

Kurzbericht des KIT als Partner im BMBF Verbundprojekt ForeCast

Aufgabenstellung und Zielsetzung

Im Verbundprojekt ForeCast wurde die simultane Zweilagenschichtung im Schlitzgussverfahren für die Anwendung in strukturierten Lithium-Ionen-Batterieelektroden untersucht. Im Konsortium wurden umfangreiche Kampagnen für anwendungsnahe Tests zur Prozessstabilität im Pilotmaßstab und an realen Batteriezellen vom Konsortialpartner BASF SE realisiert. Die Arbeitsgruppe Thin Film Technology (TFT) vom Karlsruher Institut für Technologie (KIT) führte systematische Studien zur Prozessstabilität durch, um generisches Prozesswissen für die simultane Zweilagenschichtung von nicht-newtonschen Fluiden zu erarbeiten. Die Zusammenarbeit im Konsortium war auf die Optimierung der elektrochemischen und mechanischen Eigenschaften der Batterieelektroden ausgerichtet, sodass die Formulierungs- und Materialkompetenz der BASF SE mit dem Prozessverständnis und der experimentellen Möglichkeiten der TFT synergetisch zusammengeführt werden konnte. Unter Einhaltung der Stabilitätsgrenzen sollte das Optimierungspotential der Elektrodeneigenschaften geprüft werden, beispielsweise durch die Nutzung von adhäsionssteigernden Primerlagen. Die Arbeiten der TFT im Projekt zielten darauf ab, eine generalisierte Herangehensweise auszuarbeiten, die eine Vorhersage der Stabilität des Schlitzgussprozesses für ein gegebenes Materialsystem bis hin zur industriellen Produktionsumgebung erlaubt und dabei leicht zugängliche Materialeigenschaften und Prozessparameter als Eingangsgrößen verwendet.

Ablauf des Vorhabens

Die Arbeiten der TFT im Projekt ForeCast beziehen sich auf das Arbeitspaket 2 (Übertragung des Formulierungsmodells auf das Prozessfenster), welches sich weiter in die Modellentwicklung und die Validierung der Mehrlagenschichtung als Unterarbeitspakete aufteilt. Für die Berechnung kamen verschiedene analytische und numerische Verfahren zum Einsatz, die in ihrem Detailgrad und ihrem Rechenaufwand an die Anforderungen der Fragestellungen angepasst wurden. Die experimentelle Validierung fand grundsätzlich mit Modellstoffsystemen statt, deren rheologischen und grenzflächenbezogenen Eigenschaften gezielt zur Untersuchung einer spezifischen Fragestellung eingestellt wurden. Damit konnten sowohl newtonsche als auch nicht-newtonsche Fluide hergestellt werden. Die Erkenntnisse aus den experimentellen und simulativen Untersuchungen wurden in Form einer zweiten Validierungsstufe auf Realstoffsysteme übertragen. Im Verlauf des Projekts fand eine direkte, kontinuierliche Verwertung in den Formulierungs- und Applikationstests beim Projektpartner BASF SE statt und führte so zu einer Optimierung des Prozessdesigns im Pilotmaßstab.

Wesentliche Ergebnisse

Die Projektergebnisse haben gezeigt, dass die Stabilität der Zweilagenschichtung maßgeblich durch die Größenordnung und das Verhältnis der rheologischen Eigenschaften, der Grenzflächeneigenschaften und der Nassfilmhöhen der einzelnen Lagen bestimmt ist. Die Größenordnungen und Verhältnisse der Materialeigenschaften können in realen mehrlagigen Batterieelektroden aufgrund des signifikanten Einflusses auf die Stabilität der Beschichtung dazu führen, dass ein gewünschtes Materialsystem nicht ohne weitere Maßnahmen bei den geforderten Prozessparametern beschichtet werden kann. Die Trends der Einflüsse der Verhältnisse der

rheologischen Eigenschaften können unter grundlegender Bestätigung durch Erkenntnisse von newtonschen Medien formuliert werden:

- Die Erhöhung der Viskosität in der oberen Lage relativ zur unteren erlaubt eine Beschichtung von dünneren Gesamtschichtdicken bei konstanter Düsenposition, schmälert jedoch den stabilen Betriebsbereich.
- Die Erhöhung der Schichtdicke in der unteren Lage relativ zur oberen hat einen vergleichbaren Einfluss auf die Beschichtung (erlaubt dünnere Gesamtschichtdicken bei konstanter Düsenposition und schmälert den stabilen Betriebsbereich), ist im Vergleich zum Viskositätsverhältnis hingegen weniger stark ausgeprägt.
- Eine Mindestdicke der unteren Schicht ist notwendig, um eine Durchmischung der Lagen als Folge eines auftretenden Wirbels in der Flüssigkeitsbrücke zu vermeiden.
- Die stabilitätsrelevanten Größen (Grenzen für den stabilen Beschichtungsbereich, die Mindestdicke zur Vermeidung von Durchmischung, etc.) sind abhängig von den Materialeigenschaften, deren Gradienten und den Prozessparametern und müssen spezifisch für die Düsenlippengeometrie, Materialkonfiguration und die vorliegenden Prozessparameter ermittelt und/oder vorhergesagt werden.
- Einfache prädiktive, meist iterative Berechnungsmodelle für newtonsche Systeme bilden den Einfluss des Viskositätsverhältnisses in guter Übereinstimmung mit empirischen Daten ab. Für große Abweichungen in den Schichthöhen relativ zueinander steigt die Diskrepanz zwischen Simulation und Experiment.
- Die Berechnung der Geschwindigkeitsfelder einer Mehrlagenbeschichtung mit scherverdünnenden Fluiden stellt aufgrund der stark ausgeprägten Nichtlinearität eine Herausforderung an die numerische Stabilität dar.
- Gekoppelte eindimensionale Ansätze zur numerischen Berechnung sind für moderate Grade an scherverdünnendem Verhalten gut geeignet, um die Grenzen der Stabilität vorherzusagen. Die Diskrepanz zwischen Simulation und Experiment ist über einen weiten Bereich an Viskositäts- und Schichthöhenverhältnissen gering.

Abschlussbericht im BMBF-Rahmenprogramm

„Batterie 2020 Transfer“

Vorhabensbezeichnung: Formulierungs- und Coating-Modell für simultan zweilagig-strukturierte Lithium-Ionen-Batterieschichten – ForeCast	
Zuwendungsempfänger: Karlsruher Institut für Technologie (KIT)	Förderkennzeichen 03XP0402B
Projektleiter: Prof. Dr.-Ing. Wilhelm Schabel	Berichtszeitraum 01.06.2021 - 31.03.2024
	Bewilligungszeitraum 01.06.2021 - 31.03.2024

I. Eingehende Darstellung

I.1 Verwendung der Zuwendung und des erzielten Ergebnisses im Einzelnen (Ergebnisdarstellung) mit Gegenüberstellung der vorgegebenen Ziele

Das Projekt ForeCast verfolgte das Arbeitsziel, die simultane Zweilagigenbeschichtung für Batterieelektroden zu etablieren, welche eine Vielzahl von Optimierungen des Prozesses (Durchsatz, Kosten- und Energieeffizienz, etc.) und der Elektrodeneigenschaften (elektrochemische Performance, Lebensdauer, mechanische Eigenschaften) ermöglicht. Aufgrund der komplexen rheologischen Eigenschaften der mehrlagigen Strömungen während der Beschichtung sind ein detailliertes Prozessverständnis und ein hohes Maß an Formulierungs- und Materialkompetenz erforderlich. Im Projekt war die Aufgabe der Arbeitsgruppe Thin Film Technology (TFT) am Karlsruher Institut für Technologie (KIT) das Prozesswissen anhand von experimentellen und simulativen Studien zu vertiefen und in ein Vorhersagemodell zu transferieren. Diese Erkenntnisse wurden direkt in die Formulierungsmodelle der BASF SE integriert. Anschließend wurden reale mehrlagige Elektroden im Pilotmaßstab beschichtet, in Batteriezellen verbaut und charakterisiert.

