morphologie wurde 2023 parallel auch von einer

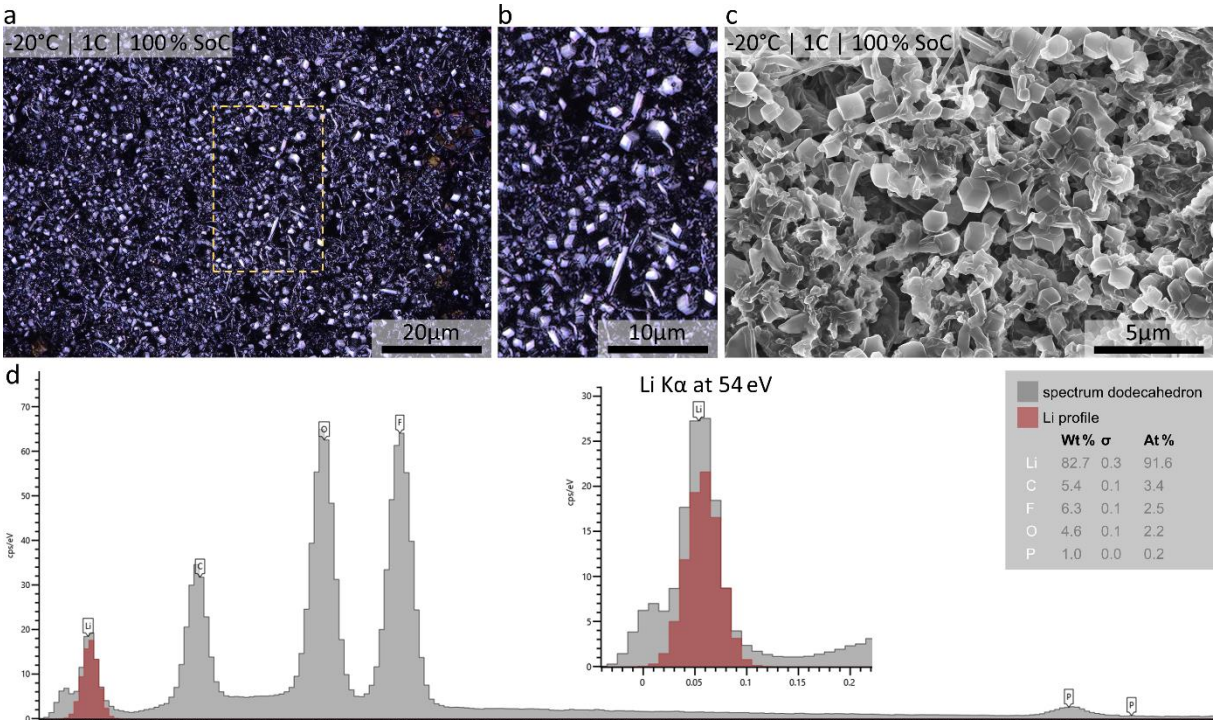


Abbildung 13: Rhombisch Dodekaedrische Plating Morphologie Untersuchungen mittels Laser Mikroskop, Rasterelektronen-mikroskop und Energiedispersive Röntgenspektroskopie (EDX)

anderen Forschungsgruppe gefunden [doi.org/10.1038/s41586-023-06235-w, doi.org/10.1021/acs.nanolett.2c02792], dort jedoch durch Lithium Abscheidung auf einem Laborzellensubstrat. In InOPlaBat gelang der Nachweis auf kommerziellen Graphitpartikeln mit Abscheidung im Vollzellbetrieb (Abbildung 13). Auch diese Ergebnisse werden derzeit in eine Publikation überführt (Arbeitstitel: *Observing and Analyzing the Novel Polyhedral Lithium Plating Morphology in a Commercial Full Cell Battery* (Ditler et al.).

Neben den Post-Mortem Untersuchungen an der InOPlaBat Projektzelle wurde im Rahmen der Dissemination der wissenschaftlichen Ergebnisse (siehe **AP0**) eine Vernetzung mit dem Projekt CharLiSiKo aus dem AQua Cluster aufgebaut und eine Round-Robin Studie an einer gemeinsamen Zelle zur Post-Mortem Methodenentwicklung zur Lithium Plating Detektion durchgeführt.

AP 3-5: IAC: NMR, EELS, operando Messungen und Validierung
Arbeiten im UAP 3.4 „Spektroskopische Messmethoden: NMR, EELS und EPR“, UAP 4.1 und 4.2 „Operando Zellen betreiben“ und „Abgleich Charakteristika“, UAP 5.1, 5.2 und 5.4 „Atomistische Modellierung“, „P2D-Newman-Modell“ und „Modelle verifizieren“

In den bisherigen Berichten hatten wir festgestellt, dass in Anwesenheit des Elektrolyten die Ränder der Arbeitselektrode in *in situ*-TEM-Zellen schwierig zu finden und zu fokussieren sind. Da Kohlenstoff im TEM nur geringen Kontrast aufweist, erhöht sich der Schwierigkeitsgrad insbesondere mit einer Kohlenstoff-Arbeitselektrode in Anwesenheit Elektrolyt. Im statischen Betrieb mit einer einmalig befüllten Zelle war es in Anwesenheit des Elektrolyten somit nicht möglich, die Ränder der Kohlenstoffelektrode zu fokussieren. Daher haben wir im kontinuierlichen Durchfluss TEM- Untersuchungen angestellt und die Veränderung über einen Zeitraum aufgezeichnet. Abbildung 14a-c zeigt schematisch die beiden Betriebsmodi. Als System diente das bereits beschriebene Modellsystem Silbernitrat/Natriumnitrat (wässrige Lösung mit 2 mM $AgNO_3$ und 50 mM $NaNO_3$), das mittels einer Injektionspumpe mit einer Flussrate von 2 µL/min in die *in situ*-TEM-Zelle gepumpt wurde. Dazu wurde die Zelle zunächst leer vermessen, wobei die Elektrode deutlich erkennbar war (Abbildung 14d, 0 min). Eine Spritzenpumpe führte langsam Elektrolyt durch die Zuleitung der Zelle zu, überschüssiger Elektrolyt konnte drucklos abfließen. Mit dem Durchfluss erschien die Elektrode zunehmend unscharf. In Abbildung 14d sind an den mit gelben Pfeilen markierten Stellen Blasen zu erkennen, die über das kontinuierliche Pumpen weitestgehend entfernt werden konnten. Ab 160 min war die Zelle im sichtbaren Bereich vollständig mit dem Elektrolyten gefüllt. Nach 170 min brach der obere Fensterchip, so dass nach Austritt des Elektrolyten die Elektrode wie im unbeladenen Zustand sichtbar wurde (Minute 192). Aufgrund des geringen Kontrasts von Lithiummetall in TEM-Bildern wurde im vorherigen Bericht als Modellsystem Silberionen beschrieben und in ersten Tests eingesetzt, um das Abscheidung und Auflösen von Metallen auf der Arbeitselektrode besser verfolgen zu können.

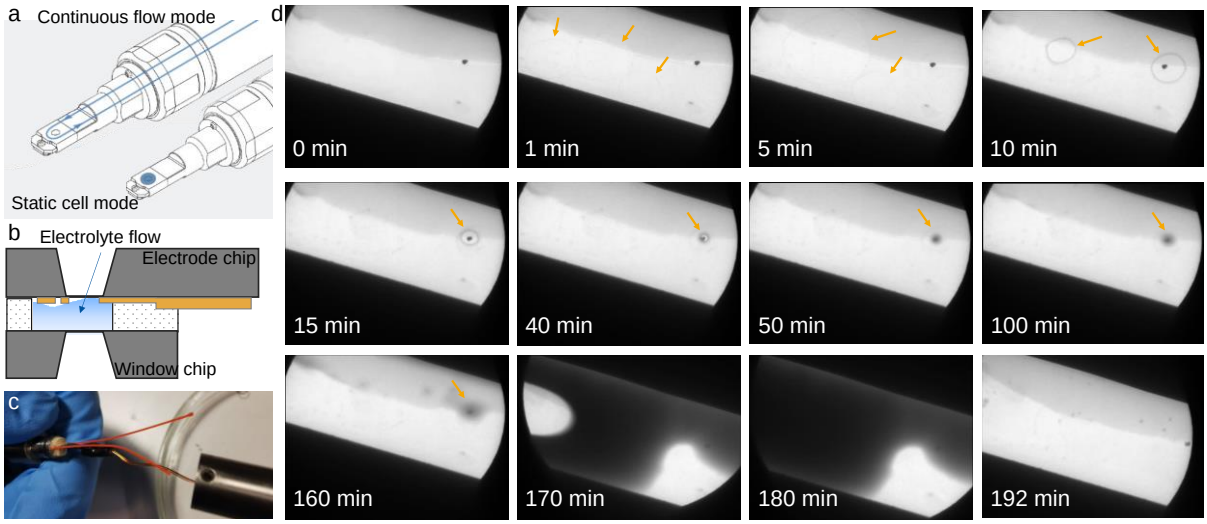


*Abbildung 14: a Das schematische Diagramm der beiden Betriebsmodi: kontinuierlicher Durchflussmodus und statischer Zellenmodus für die in situ-TEM-Flüssigzelle. b Das schematische Diagramm des Querschnittsbildes der Flüssigzelle. c Das Bild der Zu- und Ableitung. **d** Die zeitliche Veränderung der TEM-Bilder, die mit einer Spritzenpumpe und einer Flussrate von 2 µL/min erhalten wurden.*

Abbildung 15 zeigt eine Serie von *in situ*-TEM Bildern eines Elektrodenchips mit Kohlenstoff-Elektroden in Anwesenheit des silberionenhaltigen Elektrolyten während eines Lade-/Entladezyklus von -0,5 V bis 0,05 V gegenüber Pt RE mit einer Scanrate von 10 mV/s. Während des Durchlaufs wurden zu verschiedenen Zeitpunkten und Spannungen hochauflösende Bilder aufgenommen und ausgewertet. Der dunkle Bereich in jedem Bild (oben links) repräsentiert die Elektrode, an deren Rand während des Zyklisierens sichtbare Veränderungen auftreten (unten rechts). In den Kreisen sind Partikel markiert, an dem abhängig von der Spannung morphologische Änderungen feststellbar sind.

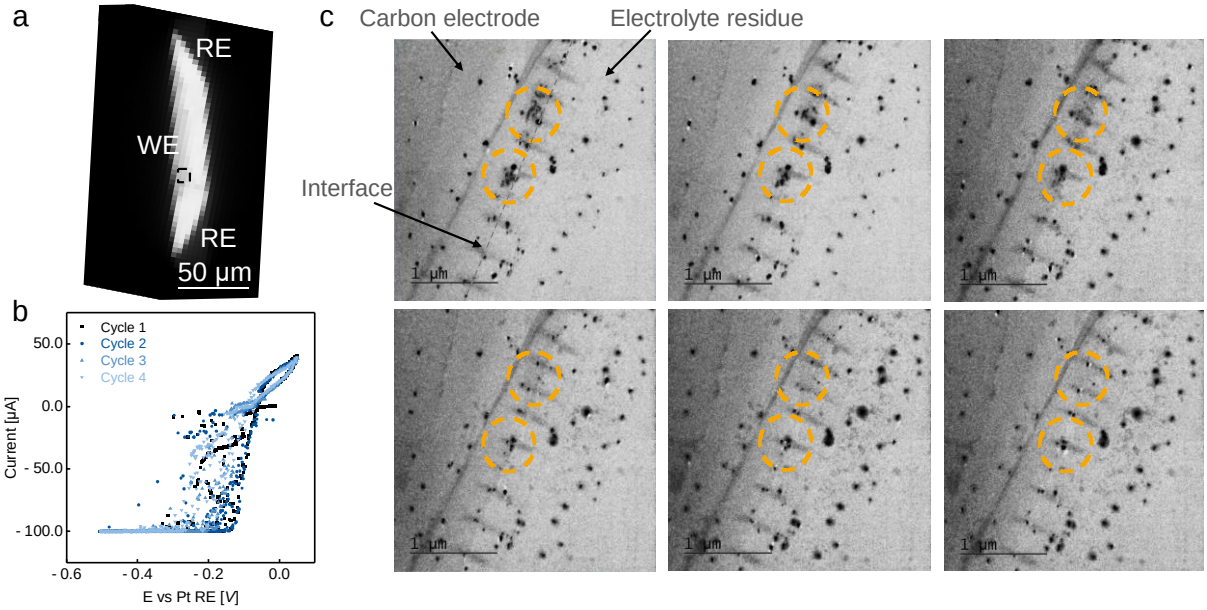


Abbildung 15:a Die in-situ-TEM-Aufnahme eines Elektrodenchips mit Kohlenstoff Elektroden während der Untersuchung mit Silberionen als Indikator für elektrochemische in-situ-TEM-Tests. CV-Kurve (b) und in-situ-TEM Bilder (c) der Ag-Abscheidung an der Kohlstoff-Arbeitselektrode während des Lade- und Entladezyklus der mit Elektrolyten gefüllten in-situ-TEM Zelle.

AP 3: GFE – RWTH Aachen: Charakterisierung mit dem Raster- und Transmissionselektronenmikroskop

a. Untersuchung einer nicht-zyklierten Probe

Um das Vorhandensein von Li-Plating auf der Anodenoberfläche zu verstehen, wurden als Referenz frische Anoden aus nicht-zyklierten Zellen, sowie gealterte Proben aus den Experimenten am ISEA elektronenmikroskopisch analysiert. Zunächst wurde die ursprüngliche Anode in der Draufsicht und im Querschnitt mit dem Rasterelektronenmikroskop (REM) untersucht, um einen Überblick über den Ausgangszustand der Probe zu erhalten. Die REM-Proben für die Untersuchungen in Draufsicht wurden hergestellt, indem ein Stück der Probe unter Inertgas mit einer Schere ausgeschnitten wurde. Für die Untersuchungen der Anode im Querschnitt wurden die so vorbereiteten Proben mit einem JEOL SM-09010 Argon-Ionen-Querschnittspolierer (Cross-Section Polisher, CSP) mit einem niederenergetischen Argon-Strahl präpariert. Nach der Probenvorbereitung wurden sowohl die Draufsicht- als auch die Querschnittproben mit einem Zeiss Gemini SEM300 Rasterelektronenmikroskop (REM) untersucht. Dieses REM-Gerät wird mit einer Feldemissionskathode (FEG) mit einer Beschleunigungsspannung von 10 kV betrieben und ist mit einem energiedispersiven Röntgenspektrometer (EDX) vom Typ Siliziumdrift-Detektor (SDD, Oxford Ultim Max) für die Analyse der chemischen Zusammensetzung ausgestattet.

Abbildung 16 zeigt Sekundärelektronen-(SE)-REM-Aufnahmen von einer Draufsicht und dem Querschnitt der nicht-zyklierten Anodenprobe, welche die Morphologie und Geometrie der Komponenten in der Anode veranschaulichen. Die REM-Aufnahme in Draufsicht (Abbildung 16a) zeigt die typischen Graphitpartikel mit einer Partikelgröße zwischen 2 und 15 µm Durchmesser. Bereiche mit Li-Plating konnten in den nicht-zyklierten Proben nicht gefunden werden. Auf der Graphitoberfläche wurden nur kleine Flocken gefunden (siehe Abbildung 16b), die möglicherweise auf eine Zersetzung des Elektrolyten zurückzuführen sind. Die REM-Ergebnisse des Querschnitts der unzyklierten Probe (siehe Abbildung 16c) zeigen eine Elektrodengeometrie mit einer Dicke von etwa 23 um (für den oberen Teil) und 26 um (für den unteren Teil). Es wurde ein Stromkollektor mit einer Dicke von etwa 5,5 µm verwendet. Darüber hinaus sind in der Elektrode auch Poren zu erkennen, was darauf hindeutet, dass die Elektrode nicht dicht ist (siehe Abbildung 16d).

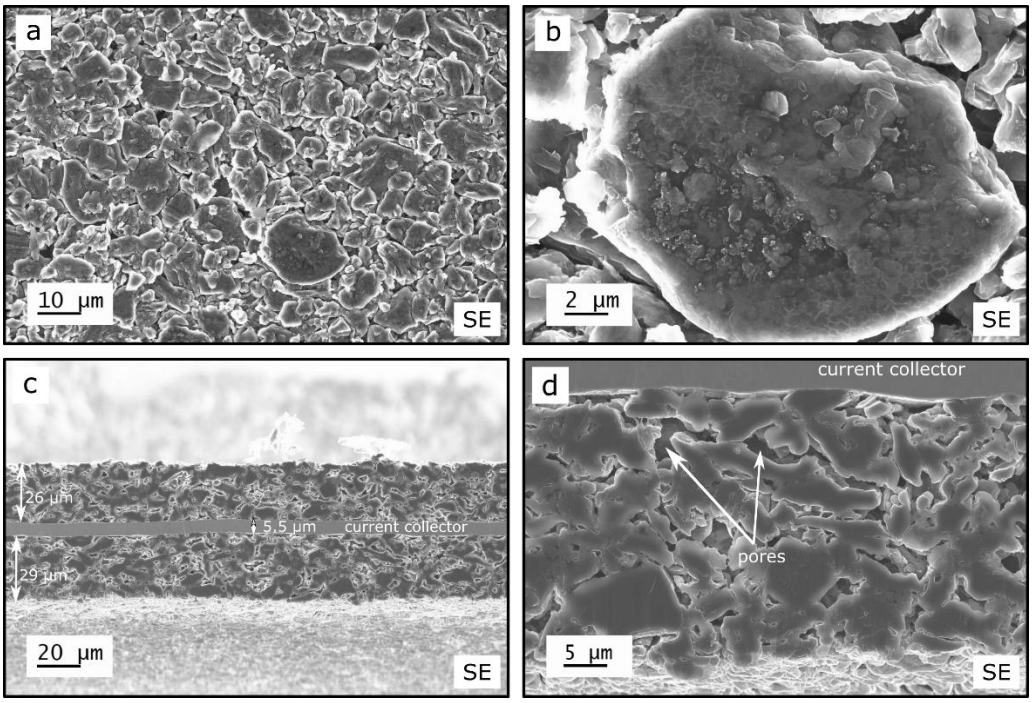


Abbildung 16: REM-Sekundärelektronenbilder (SE) in Draufsicht (a,b) und im ionenpolierten Querschnitt einer nicht zyklierten Anodenprobe (c,d) bei zwei unterschiedlichen Vergrößerungen.

Zur Bestimmung der chemischen Zusammensetzung der unbehandelten Anodenproben in Draufsicht und im Querschnitt wurde eine Kombination aus REM-Bildgebung mit rückgestreuten Elektronen (BSE) und EDX-Elementverteilungsanalyse durchgeführt. In Abbildung 17 und Abbildung 18 sind die REM-EDX-Elementkarten der Proben in Draufsicht und im Querschnitt dargestellt. Den REM-EDX-Ergebnissen zufolge bestand die unbehandelte Probe hauptsächlich aus Kohlenstoff (C), dessen Signal aus dem Graphit als aktivem Material in der Anode stammt. Fluor (F), Sauerstoff (O) und eine kleine Menge Phosphor (P) wurden ebenfalls in der Elektrode gefunden, was wahrscheinlich auf die anfängliche Bildung einer Festkörper-Elektrolyt-Grenzfläche (SEI) auf der Graphitoberfläche zurückzuführen ist. Darüber hinaus wurde eine Kupferfolie (Cu) als Stromableiter verwendet, welche in Abbildung 3 deutlich zu erkennen ist.

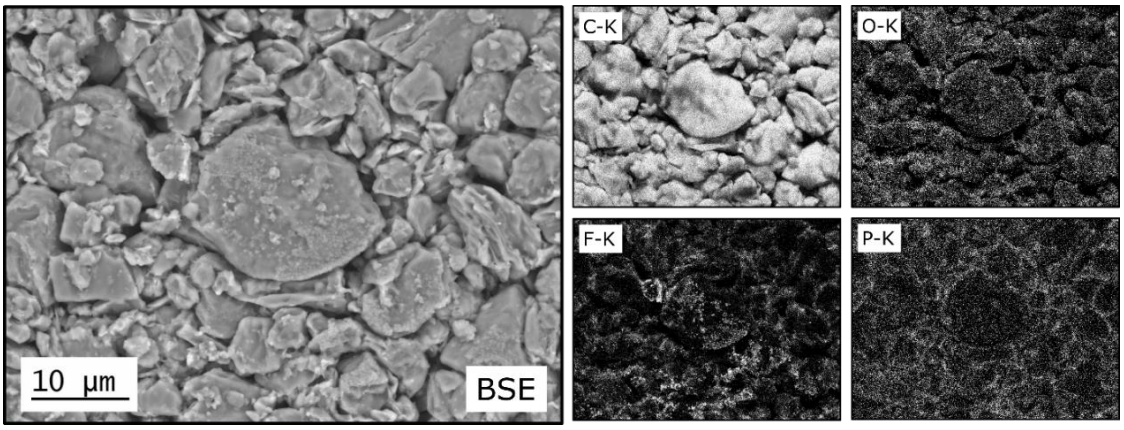


Abbildung 17: Rückstreuelektronenbilder (BSE) im REM und die zugehörigen EDX-Elementver-teilungsbilder einer nicht zyklierten Anode. Die EDX-Elementverteilungsilder zeigen die Verteilung von Kohlenstoff, Sauerstoff, Fluor und Phosphor in der untersuchten Probenstelle.