Das Gesamtprojekt bestand aus drei Arbeitspaketen, wobei TFT für das Arbeitspaket 2 (Übertragung des Formulierungsmodells auf das Prozessfenster) zuständig war. In den vier Unterarbeitspaketen (UAP) wurde schrittweise auf das Projektziel hingearbeitet, wobei zuerst eine Modellbildung stattfand, die anschließend in ein Simulationsmodell überführt wurde. Die experimentellen Validierungsexperimente wurden kontinuierlich vorgenommen, um die Diskrepanz der numerischen Vorhersagen von den realen Ergebnissen einzuordnen.

UAP 2.1: Modellbildung zur Berechnung von Stabilitätsgrenzen

Für die Vorhersage von Prozessfenstern für den Schlitzgussprozess kommen üblicherweise analytische Modelle zum Einsatz, welche die Druckverluste im Beschichtungsspalt koppeln. Die Druckniveaus im Beschichtungsspalt können aus Abbildung 1 entnommen werden.

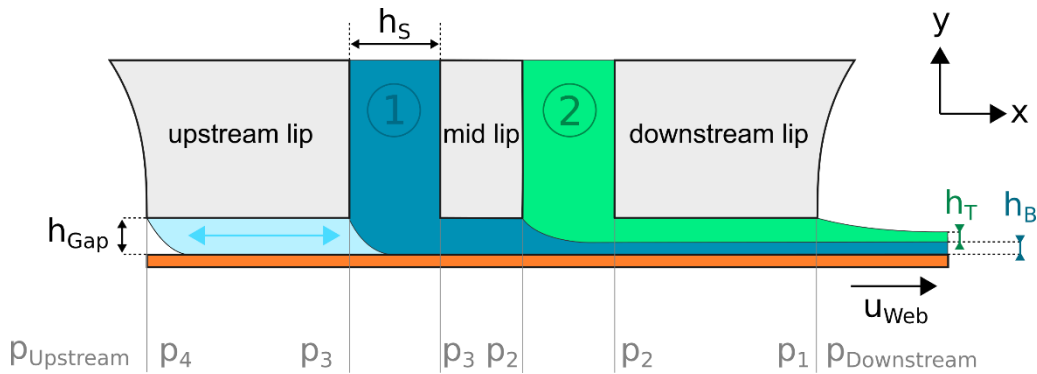


Abbildung 1: Schematische Seitenansicht des Beschichtungspalts einer Zweilagendüse in der Seitenansicht mit zugehörigen Druckniveaus.

Einerseits tritt an den Grenzflächen zwischen Flüssigkeit und Gas ein Krümmungsdruck auf, welcher mit Hilfe der Laplace-Gleichung berechnet wird [1–3]. Für den Krümmungsdruck am Meniskus auf stromabwärts gerichteter Seite wird üblicherweise ein halbempirischer Zusammenhang nach Ruschak verwendet [4]. Die strömungsinduzierten Druckverluste unter den Düsenlippen ergeben sich aus den vereinfachten, eindimensionalen Transportgleichungen für den Impuls nach Navier-Stokes.

$$\frac{d}{dy} \left(\eta(u, y) \frac{du}{dy^2} \right) = \frac{dP}{dx} \quad (1)$$

Da Batteriepasten ein strukturviskoses Verhalten aufweisen, ist die Viskosität eine Funktion des Geschwindigkeitsgradienten und damit von der Ortskoordinate y im Beschichtungspalt. Tsuda entwickelte ein Modell für Einzellagenbeschichtungen, für das eine analytische Lösung der Transportgleichung unter Berücksichtigung der strukturviskosen Eigenschaften mit Hilfe des Power-Law-Ansatzes nach Ostwald de Waele [5] möglich ist [3]. Diese Berechnungsmethode wurde auf Multilagenbeschichtungen übertragen [1], wobei die Gültigkeit auf Materialkombinationen beschränkt ist, die dieselben Stoffeigenschaften aufweisen. Für diesen Fall wurden die Modelle von Schmitt et al. [1] und Diehm et al. [6] validiert.

Zur Strukturoptimierung werden Multilagen verwendet, um durch gezielt eingestellte Gradienten beispielsweise Eigenschaften von mehreren Materialien oder für verschiedene Zusammensetzungen der Komponenten in einer Elektrode zu vereinen. Für solche strukturoptimierte Elektroden ist eine Vorhersage der Prozessfenster für einen Mehrlagenauftrag mittels Schlitzgussverfahren nicht möglich. Daraus wird deutlich, dass für die praxisrelevante Vorhersage Prozessfenster mit unterschiedlichen Stoffeigenschaften in den einzelnen Lagen berechenbar sein müssen.

Eine wichtige Größe zur Beschreibung von solchen Mehrlagenbeschichtungen ist das Verhältnis der Viskosität der einzelnen Lagen:

$$m_\eta = \frac{\eta_2}{\eta_1} \quad (2)$$

Viskositätsverhältnisse $m_\eta < 1$ bedeuten, dass die obere Lage eine niedrigere Viskosität aufweist als die untere Lage. In einem ersten Schritt wird angenommen, dass die Viskosität nicht von der Scherrate abhängig ist (newtonsche Fluide). Für Batteriepasten, die ein strukturviskoses Verhalten aufweisen, muss die Komplexität des Modells um die Scherratenabhängigkeit erweitert werden.

Zunächst wurden experimentelle Untersuchungen zur Beschichtungsstabilität für Viskositätsverhältnisse $m_\eta < 1$ durchgeführt. In einer Studie wurden verschiedene Bindergehalte in den Batteriepasten eingestellt und die minimalen Nassfilmhöhen ermittelt, wie in Abbildung 2 in Abhängigkeit der Beschichtungsgeschwindigkeit dargestellt.

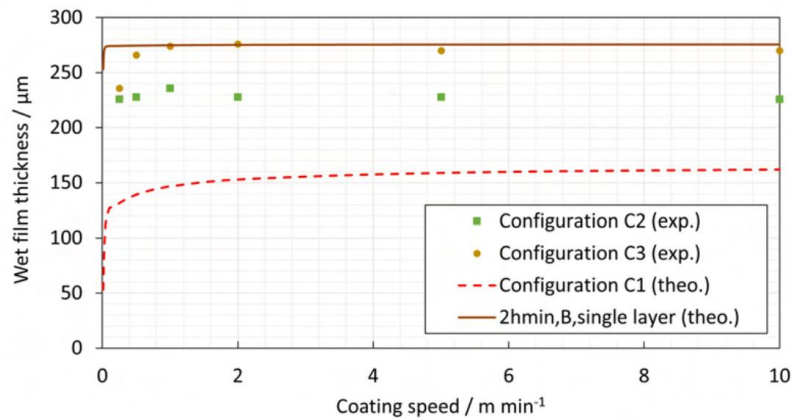


Abbildung 2: Minimale Nassfilmhöhen für die Schichtkonfigurationen C1 ($m_\eta = 1$), C2 ($m_\eta \approx 0,5$) und C3 ($m_\eta \approx 0,2$).

Es zeigt sich, dass die minimale Nassfilmhöhe in Abhängigkeit der Beschichtungsgeschwindigkeit für abnehmende Viskositätsverhältnisse von C1 zu C3 ansteigt. Für das kleinste hier betrachtete Viskositätsverhältnis liegt die minimale Nassfilmhöhe aufgrund des Schichthöhenverhältnisses von 1 auf dem Niveau der doppelten minimalen Nassfilmhöhe für eine Einzellschicht. Daraus ist eine steigende Dominanz der unteren Lage bzw. eine Abnahme des Einflusses der oberen Lage ableitbar. Diese Grenzfallbetrachtung ist jedoch nur für $m_\eta \ll 1$ gültig. Damit ist außerdem keine Aussage über Mehrlagenkonfigurationen mit höheren Viskositäten in den oberen Lagen möglich, da in diesem Fall keine einlagige Berechnung des Prozessfensters möglich ist, weil die obere Lage auf der unteren aufliegt. Für eine realistische Vorhersage der Prozessfenster ist es also notwendig, die Geschwindigkeitsprofile im Spalt zwischen den Düsenlippen und dem bewegten Substrat zu ermitteln, daraus die Druckverluste durch die Strömung zu berechnen und anschließend zu koppeln.