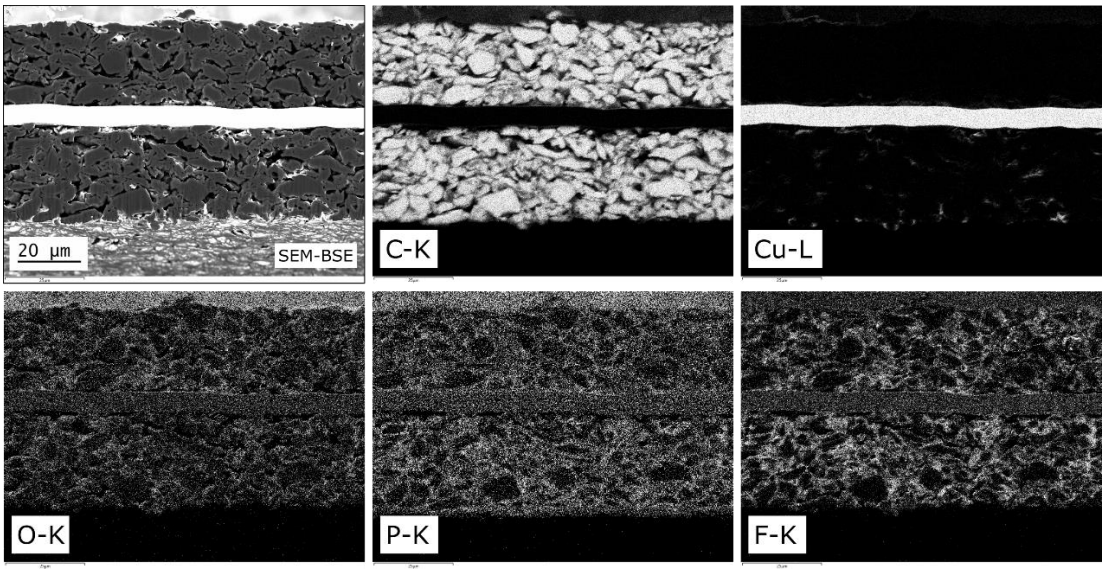


Abbildung 18: Rückstreuelektronenbilder (BSE) im REM und die zugehörigen EDX-Elementver-teilungsbilder eines Querschnitts von einer nicht zyklierten Anode. Die EDX-Elementverteilungsilder zeigen die Verteilung von Kohlenstoff, Kupfer, Sauerstoff, Fluor und Phosphor in der untersuchten Probenstelle.

b. Untersuchung von Anoden mit Li-Ablagerungen

Um eine mögliche Li-Abscheidung auf der Graphitanodenoberfläche zu untersuchen, wurden die gealterten Anodenproben mit 0% SOC und 100% SOC elektronenmikroskopisch untersucht. Nach der Demontage der Batteriezelle wurden die gealterten Elektrodenproben in einer Glovebox präpariert und dann unter Schutzgas in das Elektronenmikroskop transferiert. Hierzu wurde ein Probenhalter mit der Möglichkeit des Transportes unter Luftausschluss (sowohl REM als auch TEM) verwendet, um die Reaktion mit Umgebungsluft zu unterbinden. Abbildung 19 zeigt eine den speziellen Transferprobenhalter für die REM- und TEM-Untersuchung.

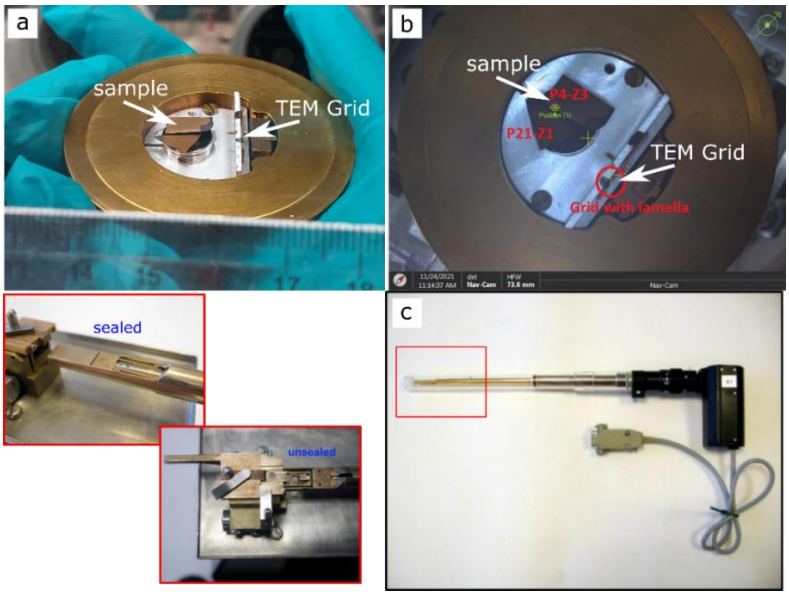


Abbildung 19: (a) Der Inertgas-Probenhalter für das Rasterelektronenmikroskop bei der Beladung in der Glovebox und (b) nach Einbringen in die Dual-Beam-FIB. (c) Der Inertgasprobenhalter für das Transmissionselektronenmikroskop mit geöffneter und geschlossener Probenkammer.

Die Probenvorbereitung für die REM-Untersuchung erfolgte durch Schneiden eines kleinen Stücks der Probe und Einlegen in den REM-Halter in der Glovebox (siehe Abbildung 19a). Die REM-Charakterisierung und die TEM-Probenvorbereitung mit einem fokussierten Ionenstrahl (FIB) wurden mit einem FEI Helios NanoLab 460F1 Dual-Beam-FIB durchgeführt. Die REM-Untersuchung erfolgte in dieser Anlage unter Verwendung eines FEG-REMs mit einer Beschleunigungsspannung von 5 kV, während die FIB-Bearbeitung bei 30 kV mit einer Gallium-Ionen-Quelle durchgeführt wurde. Nach der FIB-Probenpräparation wurde eine FIB-Lamelle in den Inertgastransfer-TEM-Halter in der Glovebox übertragen. Der versiegelte TEM-Halter mit der FIB-Probe im Inneren des Halters wurde dann für die Untersuchung in das TEM geladen.

Abbildung 20 zeigt zunächst Sekundärelektronen-(SE)-REM-Bilder der gealterten Anodenproben. Den REM-Ergebnissen zufolge weist die gealterte Probe mit 0 % SOC (Abbildung 20a und b) nur eine geringe Anzahl von Ablagerungen mit würfel- und stabförmigen Partikeln auf, die sich auf der Anodenoberfläche abgesetzt haben. Das REM-Bild mit höherer Vergrößerung (Abbildung 20b) zeigt eine kleine Anzahl von abgeschiedenen Partikeln, die sich auf der Graphitoberfläche ablagern. Bei der Anodenprobe, die bei 100 % SOC gealtert wurde, ist eine große Menge an Ablagerungen zu erkennen, die sich in Form von würfelförmigen und stäbchenförmigen Partikeln auf der Graphitoberfläche ablagern (siehe Abbildung 20c und d). Die würfelförmigen Partikel waren mit einer Partikelgröße von etwa 1 µm gleichmäßig auf der Oberfläche verteilt.

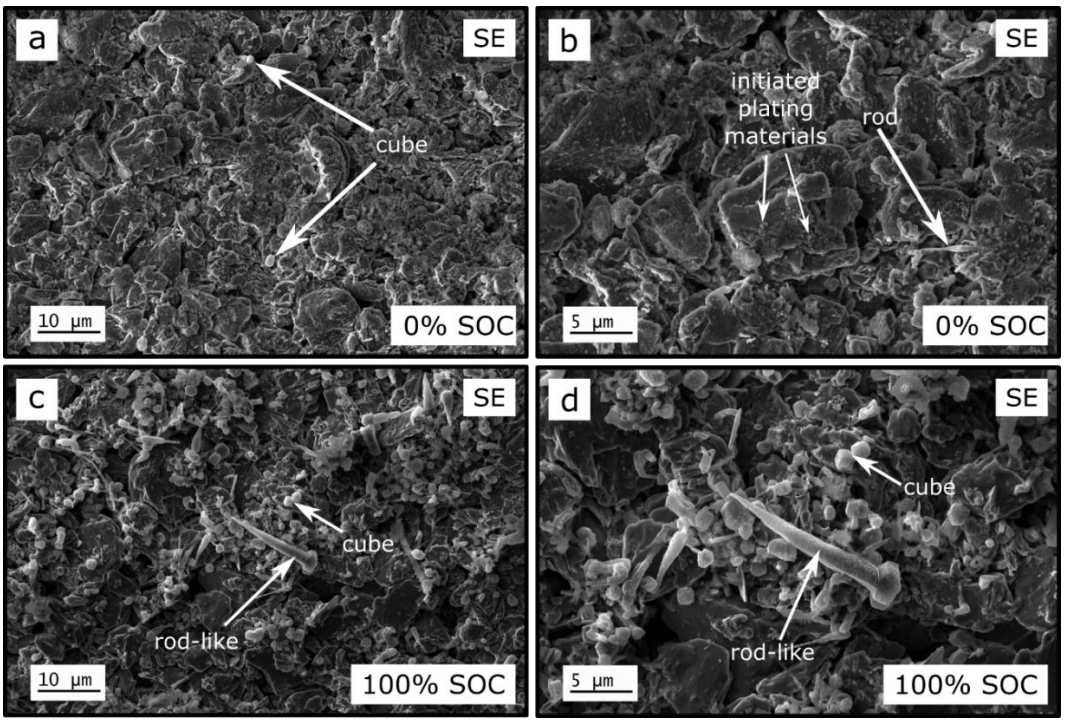


Abbildung 20: Sekundärelektronenbild (SE) im REM in Draufsicht (a,b) einer gealterten Anodenprobe mit 0% SOC sowie mit 100 % SOC (c,d) bei zwei unterschiedlichen Vergrößerungen.