Für die Berechnung der Geschwindigkeitsfelder ist die Lösung der Differenzialgleichung (1) notwendig. Im Fall von newtonschen Fluiden ist die Viskosität ein konstanter Zahlenwert und es ergibt sich eine gewöhnliche Differenzialgleichung zweiter Ordnung, für die eine analytische Lösung formulierbar ist. Unter der Downstream-Lippe gilt neben der Haftbedingung an den Wänden und am Substrat zusätzlich die Randbedingung einer konstanten Schubspannung (Impulsübertragung) und Geschwindigkeit (Kontinuität) an der Phasengrenze. Die Geschwindigkeitsfelder lassen sich zur Berechnung des Volumenstroms über die Spalthöhe integrieren und schließlich kann der Druckverlust und damit die gesamte Druckbilanz über den Spalt iterativ berechnet werden [7].

Für scherverdünnende Fluide ist die Viskosität eine Funktion der Scherrate und damit ist Gleichung (1) nicht durch analytische Methoden lösbar. Wird die Viskosität beispielsweise durch den Power-Law-Ansatz beschrieben, ergibt sich der folgende Ausdruck:

$$\frac{dP}{dx} = \frac{d}{dy} \left(\eta(u, y) \frac{du}{dy} \right) = \kappa \left(\frac{du}{dy} \right)^{\epsilon-1} \frac{d^2u}{dy^2} + (\epsilon - 1) \kappa \left(\frac{du}{dy} \right)^{\epsilon-2} \frac{du}{dy} \quad (3)$$

Diese nichtlineare Differenzialgleichung bedarf einer numerischen Lösung, beispielsweise durch räumliches Diskretisieren oder durch eine Shooting-Methode. Aufgrund der Steifheit des Problems wird das Verfahren der finiten Differenzen gewählt und auf einem Gitter mit variabler Zellweite angewendet. Für das Modell soll die Möglichkeit bestehen, verschiedene Viskositätsmodelle auszuwählen, um eine möglichst realistische Abbildung der rheologischen Eigenschaften der Beschichtungsfluide zu gewährleisten. Neben der numerischen Lösung der Differenzialgleichung wird nachfolgend auch eine numerische Integration des Geschwindigkeitsfelds durchgeführt, woraus der Volumenstrom und damit die Nassfilmhöhe zugänglich wird. Dabei ergeben sich folgende Randbedingungen:

$$\text{Haftbedingung am Substrat:} \quad u(y = 0) = u_{Web} \quad (4)$$

$$\text{Haftbedingung an der Düsenlippe:} \quad u(y = 0) = 0 \quad (5)$$

$$\text{Konstante Schubspannung an der Phasengrenze:} \quad \tau_1 = \eta_1 \left(\frac{du}{dy} \right)_1 = \eta_2 \left(\frac{du}{dy} \right)_2 = \tau_2 \Big|_{y=y_{Ph}} \quad (6)$$

$$\text{Kontinuität an der Phasengrenze:} \quad u_1 = u_2 \Big|_{y=y_{Ph}} \quad (7)$$

$$\text{Position der Phasengrenze:} \quad y_{Ph} = h_{Wet, Bottom} \quad (8)$$

Die Umsetzung der Berechnungsmodelle findet in AP 2.2 mit Hilfe von Parameterstudien für projektrelevante Formulierungen statt. Dabei werden die Grenzen in der Adaption der rheologischen Eigenschaften durch die Ergebnisse aus den Formulierungsarbeiten des Projektpartners einbezogen. Ein Vergleich der Ergebnisse für newtonsche und scherverdünnende Medien ermöglicht zusätzlich eine isolierte Betrachtung des Einflusses der rheologischen Eigenschaften. Die im AP 2.1 vorgesehene Modellbildung ist bei Betrachtung der erklärten Methoden und Herangehensweisen als erfüllt und abgeschlossen anzusehen.

UAP 2.2: Vorhersage der Prozessfenster

Auswahl der numerischen Methode

Für die Vorhersage der Prozessfenster wird das Modell aus UAP 2.1 in eine numerische Berechnung überführt. Zuerst ist unabhängig vom weiteren Vorgehen eine Berechnungsmethodik auszuwählen, welche sich für den geplanten Einsatz am besten eignet. Da es sich im vorliegenden Modell mathematisch gesehen um ein Randwertproblem für eine nichtlineare, inhomogene Differenzialgleichung zweiter Ordnung handelt, bietet sich zum Beispiel die Shooting Methode an. Dabei werden ein Anfangs- und Randwert für das Geschwindigkeitsfeld vorgegeben und die Jacobi-Matrix am Rand geschätzt. Durch die bekannte Randbedingung ergibt sich ein Residuum, welches sich durch eine systematische Neuwahl der Jacobi-Matrix minimieren lässt. Diese Methode wurde in diesem Projekt erfolgreich implementiert, ist aber relativ langsam im Vergleich zu den weiter unten erklärten numerischen Methoden und wird daher im weiteren Verlauf nicht mehr betrachtet. Darüber hinaus ist eine Nutzung von CFD möglich, zum Beispiel die Software OpenFOAM mit dem Solver multiphaseInterFoam. Aufgrund der geringen geometrischen Abmaße (10^{-6} m) und des hohen Druckverlusts (10^8 Pa m^{-1}) ist die mathematische Problemstellung sehr steif, weshalb

vollumfängliche, zeitlich aufgelöste CFD-Simulationen für die Vorhersage des Prozessfensters schon durch den zeitlichen Aufwand ausscheiden. Zur detaillierteren strömungsmechanischen Untersuchung wird derzeit trotzdem ein solches Modell entwickelt.

Eine Alternative ist die Finite-Differenzen-Methode. Das Geschwindigkeitsfeld lässt sich einfach auf einem äquidistanten Gitter diskretisieren, wie in Abbildung 3 schematisch dargestellt.

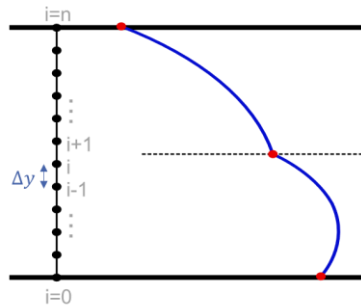


Abbildung 3: Diskretisierung des Geschwindigkeitsfelds auf einem äquidistanten Gitter mit Randbedingungen bei $i=0$, $i=n$ und $i=i$.

Üblicherweise werden die Gradienten in der Finite-Differenzen-Methode durch Taylorreihen approximiert. Das Modell wird dann ausgedrückt durch

$$\eta^i \left(\frac{u^{i+1} + u^{i-1} - 2u^i}{\Delta y^2} \right) = \frac{dP}{dx} \quad (1)$$

mit der Viskosität nach dem Power-Law-Ansatz nach Ostwald/de Waele

$$\eta^i = \epsilon \kappa \left(\frac{u^{i+1} - u^i}{\Delta y} \right)^{\epsilon-1} \quad (2)$$

womit sich folgendes Gleichungssystem ergibt

$$\kappa \left[\begin{pmatrix} -1 & 1 & 0 & \dots & \dots & 0 \\ 0 & -1 & 1 & 0 & \dots & 0 \\ 0 & \dots & \dots & \dots & \dots & 0 \\ 0 & \dots & \dots & \dots & -1 & 1 \end{pmatrix} \vec{u} \right]^{\epsilon-1} \begin{pmatrix} 1 & -2 & 1 & 0 & \dots & 0 \\ 0 & 1 & -2 & 1 & \dots & 0 \\ 0 & \dots & \dots & \dots & \dots & 0 \\ 0 & \dots & \dots & 1 & -2 & 1 \end{pmatrix} \vec{u} = \vec{b} \quad (3)$$

wobei \vec{b} die notwendigen Start- und Randbedingungen enthält. Das Geschwindigkeitsfeld nach der Finite-Differenzen-Methode lässt sich auf dem diskreten Ortsvektor \vec{y} durch die Gleichungen (1)-(3) berechnen.

Überführung des Modells in Quellcode

Das numerische Vorgehen zur Berechnung der Prozessfenster ist anhand von Abbildung 4 nachvollziehbar.

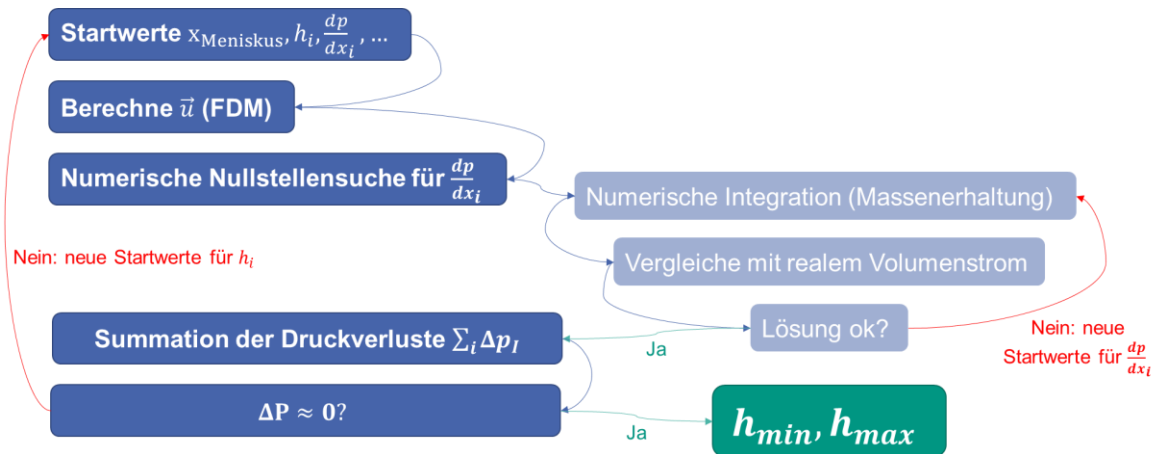


Abbildung 4: Schematische Darstellung der numerischen Vorgehensweise zur Berechnung des Prozessfensters.

Zuerst werden Startwerte für die Nassfilmhöhe, das Geschwindigkeitsfeld und den Druckverlust geschätzt. Die Meniskusposition wird vorgegeben, um das Limit zu steuern, das berechnet wird. In Kombination mit den Fluideigenschaften kann mit der Finite-Differenzen-Methode ein Geschwindigkeitsfeld errechnet werden. Um die Abweichung des Schätzwerts für den Druckverlust vom realen Wert zu minimieren, wird für jedes Geschwindigkeitsfeld eine numerische Integration durchgeführt, um auf Validität in Bezug auf die Massenerhaltung am Upstream, in der Mitte oder am Downstream zu prüfen. Wenn die Genauigkeitsgrenze unterschritten wird, wird die innere Schleife verlassen und die Druckbilanz wird gelöst. Wenn die Druckdifferenz in der Genauigkeitstoleranz zur gewünschten Größe liegt, wird die Nassfilmhöhe ausgegeben. Falls nicht, wird systematisch ein neuer Startwert für die Nassfilmhöhe ausgewählt.

Aus dieser Implementierung geht hervor, dass die Stabilität des Upstreammeniskus' in diesem Fall über die Beschichtungsstabilität entscheidet. An der unteren Grenze wird Air Entrainment und an der oberen Grenze Swelling berücksichtigt. Daraus ergeben sich auch die Anfangswerte für die Nassfilmhöhen, wobei eine Näherung aus den Berechnungen der Einzellagen herangezogen wird (Air Entrainment bei halber Spalthöhe, Swelling bei einfacher Spalthöhe).

Optimierung der Effizienz des Quellcodes

Als Maßstab für die Bewertung der Effizienz des Quellcodes werden die Genauigkeit, die Stabilität und die Rechenzeit herangezogen. Zuerst werden verschiedene Lösungsverfahren verglichen. Dazu wurden die python-Module *scipy.optimize* und *gekko* herangezogen und für verschiedene Eigenschaften der Fluide verglichen. Die dominierende Größe ist dabei der Grad der Scherverdünnung, den das Beschichtungsfluid aufweist. Dies lässt sich im Powerlaw-Gesetz (Gleichung (2)) mit dem Parameter ϵ beschreiben. Während für $\epsilon = 1$ ein newtonsches Fluid vorliegt, steigt der Grad der Scherverdünnung für $\epsilon \rightarrow 0$ und damit auch der Einfluss der Nichtlinearität. Die berechneten Geschwindigkeitsprofile für beispielhafte Fluideigenschaften sind in Abbildung 5 dargestellt.

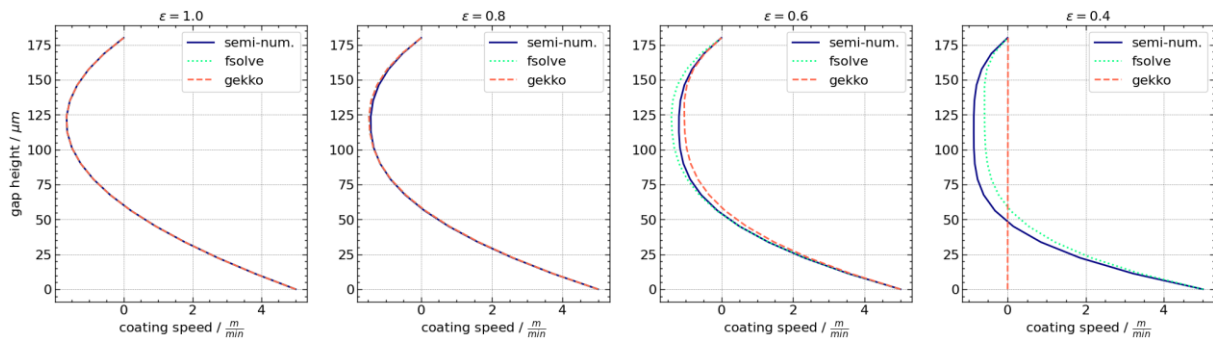


Abbildung 5: Geschwindigkeitsprofile verschiedener Lösungsverfahren im Vergleich zur semi-numerischen Lösungsmethode bei verschiedenen rheologischen Eigenschaften.

Als Basis zum Vergleich wird die semi-numerische Methode aufgeführt, wobei das Geschwindigkeitsfeld für scherverdünnende Einzellagen durch numerisch bestimmte Integrationskonstanten in der analytischen Form der Differentialgleichungen zugänglich ist. Für $\epsilon \rightarrow 0$ wird deutlich, dass nur `scipy.fsolve` in der Lage ist, das Geschwindigkeitsprofil annähernd abzubilden, während `gekko.solve`, `scipy.root` und `scipy.minimize` keine Lösung finden. Zudem benötigte `scipy.fsolve` hier um den Faktor 10-20 weniger Zeit als `solve.gekko`. Die Genauigkeit ist mit einem relativen Residuum in Bezug auf den Druckverlust unter der Downstream-Lippe mit 0,1 % als ausreichend einzustufen.

Weiterhin gilt es abzuschätzen, wie hoch die Anforderungen an die Genauigkeiten der Berechnung sind. Die Schwellwerte gehen konkret als Abbruchkriterien in den Berechnungsschleifen mit ein. Um eine Unabhängigkeit der Prozessparameter zu gewährleisten, wurde als Abbruchkriterium eine Genauigkeit von 10^{-6} m, bzw. der daraus resultierende Druckverlust, gesetzt.