Um die Eigenschaften der Ablagerungen auf der Graphitoberfläche genauer zu bestimmen, wurde die Probe (mit den Beschichtungsmaterialien) im TEM untersucht. Die Messung am FEI Tecnai F20 TEM mit FEG Elektronenquelle bei 200 kV Beschleunigungsspannung durchgeführt und die Bilder mit einer Digitalkamera (charge coupled device, CCD, Gatan UltraScan 1000P (2k x 2k)) sowie die Elektronenenergieverlustspektren (EELS) mit einem abbildenden Energiefilter Gatan GIF Tridiem 863P aufgenommen. Eine mit dem Zweistrahl-

FIB hergestellte FIB-Lamelle ist in Abbildung 6a dargestellt. Wie in dem REM-Bild aus der FIB-Zweistrahlverfahren zu erkennen ist besteht die FIB-Lamelle aus drei verschiedenen Komponenten, d. h. dem Graphitmaterial, den Beschichtungsmaterialien und einer Schutzschicht welche bei der FIB-Probenvorbereitung aufgetragen wurde. Die Bilder zeigen dass die Beschichtungsmaterialien auf der Graphitoberfläche (unterer Teil) abgeschieden wurden. Ein Teil der interessanten Probenstellen ging allerdings während des Probentransfers zum TEM-Halter aufgrund der Vibrationen in der Glovebox verloren. Trotzdem ließen sich in der FIB-Probe noch einige Ablagerungsmaterialien finden, die mit dem TEM untersucht und analysiert werden konnten.

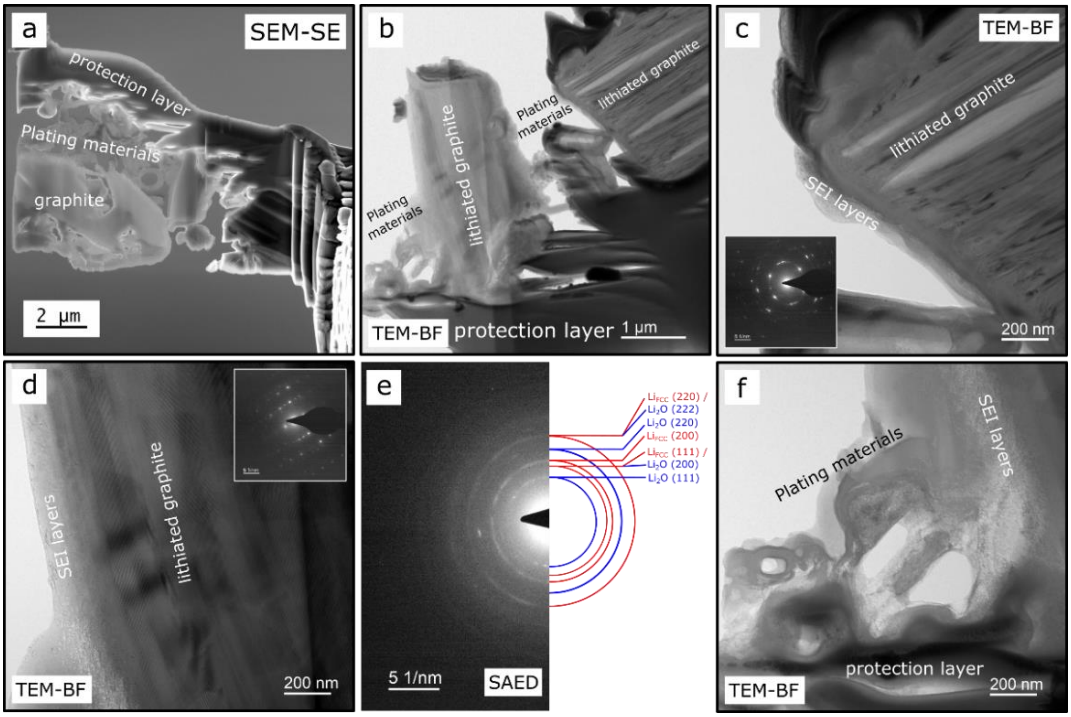


Abbildung 21: (a) REM-SE-Bild der FIB-Lamelle einer Probe mit Plating-Ablagerungen bei 100% SOC, welches die Graphit-Elektrode und die Plating-Bereiche zeigt. (b) Hellfeld-TEM-Bild der Probe mit Li-Ablagerungen bei 100% SOC. (c,d) TEM-Abbildungen des litiierten Graphits bei höheren Vergrößerungen und das zugehörige Beugungsbild. (e,f) Elektronenbeugungsbild und Hellfeldabbildung der Li-reichen Ablagerungen (Plating).

In Abbildung 21b ist ein Hellfeld-TEM-Bild der Ablagerungsmaterialien und des Graphits zu sehen. Abbildung 21c und d zeigen die Morphologie des Graphits (kleines Bild: SAED von Graphit), der von den SEI-Schichten auf der Oberfläche bedeckt wird. Mögliche Phasen der Komponenten des Beschichtungsmaterials wurden durch Elektronenbeugungsanalyse (SAED) identifiziert (Abbildung 21e) und die Phasen können einer kubischen Struktur von Lithiumoxid (CIF: 182026) und metallischem Lithium (CIF: 57408) zugeordnet werden. Darüber hinaus sind auf dem Hellfeld-TEM-Bild poröse und massive Ablagerungsmaterialien zu erkennen (Abbildung 21f).

Um die chemische Zusammensetzung der Ablagerungsmaterialien zu bestätigen, wurde TEM-EELS eingesetzt, mit dem auch leichte Elemente wie Lithium nachgewiesen werden können. Die TEM-EELS-Ergebnisse zeigen, dass Lithium im Graphit nachgewiesen werden kann, was darauf hindeutet, dass sich das Graphitmaterial im lithiierten Zustand befindet. Anschließend wurde ein Kohlenstoff-EEL-Spektrum aufgenommen, das ein typisches Kohlenstoff-EEL-

Spektrum des lithiumhaltigen Graphits zeigt. In den untersuchten Probenstellen konnte mit EELS kein Sauerstoffsignal im Bereich des lithiierten Graphits nachgewiesen werden.

In den Ablagerungen konnte ein deutliches Lithium-EELS-Signal mit einer anderen Spektrenform als beim Lithium aus dem Graphit aufgenommen werden. Ein Sauerstoff-EEL-Spektrum wurde im Beschichtungsbereich gefunden, welches auf die Bildung von Lithiumoxid hinweist. Auch Fluor wurde mittels EELS nachgewiesen, welcher wahrscheinlich aus der LiF-Phase der SEI-Schicht stammt. Ein typisches Kohlenstoffsignal aus einer amorphen oder Carbonatphase wurde ebenfalls durch EELS in der Probe nachgewiesen.

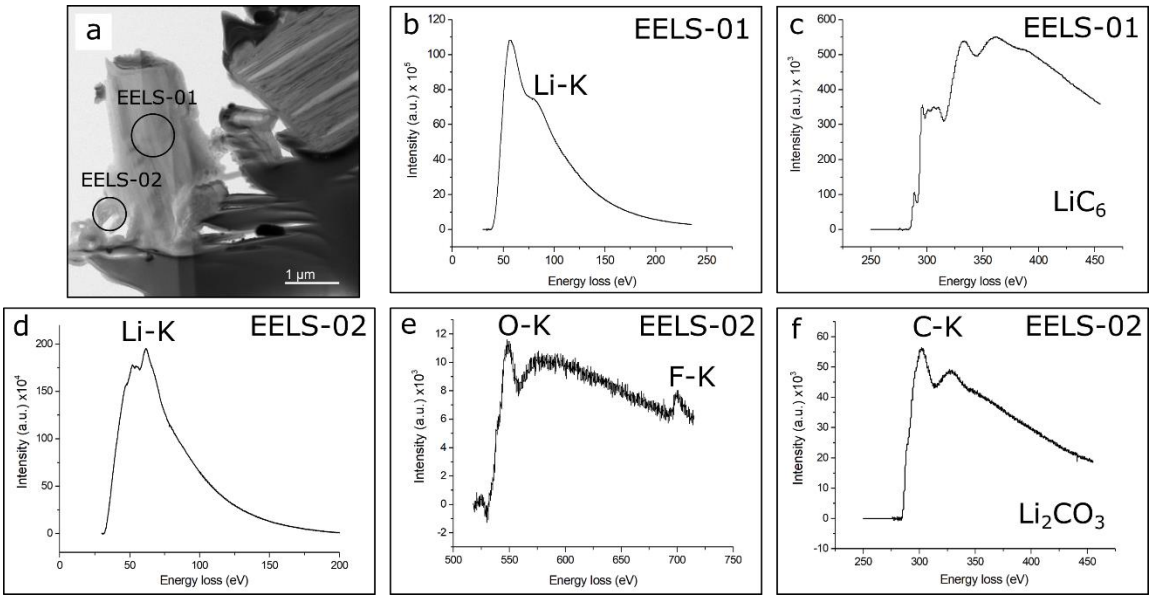


Abbildung 22: (a) Hellfeldabbildung der Probenstellen von welchen EELS-Spektren aufgenommen wurden. (b) EELS-Spektrum der Lithium-K-Kante und (c) der Kohlenstoff-K-Kante aus dem graphitisierten Bereich 01. (d) EELS-Spektrum der Lithium-K-Kante, (e) der Sauerstoff- und Fluor-Kante und (f) der Kohlenstoff-K-Kante aus dem Bereich 02.

AP4: ISEA: Zeitliche operando Detektion von Plating

	2021				2022				2023				2024			
	Q1	Q2	Q3	Q4	Q1	Q2	Q3	Q4	Q1	Q2	Q3	Q4	Q1	Q2		
AP 4: Zeitliche operando Detektion von Plating (IEK-9)																
UAP 4.1: operando Zellen betreiben																
UAP 4.2: Abgleich Ergebnisse AP2 und AP4																

Im **Projektjahr 2022** wurden erste Micro-CT operando Messungen an den ersten beiden Zelldesigns aus **AP1** durchgeführt (Abbildung 24) inklusive der Visualisierung von Lithium Plating. Während der Optimierung der beiden Designs im **Projektjahr 2023** entstand die Idee, die Vorteile der beiden etablierten Designs in einem völlig neuen Design zu kombinieren - der „Voll-PEEK Knopfzelle“, welche die Vorteile der beiden bisherigen Zellformate vereint (Abbildung 23).