Rechnerische Validierung des Modells

Für die generelle Funktionsprüfung kommen zwei Stufen der rechnerischen Validierung in Frage. Zuerst werden analytische Berechnungsmodelle für Sonderfälle herangezogen und die Ergebnisse mit dem numerischen Modell verglichen, was in diesem Fall einem newtonschen Beschichtungsfluid entspricht. In beiden Fällen werden die Geschwindigkeitsprofile für verschiedene Fluide und Multilagenkonfigurationen berechnet und verglichen, wie in Abbildung 6 dargestellt. Daraus ergeben sich die aufgeführten Viskositätsverhältnisse der oberen zur unteren Lage m_η .

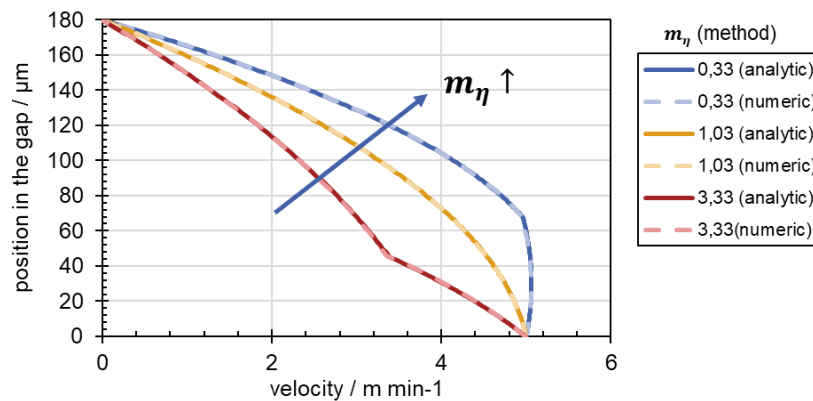


Abbildung 6: Simulierte Geschwindigkeitsprofile für verschiedene Konfigurationen von newtonschen Fluiden in Multilagen.

Die Ergebnisse der analytischen Berechnung stimmen mit der numerischen Methode in allen Fällen überein. Zudem geht aus Abbildung 5 hervor, dass auch der Einfluss der scherverdünnenden Eigenschaften abgedeckt ist. Somit lässt sich die Funktion des Quellcodes für die Berechnung des Geschwindigkeitsfelds auf rechnerischer Ebene als validiert ansehen.

Anschließend werden die Prozessgrenzen verglichen, die sich aus der Integration der Geschwindigkeitsfelder im Upstream-, Downstream- und im Mittenbereich ergeben. An dieser Stelle werden ebenfalls die newtonschen Ersatzsysteme verwendet, um eine analytische Vergleichsbasis zu erhalten. Die Prozessgrenzen im Bereich $\frac{1}{5} < m_\eta < 5$ sind in Abbildung 7 dargestellt. Auch hier zeigt sich eine Übereinstimmung der analytischen und numerischen Berechnungsmethode.

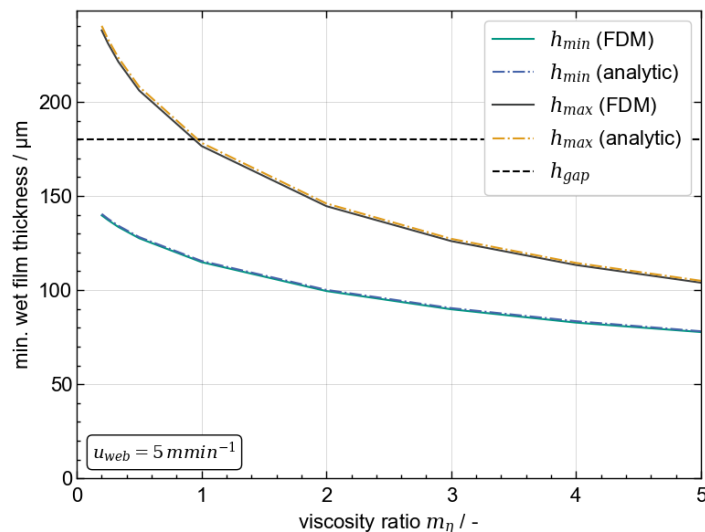


Abbildung 7: Prozessgrenzen in Abhängigkeit des Viskositätsverhältnisses für newtonsche Fluide im Vergleich zwischen analytischen und numerischen Berechnungen.

Schließlich können die numerischen Prozessgrenzen mit den experimentellen Beobachtungen abgeglichen werden. Für die Reduktion der Komplexität ist in Abbildung 8 die minimale Nassfilmdicke in Abhängigkeit des Viskositätsverhältnisses aufgetragen, wobei ein scherverdünnendes Ersatzsystem verwendet wurde, welches aus einer CMC-Wasser-Lösung besteht.

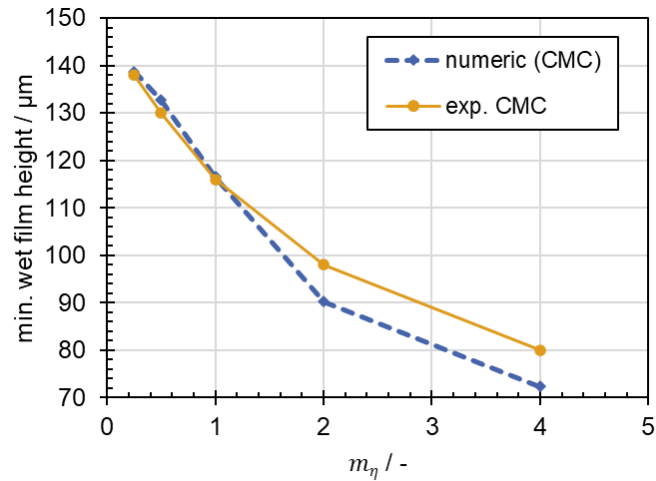


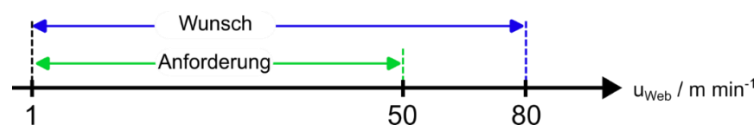
Abbildung 8: Minimale Nassfilmhöhe in Abhängigkeit des Viskositätsverhältnisses. Vergleich zwischen numerischer Berechnung und experimentellen Daten für CMC-Wasser-Lösungen.

Die Übereinstimmung ist insbesondere im Bereich $\frac{1}{4} < m_\eta < 1$ sehr gut. Für die Bereiche $1 < m_\eta < 4$ sind die Abweichungen zwischen Simulation und experimentellen Daten größer, aber immer noch kleiner als $10 \mu\text{m}$, was vermutlich auf eine veränderte Einbauposition der Schlitzdüse zurückzuführen ist, da diese Versuchsreihen im zeitlichen Versatz stattfanden.

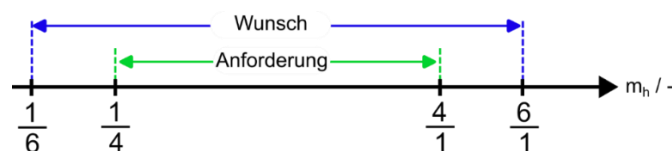
UAP 2.3: Entwicklung und Anschaffung eines mehrlagigen Schlitzdüsenmoduls

Im ersten Schritt wurden im UAP 2.3 die Anforderungen zusammengetragen, die das Schlitzdüsenmodul erfüllen soll. Dies betrifft in erster Linie die geforderten Prozessparameter und rheologischen Daten der Fluide. Es wurden jeweils ein Anforderungsbereich, den die Düse sicher erfüllen soll, und ein Wunschbereich festgelegt.