Zu diesem Zweck wurde eine Knopfzelle konstruiert und anschließend mit einem

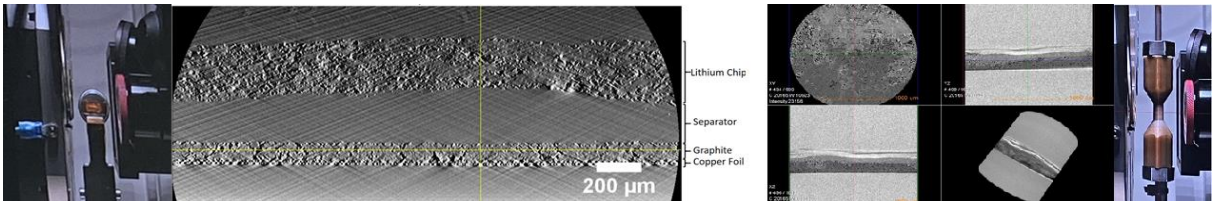


Abbildung 24: Micro CT Messungen an einer modifizierten Knopfzelle (links) und an der Swagelok-Typ Zelle (rechts)

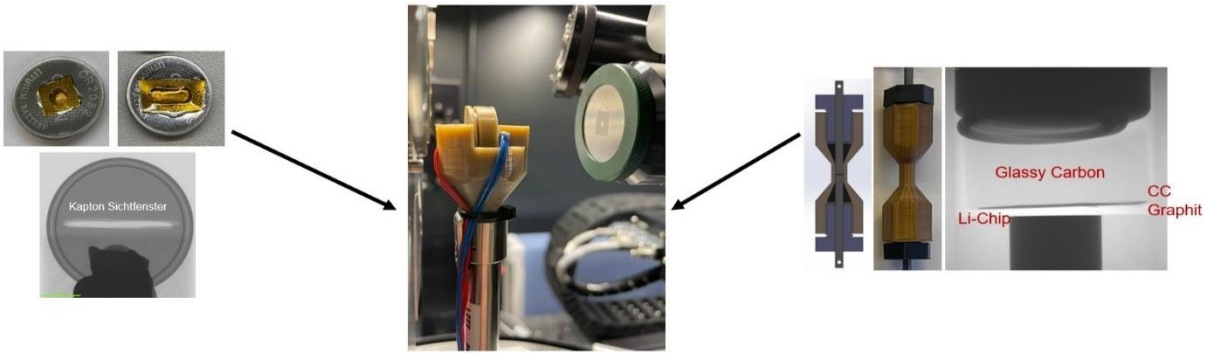


Abbildung 23: Voll-PEEK Knopfzelle: Das neue Design kombiniert die Vorteile der beiden vorangegangen operando Zellen

Hochtemperatur-3D-Drucker hergestellt, deren Gehäuse vollständig aus PEEK (Polyetheretherketon-Kunststoff) besteht (Abbildung 23). Die eingebaute Elektrode (wie auch die Lithium Referenzelektrode) hat einen Durchmesser von 16mm, der Separator ist ein 17mm Stanzling und somit entsprechen diese Komponenten dem Standard einer CR2032 Forschungsknopfzelle (→Verwendung der gleichen Werkzeuge). Zur optimalen Druckverteilung wurde ein halb/halb Edelstahl/PEEK Abstandshalter (eng. Spacer) angefertigt. Der Anpressdruck wird mittels Madenschraube auf das mittlere PEEK Gehäuse aufgebracht Zur Abdichtung der Gehäusehälften wird ein O-Ring eingesetzt. Ebenfalls auf mittlerer Zellenhöhe befindet sich eine elektrische Durchführung/Kontaktierung zum Anschluss an einen im CT befindlichen Batterie-Zyklierer. Wie in Abbildung 25 zu sehen ist, befindet sich das CT-Sichtfenster im oberen Drittel der Knopfzelle, sodass sich außer der Mikrometer dicken Stromableiterfolie der Elektroden (Kupfer oder Aluminium) kein Metall im Strahlengang des CTs befindet.

Erste elektrische Zykliertests der Voll-PEEK Knopfzelle lieferten vielversprechende und reproduzierbare elektrische Ergebnisse (Abbildung 7). So konnte beispielsweise die Ruhespannungskennlinie des Graphits mit hoher Genauigkeit bestimmt werden. Nach weiterer Optimierung der Voll-PEEK Zelle fanden operando Plating Versuche mit dem neuen Design statt. Abbildung 25 zeigt Mikro CT Aufnahmen einer doppelseitigen Graphit Anode vor und nach der Lithium Plating Ladung (von unten nach oben: Graphit, Kupferstromableiter, Graphit, Separator, Lithium). Nach der Lithium Plating Ladung (Messzelle im CT verbaut) zeigt die CT-Aufnahme eine neue Deckschicht auf der Graphitschicht (Lithium zugewandte Seite) mit einer Dicke von ca. 10-20 Mikrometern. Zum Nachweis des Lithium Platings wurde die Voll-PEEK-Zelle anschließend in einer Glovebox geöffnet und mittels Post-Mortem-Analysen (Flachbettscan und FIB-SEM) untersucht. Im Flachbettscan ist eine weißlich/silberne Ablagerung (im CT-Sichtfeldbereich der Elektrode) zu erkennen, die mittels FIB-SEM als ca. 15 Mikrometer dicke Ablagerung auf den Graphitpartikeln bestätigt werden konnte.

Damit konnten die initialen operando Ergebnisse aus den ersten Projektjahren mit den vielversprechenden Ergebnissen der Voll-PEEK Zelle weiter ausgebaut werden. Zum Projektende soll das CAD Zelldesign mit den Projektergebnissen in einer Publikation

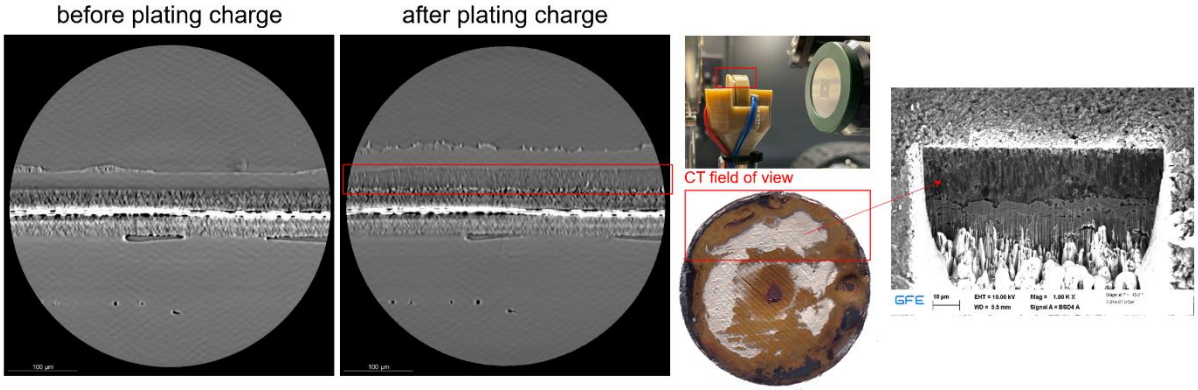


Abbildung 25: Ergebnisse der operando Mikro-CT Voll-PEEK Zelle. CT-Aufnahme vor und nach dem Plating inkl. anschließender Post-Mortem Validierung der Ergebnisse.

veröffentlicht werden (Arbeitstitel: *In Operando Characterizing Battery Electrodes via lab-scaled X-Ray Micro Computed Tomography. New PEEK Coin Cell Design for Metal Free Beam Path and Realistic Cyclic Conditions, (Ditler, Mikitisin et al.)*). Damit soll es anderen Forschenden ermöglicht werden, das neue operando Design zu evaluieren und weiter zu optimieren.

AP5: ISEA: Modelbildung

Für die Modellierung von Lithium Plating wurde die im Projekt ausgewählte Zelle im Labor charakterisiert. Diese ermittelten Daten werden anschließend verwendet, um die grundlegenden Parameter und damit die Eigenschaften der Zelle zu bestimmen. Im „P2D-Newman-Modell“ (physikalisch-chemisch basiertes Modell) wird die Zelle in ihre einzelnen

	2021				2022				2023				2024			
	Q1	Q2	Q3	Q4	Q1	Q2	Q3	Q4	Q1	Q2	Q3	Q4	Q1	Q2		
AP 5: Modellbildung (FHI)																
UAP 5.1: atomistische Modellierung																
UAP 5.2: P2D Newman Modell																
UAP 5.3: Modelle verknüpfen																
UAP 5.4: Modelle verifizieren																

Komponenten zerlegt und durch einzelne Blöcke modelliert. Durch diese Struktur ist es einerseits möglich, gleiche Komponenten zu gruppieren, um schnelle Simulationen

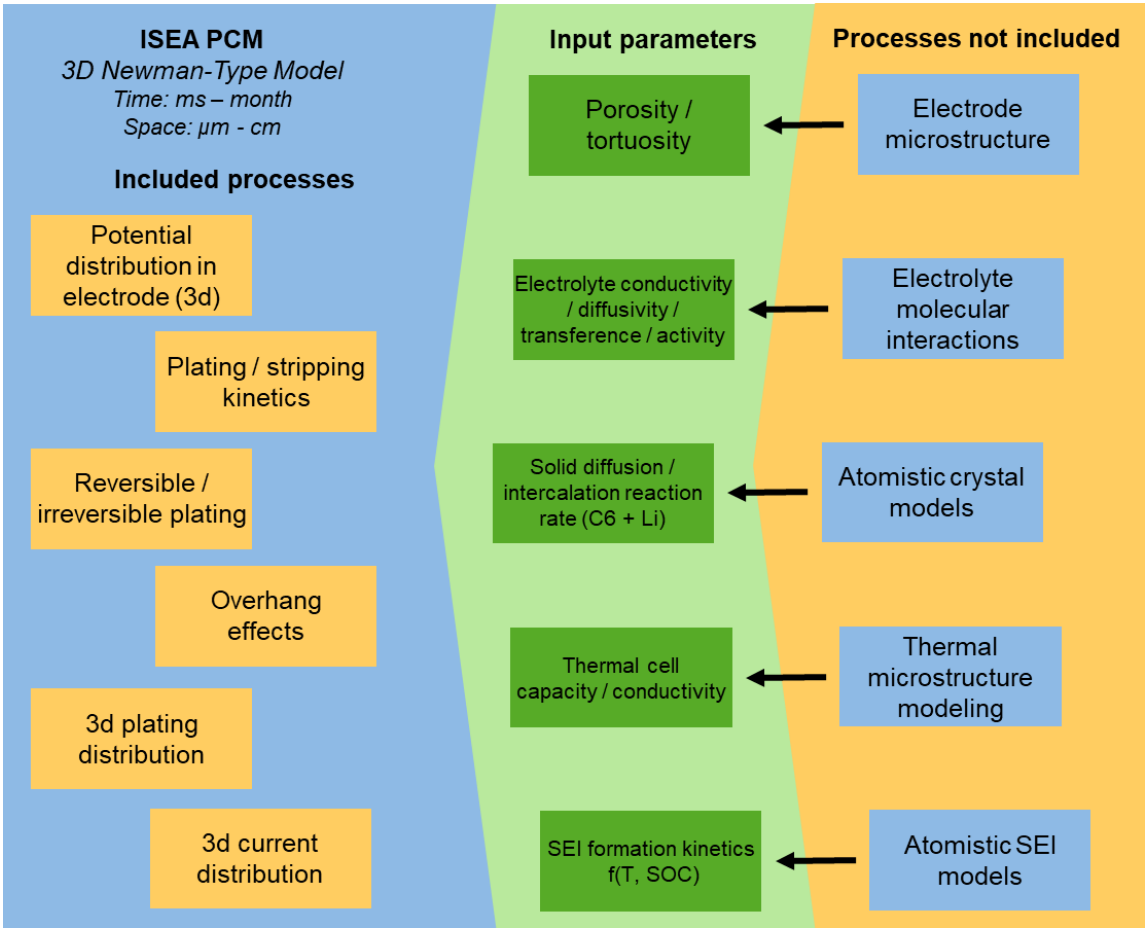


Abbildung 26: Eingangsparameter in das ISEA Modell mit Prozessen, die aus Modellen der Projektpartner unterstützt werden

durchführen zu können, andererseits können die Elemente an verschiedenen Positionen mit unterschiedlichen Parametern versehen werden, so dass z.B. die Interkalation von Lithium positionsabhängig verlangsamt werden kann.