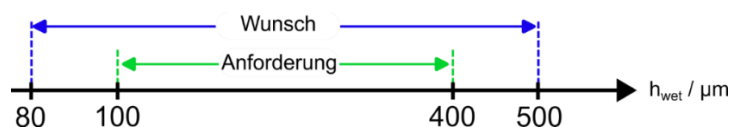
Für die Prozessparameter ist zuerst die Geschwindigkeit entscheidend, wobei die obere Grenze dem Stand der Technik angepasst werden soll:



Für die Berechnung der Volumenströme ist zudem das Schichthöhenverhältnis notwendig, wobei beide Richtungen abgedeckt werden sollen:



Schließlich wird die Nassfilmhöhe spezifiziert, für die die Prozessparameter einstellbar sein sollen:



Daraus lassen sich die Volumenströme errechnen, welche unter Berücksichtigung der Rheologie in einen Druckverlust und damit in eine optimale Düsengeometrie überführt werden können. Die rheologischen Daten wurden hier so gewählt, dass die hier im Projekt betrachteten Stoffsysteme abgedeckt werden. Abbildung 9 zeigt die Viskosität in Abhängigkeit der Scherrate für das Realstoffsystem mit erhöhtem Binderanteil (maximale Viskosität) und ein Ersatzstoffsystem auf CMC-Wasser-Basis (minimale Viskosität).

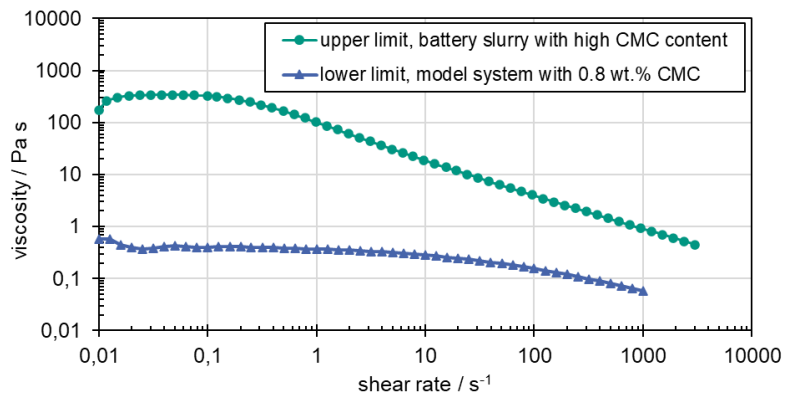


Abbildung 9: Rheologie der Beschichtungsfluide für die Auslegung der zweilagigen Schlitzdüsengeometrie.

Für die Düse wurde ein U-Design gewählt. Seitenbacken sind generell vorteilhaft für die Spannungsverteilung im Schlitzdüsenbau, jedoch hat das U-Design im vorliegenden Fall den entscheidenden Vorteil, dass eine kleine Kompensation an Ungenauigkeiten der Fertigung möglich ist. Die Backen werden daher nicht nur an der Hinterseite, sondern ebenfalls vorne an den Seiten verschraubt. Der Keil als mittlere Backe fungiert im vorliegenden Design als zentrales Bauteil, in das die äußeren Backen eingeschraubt werden. Eine zugehörige Explosionsansicht ist in Abbildung 10 gezeigt.

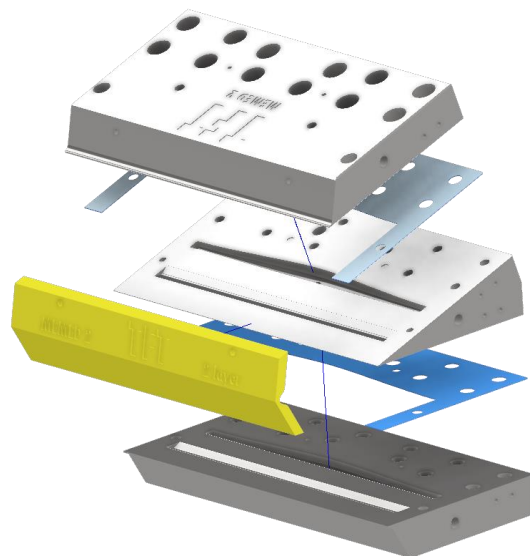


Abbildung 10: Explosionsansicht der mehrlagigen Schlitzdüse.

Ein wichtiges Qualitätsmerkmal einer Schlitzdüse ist das Kavitätsdesign. Dabei werden verschiedenste Ausführungen unterschieden (zylindrische Kavität, Coat-Hanger, mit/ohne Sekundärkavität, Tropfen oder Keilform, etc.). Im vorliegenden Fall wurde ein Coat-Hanger entwickelt. Dabei wird der Druckverlust durch eine sich verjüngende Kavität zur Außenseite hin annähernd konstant gehalten. Da die Schlitzdüse einen breiten Bereich von Fluideigenschaften und Geschwindigkeiten prozessieren können soll, wurde eine Kompromisslösung für die Form gewählt, die die verwendeten Fluide abdeckt und in den gängigen Geschwindigkeiten (5-50 m/min) die höchste Genauigkeit aufweist. Die 3D-Geometrie wurde berechnet, parametrisiert und in der CAD-Software eingefügt. Eine Sekundärkavität soll zusätzlich beim Ausgleich der Geschwindigkeitsfelder in Strömungsrichtung helfen. Die Profile der Querschnitte der Kavitäten wurden dabei aufeinander abgestimmt.

Um die Handhabung der Schlitzdüse zu vereinfachen, wurden weitere Einbauten vorgesehen:

- Gewindebohrungen für Ausrichtungsklötze in horizontale Richtung
- Gewindebohrungen für Tragegriffe und Einschraubvorrichtungen für den Einbau in die Reinigungsstation
- Gewindebohrungen für Tragegriffe auf der Vorderseite
- Gewindebohrungen für Madenschrauben zur einfacheren Trennung der Backen nach dem Betrieb
- Lippenschutz mit Gewindebohrungen auf der Vorderseite

UAP 2.4: Etablierung und Validierung der simultanen Zweilagenschichtung

Modellstoffsyste

Ziel für die Validierung der Vorhersagen aus den numerischen Berechnungen des Stabilitätsfensters bei der simultanen Zweilagenschichtung war es, definierte Rheologieprofile durch eine geeignete Wahl der Formulierungen zu erzeugen und diese experimentell zu untersuchen. Die Stabilität ist durch die Fluideigenschaften bestimmt (Viskosität in Abhängigkeit der Scherrate, Dichte, Oberflächenspannung etc.). Da die Herstellung von Batteriepasten viel Arbeits- und Zeitaufwand bedeutet und je nach verwendetem Aktivmaterial auch teuer ist, wurden in einem ersten Schritt Modellstoffsyste verwendet. Der Viskositätsverlauf der Modellstoffsyste soll dabei den Verlauf der Batteriepasten repräsentieren. Dazu eignen sich z. B. CMC-Wasser-Lösungen, da CMC auch als Binder in den Batteriepasten enthalten ist und die Viskositätskurve maßgeblich formt.

Die Untersuchung des Einflusses von verschiedenen Viskositätsverhältnissen sollte systematisch durch eine Abstufung der Feststoffkonzentrationen in den Polymerlösungen erfolgen. Eine Erhöhung der Polymerkonzentration im betrachteten Bereich wirkt sich dabei annähernd wie eine Parallelverschiebung der Viskositätsprofile aus. Nach einigen Vorversuchen wurden die Konzentrationen 0,5 wt%; 0,65 wt%; 0,8 wt%; 1 wt% und 1,5 wt% gewählt. Die resultierenden Verläufe der Viskosität in Abhängigkeit der Scherrate in einem Bereich von $0,1 \text{ s}^{-1}$ bis 4000 s^{-1} sind in Abbildung 11 dargestellt.