Für die Modellierung wurde im ersten Schritt alle notwendigen Eingangsparameter ermittelt und zusammengestellt (siehe Abbildung 26). Die Übersicht zeigt ebenfalls die Schnittstellen zu den Modellen der Projektpartner. Durch die unterschiedlichen Skalen, der Modelle der Projektpartner in InOPlaBat und CharLiSiko sind Übergabeszenarien möglich und sinnvoll. Die PCM Modellierung verfolgt das Ziel, das Verhalten der Gesamtzelle in Echtzeit abzubilden. Hierfür sind sehr Rechenaufwendige Modellierungsschritte zu umgehen und durch vereinfachte Gleichungen abzubilden. Diese Gleichungen können aus den komplexen Modellen der Projektpartner abgeleitet werden. Um nach der Grundparametrisierung auch Lithium-Plating simulativ untersuchen zu können, wurde das bestehende physikalisch-chemische Modell (PCM) um einen Lithium-Plating-Modellierungsblock erweitert. Das PCM basiert auf der Theorie poröser Elektroden, so dass das Modell in der Lage ist, die unter bestimmten Betriebsbedingungen auftretenden Nebenreaktionen des Lithium Platings genau zu simulieren. Zu diesem Zweck wurden die folgende Annahmen getroffen: Die Lithiumabscheidung wächst als zylindrische Dendriten auf der Oberfläche der negativen Elektrode, hier Graphitpartikel, und die Dendriten vergrößern die Oberfläche dieser Partikel; das Lithium Plating wird in einen reversiblen und einen irreversiblen Anteil aufgeteilt, wobei

der reversible Anteil später im Prozess in wiederverwertbares Lithium umgewandelt wird und das irreversible Lithium den zyklisierbaren Anteil verbraucht, was zu einem Verlust an Batteriekapazität führt. Das Graphitpotential (vs. Lithiummetall: Li/Li^+) ist ein Schlüsselfaktor bei der Bestimmung, ob Lithium Plating stattgefunden hat. Fällt das Potential unter 0 V, findet Lithium Plating statt und metallisches Lithium scheidet sich auf der Anodenoberfläche ab. Steigt das Anodenpotential wieder über 0 V, wird das reversible Lithium Plating in wiederverwertbares Lithium umgewandelt, so dass dieses weiter zyklisiert werden kann. In diesem Zusammenhang wurde die Modellausgabe visualisiert, in welcher die Terminalspannung der Batterie jederzeit sowie wichtige interne Zustände verfolgt werden können, wie in der Abbildung 27 dargestellt.

Die genaue Parametrisierung des Modells ist ein wesentlicher Schritt, um ein genaues und zuverlässiges Modell zu erhalten. Zu diesem Zweck wurden dem PCM-Modell mehr als 30 Parameter zugewiesen die zum Teil aus Experimenten an der Projektzelle (elektrische AP2 und post-mortem Methoden AP3) und zum Teil aus Referenzwerten aus der Literatur stammen. Zu den post-mortem Methoden gehört die Zellöffnung der Batterie, um anschließend die qOCV-Halbzellkurven der Anode und Kathode mittels Knopfzellbau zu erhalten. Die Dicke der Elektroden und des Separators wurden mittels Mikrometerschraube, die Porenverteilung und die Tortuosität der Elektroden mittels Quecksilberporosimetrie, und der Innenwiderstand für den Ladungstransfer der Elektroden bei verschiedenen Temperaturen und SoCs wurde mittels elektrochemischer Impedanzspektroskopie (EIS) bestimmt. Allerdings konnten nicht alle Parameter auf experimentell gemessen oder aus der Literatur übernommen werden. Für

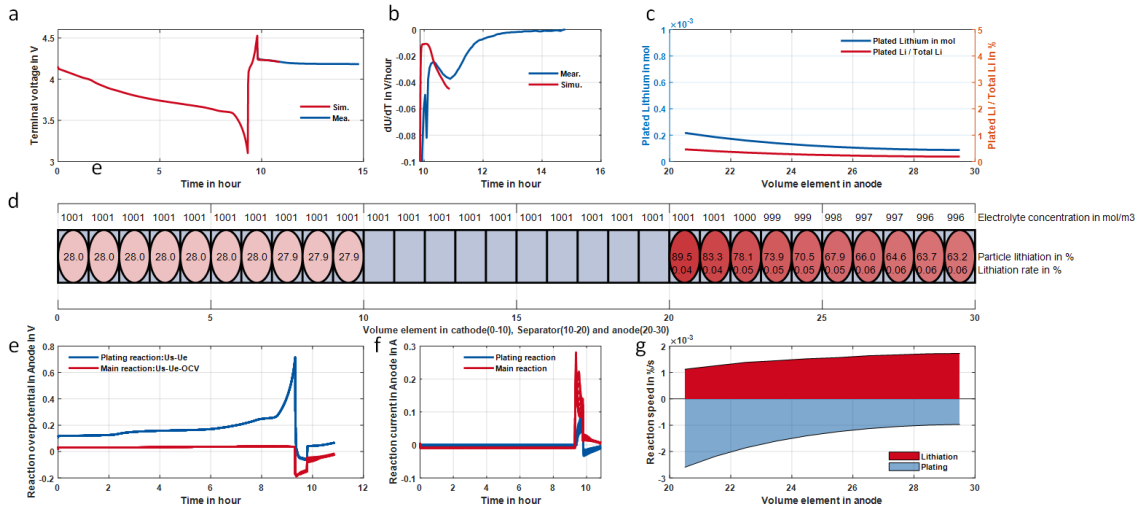


Abbildung 27: Visualisierung des physikalisch-chemischen Modells und der wichtigsten Simulationsergebnisse. (a) Terminal Spannung. (b) Differenzielle Spannungsanalyse DVA (c) Verteilung der molaren Menge an plattierten Lithiums auf der Anode. (d) Der Lithiierungsgrad der Partikel und Elektrolytkonzentration. (e) Überpotential der Haupt- und Nebenreaktionen an der Anode. (f) Reaktionsstrom der Haupt- und Nebenreaktionen an der Anode. (g) Lithiierungs- und Plattierungsraten.

die verbleibenden Parameter wurde eine datengetriebene Parameteridentifikationsmethode verwendet, um diese zu identifizieren. Die verbleibenden Parameter wurden anhand der Strom- und Spannungsdaten, die aus den Tests der Batterie unter verschiedenen Betriebsbedingungen in AP2 gewonnen wurden, in Kombination mit dem Cuckoo-Search-Algorithmus optimiert. Die Grenzwerte für diese Parameter wurden aus Literaturwerten entnommen, um sicherzustellen, dass sie eine reale physikalische Bedeutung haben. Zusätzlich wurde eine Sensitivitätsanalyse wichtiger Parameter in Bezug auf Lithium interkalation im Modell durchgeführt, um die Parameter zu identifizieren, die einen großen

Einfluss auf die Simulationsergebnisse haben, um den Prozess der Parameteridentifizierung zu optimieren.

Das parametrisierte Modell ist zum Projektende in der Lage, die Batteriespannung unter verschiedenen Betriebsbedingungen, ebenso wie interne Batteriezustände, wie z.B. Lithium Plating-Überspannung sowie die Entwicklung des Lithium Platings auf Zeit- und Raumskalen zu simulieren. Darüber hinaus wurde das Modell wurde bei unterschiedlichen Temperaturen validiert. Die Batterie wurde zunächst mit C/10 entladen, dann bei konstantem Strom mit verschiedenen Stromstärken sowie konstanter Kapazität Ladestrategie geladen und schließlich mit C/20 entladen oder relaxiert (Stripping- und Relaxierungsmessung). Abbildung 28 zeigt beispielhaft die simulierten Ergebnisse bei -15 °C. Wie in der Abbildung 28 (a) und (c) zu sehen ist, ist das erweiterte Modell in der Lage, die Batteriespannung nahe an der realen Messung zu simulieren. In AP2 wurde eine DVA-basierte Methode zur Erkennung von reversiblem Lithium Plating durchgeführt. Abbildung 28 (b) und (d) zeigen den Vergleich zwischen simulierter und gemessener DVA während der C/20 Stripping-Entladung. Es ist zu erkennen, dass das Modell in der Lage ist, die Position der DVA-Peaks bei verschiedenen Laderaten zu simulieren.

In Abbildung 29 (a) und (b) ist neben den detailliert dargestellten Ergebnissen bei -15°C der Vergleich zwischen Simulation und Messung bei weiteren Temperaturen und Laderaten dargestellt.

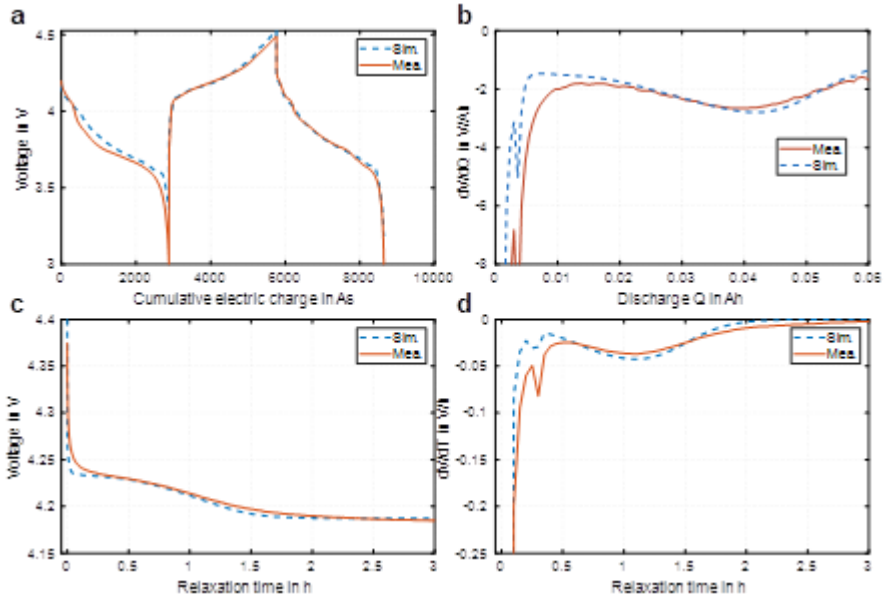


Abbildung 28: Vergleich von simulierten und gemessenen Batteriespannungen und DVA bei - 15 °C.

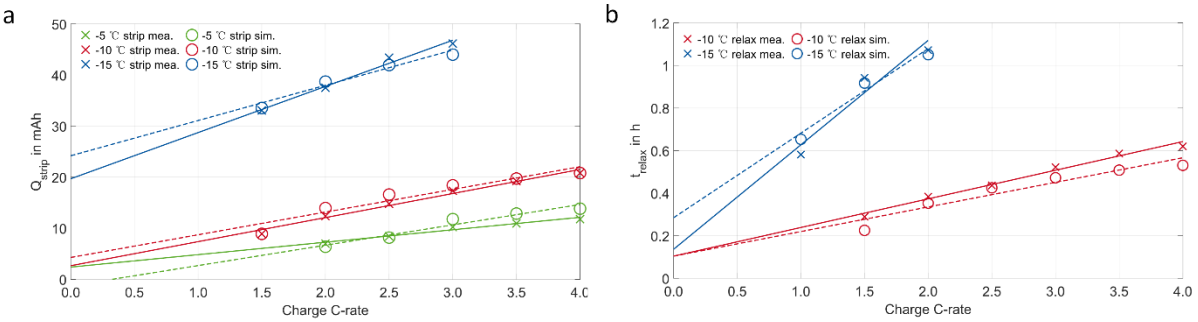


Abbildung 29: Vergleich von simulierten und gemessener (a) Stripping- und (b) Relaxierungsmessung bei verschiedenen Temperaturen.

AP0: Projektsteuerung und Datenmanagement

	2021				2022				2023				2024			
	Q1	Q2	Q3	Q4	Q1	Q2	Q3	Q4	Q1	Q2	Q3	Q4	Q1	Q2		
AP 0: Projektsteuerung und Datenmanagement (ISEA)																
UAP 0.1: Koordination																
UAP 0.2: Datenmanagement																
UAP 0.3: Dissemination																

Das Arbeitspaket 0 beinhaltet die Aufgaben der Projektkoordination, der Präsentation/Veröffentlichung der Ergebnisse und des Datenmanagements. Alle Unterarbeitspakete laufen über die gesamte Projektlaufzeit. Projekttreffen fanden alle 3-6 Monate mit allen Projektpartnern statt. Die Liste der bisherigen Veröffentlichungen ist diesem Bericht beigefügt. Als Plattform für den Datenaustausch diente eine in Sciebo eingerichtete Projektbox.

Beispiele für Projektvernetzungen im Projekt InOPlaBat waren die Nutzung des mechanischen Prüfstandsaufbaus aus dem Projekt BALd (Cluster: BattNutzung) oder die gemeinsame Methodenentwicklung zur Lithiumdetektion mit dem Projekt CharLiSiKo. Im Projekt Madam4Life wurden neuartige Methoden zur Detektion von Alterungszuständen entwickelt. In Zusammenarbeit mit diesem Projekt war es möglich weitere Zellen zu untersuchen, die durch verschiedene elektrische Tests gealtert wurden und bei denen Plating entstanden ist. Die geplateten Zellen konnten mit den in InOPlaBat gewonnenen Erkenntnissen untersucht und im weiteren Projektverlauf zur Validierung herangezogen werden. Nachdem Ende 2021 schon ein erstes Paper gemeinsam eingereicht wurde (*Spatially Resolving Lithium-Ion Battery Aging by Open-Hardware Scanning Acoustic Imaging, D. Wasylowski, N. Kisseler, H. Ditler et al.*), wurde 2023 ein weiteres Paper in Zusammenarbeit veröffentlich (*In situ tomography of lithium-ion battery cells enabled by scanning acoustic imaging, D. Wasylowski, S. Neubauer, M. Faber, H. Ditler et al.*). Im Jahr 2024 kam dann die dritte Veröffentlichung im Rahmen der Projektvernetzung mit Madam4Life hinzu, in welcher Lithium Plating operando während des Ladevorgangs visualisiert wird (*Operando Visualisation of Lithium Plating by Ultrasound Imaging of Battery Cells, D. Wasylowski, H. Ditler et al.).*

Die Vernetzungsaktivitäten zum AQua Projekt CharLiSiKo wurden während der gesamten Projektlaufzeit kontinuierlich ausgebaut. In mehreren Treffen und Workshops wurde sich über verschiedene an den einzelnen Instituten etablierten Methoden zur Plating-Detektion ausgetauscht. Nach ausgiebiger Diskussion haben sich die Partner dazu entschlossen, projektübergreifend eine Zelle zu platen und anschließend gegenseitig mit den zuvor diskutierten Methoden zu evaluieren (Stichwort: Round-Robin-Studie). Im Sommer 2022 wurde eine Zelle ausgewählt, die alle Anforderungen erfüllt (A123 26Ah NMC/Grahit Pouch Zelle). Die Analytik an der Zelle wurde von allen Partnern durchgeführt, die Ergebnisse für eine

Veröffentlichung zusammengetragen und nun muss auf den Review Prozess des Journals gewartet werden.

Neben den beiliegenden Publikationen erfolgte der Wissensaustausch auch über den AQua-Cluster Industrietag 2023 sowie Konferenzen (z.B. Kraftwerk Batterie 2021, 2022 und 2023) mittels diverser Posterbeiträge. Die Ergebnisse konnten ausgiebig mit dem entsprechenden Fachpublikum diskutiert werden und sollen nun wie im Bereich beschrieben in mehrere Paper-Publikationen überführt werden.

2. die wichtigsten Positionen des zahlenmäßigen Nachweises

Der zahlenmäßige Nachweis wird separat eingereicht.
Das Projekt wurde 6 Monate kostenneutral verlängert und die Mittel über den entsprechend neuen verlängerten Zeitraum verausgabt.

3. Notwendigkeit und Angemessenheit der geleisteten Projektarbeiten

Die geleistete Arbeit entspricht soweit möglich der Teilvorhabensbeschreibung. Die zu entwickelnden Methoden wurden bereits in der Projektplanungsphase definiert und im Projektverlauf entsprechend des wissenschaftlichen Fortschritts angepasst. Die in diesem Projekt entwickelten Methoden können in den folgenden Jahren neben der Anwendung hier im Projekt für den Verständnisgewinn im Bereich Lithium-Plating auf weitere Anwendungsfälle in der Forschung übertragen werden.

Die in situ-TEM-Messungen, die sich mit Kohlenstoffmaterialien befassen, verwenden amorphen Kohlenstoff, was eine große Lücke zu den realen Anwendungsszenarien darstellt, in denen graphitischer Kohlenstoff eine wichtigere Rolle spielt. Bisher ist uns noch keine wissenschaftliche Arbeit bekannt, die die Graphitisierung von amorphem Kohlenstoff auf Mikro- oder Nanoskala über eine nicht-thermische, d.h. vergleichsweise milde Methode untersucht. Daher ist es notwendig, die Graphitisierung zu erreichen. Die im Projekt durchgeführten Arbeiten zielen darauf ab, diese Lücke zu schließen, indem sie eine Methode zur Graphitisierung von Kohlenstoff unter milden Bedingungen entwickeln und optimieren. Dies trägt dazu bei, die Anwendungsmöglichkeiten von Kohlenstoffmaterialien in in situ-TEM-Messung Systemen und deren Einsatz in weiteren Messungen zu erweitern.

4. Voraussichtlicher Nutzen, insbesondere die Verwertbarkeit des Ergebnisses – auch konkrete Planungen für die nähere Zukunft – im Sinne des fortgeschriebenen Verwertungsplans

Die im Projekt gewonnenen Erkenntnisse werden in die Ausbildung des akademischen und technischen Nachwuchses einfließen, etwa durch Vorlesungen, Seminare und Labore. Die im Projekt ausgebildeten Doktoranden werden als bedeutende Kompetenzträger zukünftig als Multiplikatoren zur ökonomischen Wertschöpfung im Batteriemarkt beitragen und den Wissenschafts- und Industriestandort Deutschland stärken. Durch das Vorhaben erhöhen alle Projektpartner ihre Fachkompetenz und sind in der Lage, a) an zukünftigen öffentlich geförderten sowie industriellen F&E-Projekten auf nationaler und internationaler Ebene mitzuwirken, b) langfristig zur internationalen Wettbewerbsfähigkeit des Standorts Deutschland beizutragen und c) eine breite Basis für die Entwicklung von Batteriezellen und verbundenen Anwendungsmärkten zu schaffen.

Die gewonnenen Erkenntnisse über die Bestrahlung zur Graphitisierung und die Optimierung des Durchflussmodus für in situ-TEM-Studien bieten wertvolle Daten zur Verbesserung von Elektrodenmaterialien für Batterien und andere elektrochemische

Anwendungen. Die Graphitisierung von amorphem Kohlenstoff verbessert die Materialeigenschaften für elektrochemische Anwendungen und schließt die Lücke zwischen in situ-TEM-Messungen und realen Anwendungsszenarien. Geplant ist eine intensivere Elektronenbestrahlung über größere Flächen, um die Graphitisierung weiter zu optimieren.

Besonders hervorzuheben ist die entwickelte Methodik im Bereich der elektrischen Platingdetektion, die nun im Rahmen von Industriekooperationen auch als Erkenntnisgewinn geteilt werden sollen, um die Innovationskraft der deutschen Batterieindustrie weiter zu stärken. Zusätzlich sollen im Anschluss an dieses Projekt noch weitere Publikationen veröffentlicht werden, um das Wissen mit der Wissenschaftscommunity zu teilen.

5. während der Durchführung des Vorhabens dem Zuwendungsempfänger bekannt gewordenen Fortschritt auf dem Gebiet des Vorhabens bei anderen Stellen

Während der Projektlaufzeit sind keine Studien entsprechend der im Projekt durchgeführten Arbeiten zur Graphitisierung von amorphem Kohlenstoff bzw. Elektrodenentwicklung bekannt geworden. Nach Beendigung des Projekts ist eine Publikation [1] erscheinen, die sich mit der Dendritenbildung und deren Auflösung an einer Glaskohlenstoffelektrode in einer *in situ*-TEM-Zelle beschäftigt. Die Elekrodenanordnung entspricht einer Kombination aus einer ringförmiger Gegenelektrode und stabförmigen Arbeits- und Referenzelektroden. Die während des Ladevorgangs gebildeten Dendriten lösen sich im Entladevorgang nur unvollständig auf und hinterlassen zum Teil „tote“ Li-Inseln. In der Ausbildung, Morphologie und im Auflöseprozess spielt das Surface Electrolyte Interface (SEI) eine wesentliche Rolle.