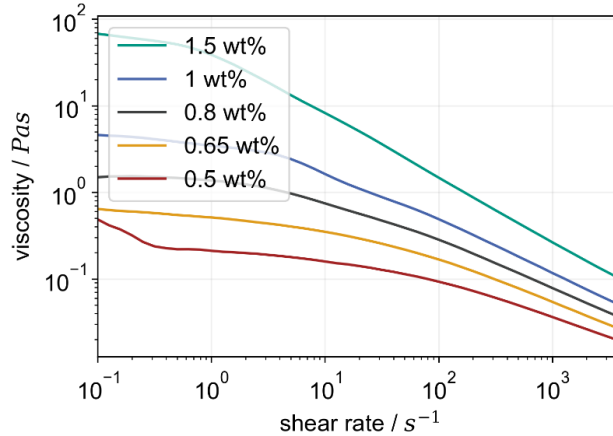


Abbildung 11: Viskositätsdaten für CMC-Wasser-Lösungen.

Die Basis bildet die unterste Kurve (rot; 0,5 wt%). Mit diesem Stoffsystem wurden alle Stoffsysteme kombiniert, um insgesamt 9 verschiedene Viskositätsverhältnisse zu erzeugen. Dabei werden das Viskositätsverhältnis und das Schichthöhenverhältnis wie folgt definiert:

$$m_\eta = \frac{\eta_{Top}}{\eta_{Bottom}}, \quad m_h = \frac{h_{Top}}{h_{Bottom}}$$

Das Viskositätsverhältnis $m_\eta = 1$ wird durch die Verwendung des Basissystems in der unteren und oberen Lage erhalten. Höhere Viskositätsverhältnisse werden gebildet, indem das Basissystem in der unteren Lage eingesetzt wird, niedrigere Viskositätsverhältnisse nutzen das Basissystem als obere Lage. Für jede Kombination werden die Schichthöhenverhältnisse im Bereich 0,25; 0,5; 1; 2 und 4 variiert. Daraus ergibt sich die in Abbildung 12 gezeigte Matrix für die auftretenden Kombinationen.

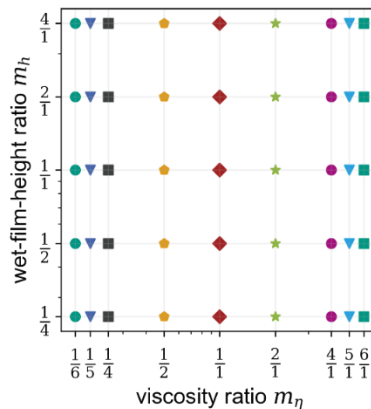


Abbildung 12: Experimentelle Matrix für die Untersuchung von Viskositäts- und Schichthöhenverhältnissen.

Ein weiterer Vorteil der Modellstoffsysteme ist deren Transparenz. Durch eine gezielte Einfärbung der beiden Lagen ist es möglich, Defekte individuell in beiden Lagen sichtbar zu machen. Dazu wurde die untere Lage schwarz eingefärbt (Nigrosin, 0,5 wt%) und die obere Lage mit einem UV-Marker versetzt (DSBB, 0,2 wt%). Damit lassen sich die auftretenden Defekte einer Lage zuordnen. Außerdem sind Durchmischungseffekte sichtbar. In Abbildung 13 ist ein Beispiel für die Einfärbung abgebildet.



Abbildung 13: Fluideinfärbung und Defektsichtbarkeit am Beispiel eines stabilen Films (links), einer instabilen oberen Lage (mittig) und einer instabilen unteren Lage (rechts).

Der stabile Bereich einer Beschichtung wird systematisch durch eine Anpassung des Volumenstroms ermittelt. Das Verhältnis der Volumenströme der unteren und oberen Lage ist dabei entsprechend dem Schichthöhenverhältnis konstant eingestellt. Das Beschichtungsfenster wird von unten angefahren und dessen untere Grenze wird an dem Betriebspunkt notiert, an dem keine Defekte mehr auftreten. Im Abstand Schritten von 10 μm wurden nun Messungen und Fotos der erzeugten Beschichtungen aufgenommen. Das obere Prozesslimit wurde erneut durch eine Annäherung auf ca. 2-3 μm Genauigkeit bestimmt. Dazu wurde eine Mikroskopkamera unter der Upstream-Lippe positioniert, die die entgegen der Beschichtungsrichtung austretende Flüssigkeit sichtbar macht.

Dieser Ablauf wird für jede Fluidkombination durchgeführt. Der Beschichtungsspalt wurde dabei auf 180 μm mit Hilfe einer Abstandsfolie eingestellt. Die Kombinationen mit dem System, das die höchsten Viskositätsverläufe aufweist, konnte in keinem Fall stabil beschichtet werden, da Durchmischung auftrat (siehe Abbildung 14). Der Unterschied der Viskositätsprofile war für diese Kombinationen zu hoch.

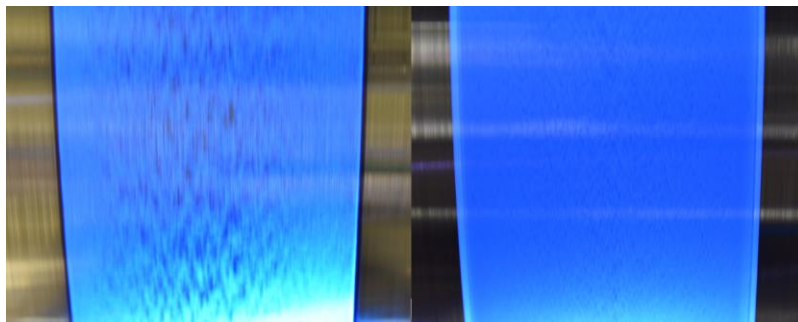


Abbildung 14: Durchmischungseffekte bei zu hohen Viskositätsverhältnissen.

Die verbleibenden Kombinationen konnten alle erfolgreich beschichtet werden und zeigten nur in ohnehin instabilen Bereichen Anzeichen für eine Durchmischung. In Abbildung 15 sind die ermittelten Beschichtungsfenster dargestellt. Jede Fluidkombination erhält dabei ein Diagramm, in dem die Nassfilmhöhe über dem Schichthöhenverhältnis aufgetragen ist. Der grüne Bereich zwischen der unteren Kurve (unteres Prozesslimit, Air Entrainment) und der oberen Kurve (oberes Prozesslimit, Swelling) ist der stabile Bereich.

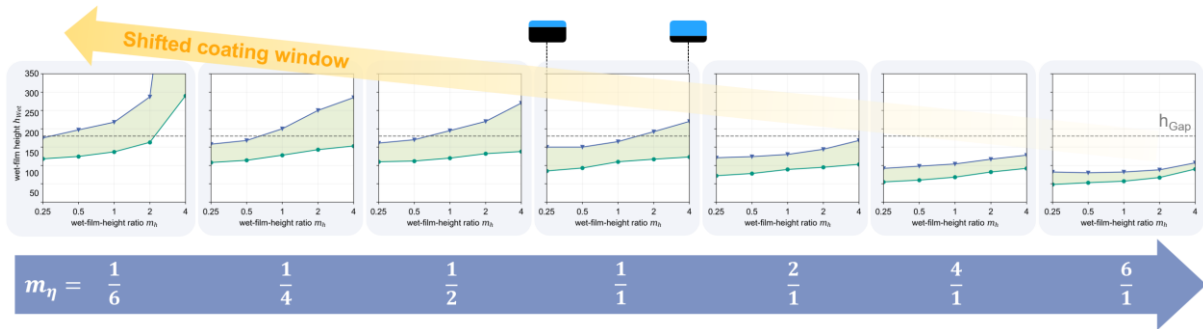


Abbildung 15: Experimentell ermittelte Beschichtungsfenster in Abhängigkeit der Viskositäts- und Schichthöhenverhältnisse.

In jedem einzelnen Diagramm zeigt sich der gleiche Trend für steigende Schichthöhenverhältnisse. Das untere und auch das obere Prozesslimit steigen an. Je nach Viskositätsverhältnis kann es auch zu einer Vergrößerung des Prozessfensters kommen ($m_\eta < 2$), für $m_\eta = 6$ wurde eine geringfügige Verkleinerung gemessen. Vergleicht man die Position der Beschichtungsfenster wird deutlich, dass ein steigendes Viskositätsverhältnis (d. h. die Viskosität in der oberen Lage ist größer als in der unteren) zu einer Verschiebung des Beschichtungsfensters hin zu kleineren Nassfilmhöhen bewirkt.