[1] Walid Dachraoui, Ruben-Simon Kühnel, Corsin Battaglia, Rolf Erni, *Nucleation, growth and dissolution of Li metal dendrites and the formation of dead Li in Li-ion batteries investigated by operando electrochemical liquid cell scanning transmission electron microscopy*, Nano Energy, Volume 130, 2024, 110086 https://doi.org/10.1016/j.nanoen.2024.110086

6. die erfolgten oder geplanten Veröffentlichungen des Ergebnisses nach Nr. 5 der NKBF/NABF

- Presentation:
  Kraftwerk Batterie 2021, Effects of cell use on anode overhang, C. Rahe et al.
- Journal Article:
  Spatially Resolving Lithium-Ion Battery Aging by Open-Hardware Scanning Acoustic Imaging, D. Wasylowski, N. Kisseler, H. Ditler et al. https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2021.230825
- Journal Article:
  Accessing Structural, Electronic, Transport and Mesoscale Properties of Li-GICs via a Complete DFTB Model with Machine-Learned Repulsion Potential, S. Anniés, C. Panosetti, M. Voronenko, D. Mauth, C. Rahe, and C. Scheurer https://doi.org/10.3390/ma14216633
- Poster:
  Kraftwerk Batterie 2022, Electrical detection of lithium plating markers in lithium-ion batteries, H. Ditler et al.

- Presentation: Advanced Electrode Design with Homogenous Electric Field Distribution to Study the Electrochemical Li Deposition on Carbon Electrodes by Means of In Situ TEM" – Xin Wei
- Journal Article:
  D. Wasylowski, S. Neubauer, M. Faber, H. Ditler, … "In situ tomography of lithium-ion battery cells enabled by scanning acoustic imaging", JPS, 2023,
  https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2023.233295
- Poster: Kraftwerk Batterie 2023
  - H.Ditler: Multiscale identification and validation of lithium plating in lithium-ion batteries via post-mortem analyses
  - C.Rahe: Determination of the size of the anode overhang as quality control
  - J. Sordon: Analysis of Phenomena on the Anode Overhang
- Presentation:
  Xin Wei: Advanced Electrode Design with Homogenous Electric Field Distribution to Study the Electrochemical Li Deposition on Carbon Electrodes by Means of In Situ TEM
- Journal Article:
  Xin Wei, Michael Noyong, Ulrich Simon, Advanced electrode design enables homogeneous electric field distribution for metal deposition studies via in situ liquid cell TEM, iScience, Volume 27, Issue 11, 2024, 111119, DOI: 10.1016/j.isci.2024.111119

- High-Energy and -Power Density Li-ion Battery Materials Characterisation by Electron Microscopy, Fadli Rohman, Dissertation, RWTH Aachen University

In Arbeit:

- Manuskript IAC: "Optimized electron irradiation techniques for enhanced graphitization of amorphous carbon for in-situ TEM studies," vorgesehen für die Einreichung in *Nanoscale*
- *Lithium Plating in Commercial Lithium-Ion Cells: An Extensive Study Combining Electrical Methods with Post-Mortem Analysis* (Ditler et al.). -> under Review
- *Kooperationsstudie CharLiSiko / InOPlaBat -> under Review*
- Arbeitstitel: *In Operando Characterizing Battery Electrodes via lab-scaled X-Ray Micro Computed Tomography. New PEEK Coin Cell Design for Metal Free Beam Path and Realistic Cyclic Conditions, (Ditler, Mikitisin et al.)*

Kurzbericht zum Förderprojekt
im BMBF Rahmenprogramm „Vom Material zur Innovation“
und im BMBF-Dachkonzept Batterieforschung

Vorhabenbezeichnung:	
InOPlaBat - In situ und Operando Plating Detektion in Batterien	
Zuwendungsempfänger:	**Förderkennzeichen**
RWTH Aachen	03XP0352A
Projektleiter & -mitarbeiter	**Berichtszeitraum**
(bei mehreren Instituten bitte Zugehörigkeit angeben)	01.01.2021-30.06.2024
Projektkoordinator: Prof. Dr. D. U. Sauer	
Dr.-Ing. Christiane Rahe (ISEA)	

1. Ursprüngliche Aufgabenstellung /Projektziele

Ziel von InOPlaBat ist die räumlich und zeitlich aufgelöste Erkennung von Lithium-Plating (Anlagerung von metallischem Lithium) in Lithium-Ionen-Batterien. Lithium-Plating ist gerade bei Schnellladevorgängen von Elektrofahrzeugen ein sicherheitskritisches Phänomen, welches auf der Anode durch die limitierte Aufnahmefähigkeit von Lithium-Ionen in gewünschter Geschwindigkeit hervorgerufen wird. Um die Lebensdauer und Sicherheit von Batterien für alle Anforderungsprofile zu optimieren, ist es zentral, die Bildung von metallischem Lithium und Dendriten frühzeitig zu erfassen. Reversibles sowie irreversibles Plating kann mit der Ausbildung von Dendriten einhergehen und zu sicherheitskritischen Kurzschlüssen führen. Irreversibles Plating führt zusätzlich zu einem deutlichen Kapazitätsverlust durch Verlust von zyklisierbarem Lithium.
Um die Struktur von Elektrodenmaterialien und ihre Veränderungen, insbesondere das Plating von Lithium auf der Anode während des Ladens, skalenübergreifend von nanometer- bis zentimeter-Dimensionen zu erfassen, sollen im Projekt verschiedene optische, elektronenmikroskopische (FIB, REM und TEM) und röntgenographische (mikro-CT, nano-CT) Verfahren in Kombination mit spektroskopische Verfahren (NMR, EPR, EIS) eingesetzt werden. Aufbauend auf Erkenntnissen aus Post-Mortem- Untersuchungen sollen für die jeweiligen Methoden geeignete in situ/operando Versuchseinrichtungen aufgebaut werden, um die Lade-/Entladeprozesse direkt in einer Batteriezelle unter Betriebsbedingungen zu untersuchen. Damit soll es möglich werden, Plating-Prozesse hochauflösend in der Zelle in situ zu analysieren und dadurch strukturelle Änderungen mit spektroskopisch detektierten dynamischen Prozessen zu korrelieren.

Zum Verständnis der ablaufenden Prozesse, wie auch deren grundlegenden Ursachen, werden die Messungen eng mit gekoppelten atomistischen Simulationen und makroskopischer Modellierung verknüpft. Dabei ist ein bidirektionaler Informationsfluss zentral, denn ein vertieftes physikalisches Verständnis kann nur erreicht werden durch erfolgreiche multiskalige Simulation

der ablaufenden Prozesse, während experimentelle Daten die Grundlage zur Formulierung, Parametrisierung und Validierung der Simulationssysteme liefern. Die Modellierung auf makroskopischer Ebene bietet anschließend einen Transferpfad hin zu kommerziellen Zellen und stellt eine direkte Umsetzbarkeit der Resultate in industriellen Anwendungen sicher.
Die somit gewonnenen Erkenntnisse sollen sowohl eine schnelle als auch präzise Rückmeldungen über die Auswirkung von Prozess- und Materialveränderungen in der Zellproduktion ermöglichen. Zudem wird durch
die Weiterentwicklung elektrischer Tests eine stichprobenartige günstige Untersuchung von Zellen ermöglicht. Die Nachhaltigkeit der so entwickelten und produzierten Zellen wird hierdurch verbessert, da die Zelllebensdauer erhöht und die Sicherheitsrisiken und somit mögliche Eindämmungsmaßnahmen im Batteriepack reduziert werden können.

2. Ablauf des Vorhabens

Die Plating-Detektion wurde auf verschiedenen Größenskalen durchgeführt. Parallel wurden kommerzielle Zellen getestet und mit Hilfe von verschiedenen elektrischen Ladeverfahren unterschiedliche Platingmuster erzeugt, die im Anschluss im Labor untersucht wurden.

Parallel dazu wurden Laborzellen entwickelt, die auf unterschiedlichen Größenskalen es ermöglichten die Lithiumabscheidung zu untersuchen.

Ausgehend von kommerziellen Zellen wurden deren Feldverteilungen untersucht und ein eigenes Design mithilfe von COMSOL-Simulationen erstellt. Auf Basis dieses Designs wurde ein Hersteller mit der Produktion beauftragt. Die Wirksamkeit des eigenen Designs mit nahezu homogener Feldverteilung wurde durch in situ-TEM-Tests validiert. Das Elektrodenmaterial (Kohlenstoff) wurde parallel untersucht und festgestellt, dass der graphitische Anteil sehr gering ist. Um diesen zu erhöhen, wurde verschiedene Möglichkeiten getestet.

Zum Abschluss wurden die Erkenntnisse für die Lithiumabscheidung im Newman-basierten-Modell implementiert und zur Validierung hinzugezogen.

3. Wesentliche Ergebnisse und Zusammenarbeit

Es konnte ein elektrisches Verfahren zur quantitativen Bestimmung der reversiblen Platingmenge entwickelt werden. Die Validierung konnte mit Hilfe des Batteriemodels durchgeführt werden. In der Zusammenarbeit mit dem FHI war es möglich genauere Parameter für das P2D-Modell zu ermitteln und zu nutzen.

Eine *operando* CT-Zelle aus PEEK wurde entwickelt und getestet. Durch die Zusammenarbeit mit der GFE war es möglich iterativ Aufnahmen mit dem CT in den jeweiligen Entwicklungsschritten der CT-Zelle durchzuführen. Die CT Zelle kann nun für weitere Forschungsfragen genutzt werden.

Eine neue Elektrodenkonfiguration für in situ-TEM-Messungen konnte erstellt in Betrieb genommen werden. An Modellreaktionen konnte die elektrochemische Abscheidung von Metallen an den Elektrodenrändern *in situ* im TEM verfolgt und mit den elektrochemischen Vorgängen korreliert werden. Bei der Umwandlung von amorphem Kohlenstoff mittels Elektronenstrahl konnte der graphitische Anteil erhöht werden. Die Ergebnisse wurden in den regelmäßigen Treffen ausgetauscht.

Darüberhinausgehend wurde mit weiteren Clusterprojekten aus dem Cluster BattNutzung und AQua kooperiert, um effizienter gemeinsame Forschungsergebnisse zu erzeugen und auf vorhandenes Wissen zurückgreifen zu können.