Diese experimentellen Daten dienen zur Validierung der numerischen Berechnungen. Die Viskositätskurven wurden mit Hilfe des Power-Law-Ansatzes parametrisiert. Die Schichtkonfigurationen ergaben sich analog zur experimentellen Vorgehensweise. In Abbildung 16 sind die Ergebnisse der numerischen Berechnungen (grüne gestrichelte Linien) den experimentellen Daten gegenübergestellt. Die Beschichtungsgeschwindigkeit beträgt 5 m/min.

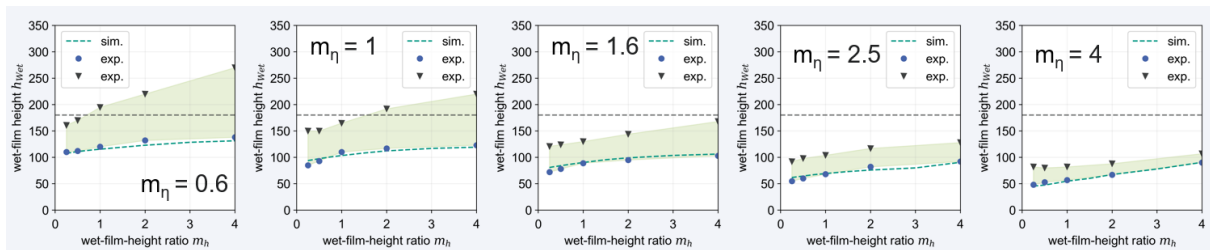


Abbildung 16: Gegenüberstellung von numerischer Simulation (grüne gestrichelte Linie) und experimentellen Daten (Kreise, Dreiecke und grüner Bereich) bei 5 m/min.

Für die dargestellten Schichtkonfigurationen kann eine hervorragende Übereinstimmung festgestellt werden. Sowohl der Einfluss der Schichthöhenverhältnisse als auch die Verschiebung durch die Viskositätsverhältnisse werden durch die Simulation abgebildet. Darüber hinaus wurde der Einfluss der Geschwindigkeit geprüft. Weil die Viskositätsverhältnisse annähernd konstant sind, da die Rheologiekurven parallelverschoben sind, wurde experimentell keine deutliche Änderung festgestellt. Auf der numerischen Seite gibt es jedoch deutliche Einflüsse, da die Viskositätsgradienten größer ausfallen. Abbildung 17 zeigt eine alternative Darstellung für das Schichthöhenverhältnis $m_h = 1$ bei den untersuchten Viskositätsverhältnissen.

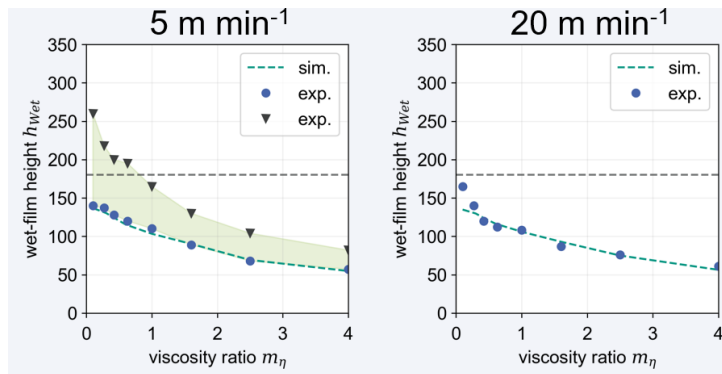


Abbildung 17: Einfluss der Geschwindigkeit auf die ermittelten Prozessgrenzen.

Auch in diesem Fall zeigt die Berechnung eine gute Übereinstimmung mit den experimentellen Daten. Lediglich im Bereich sehr kleiner Viskositätsverhältnisse bei 20 m/min ist eine Abweichung erkennbar.

Realstoffsyteme

Eine weitere Stabilitätsuntersuchung wurde für Realstoffsyteme durchgeführt, welche vom Projektpartner BASF konzeptioniert wurden. Da es sich hier um eine Vielzahl verschiedener Systeme handelt, wurden zwei Stellvertreter ausgewählt:

- System 1: Ähnliche Viskositätskurven, Viskositätsverhältnis in der Nähe von 1
- System 2: Unterschiedliche Viskositätskurven, Viskositätsverhältnis nähert sich dem Wert 1 bei hohen Scherraten

Die zugehörigen Rheologiedaten sind in Abbildung 18 gezeigt.

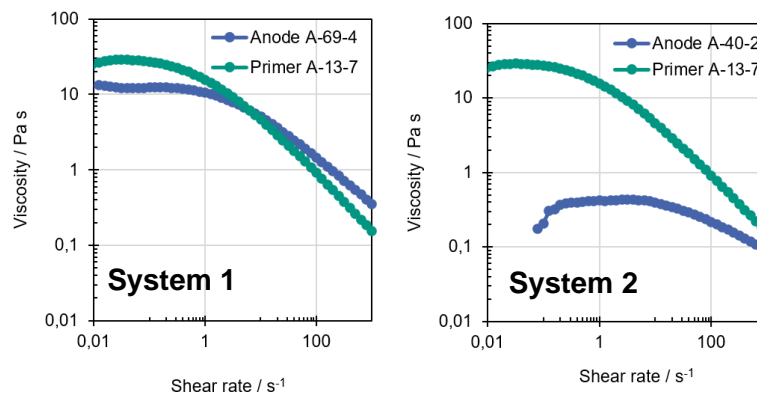


Abbildung 18: Viskositätskurven der untersuchten Realstoffsyteme.

Die Untersuchungen wurden bei einer Spalthöhe von 210 μm durchgeführt. Das Schichthöhenverhältnis ergab sich aus der Anwendung zu $m_h = 3$. Die Zielnassfilmhöhe betrug dabei 200 μm . Daraus resultiert die Schichtdicke der Primerschicht (untere Lage) von 50 μm und die der Anode (obere Lage) von 150 μm . Zur besseren Sichtbarkeit von Defekten wurde die obere Lage mit UV-Marker versetzt (DSBB, 0,2 wt%).

Wie zu erwarten, lies sich System 1 problemlos beschichten. Die ermittelten Stabilitätsbereiche für die Geschwindigkeiten 5, 20 und 50 m/min sind Abbildung 19 zu entnehmen.

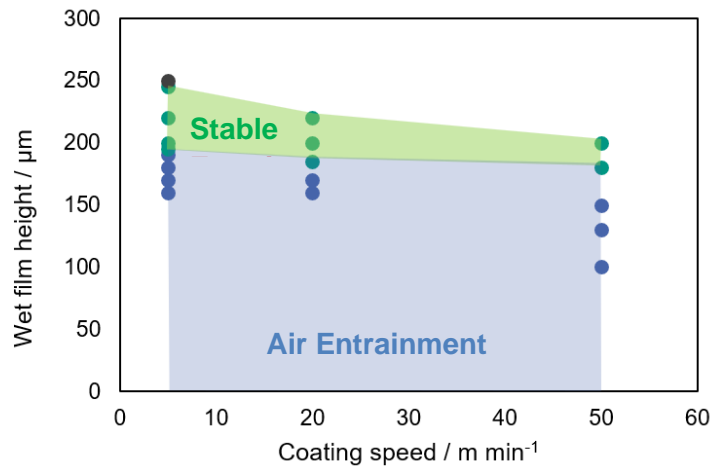


Abbildung 19: Stabilitätsbereich für die Beschichtung von System 1.

Das Beschichtungsfenster verkleinert sich bei höheren Geschwindigkeiten (Breite des Beschichtungsfensters: ca. 50 μm Breite bei 5 m/min, ca. 20 μm bei 50 m/min) und verschiebt sich geringfügig nach unten (untere Prozesslimits: 195 μm bei 5 m/min, 180 μm bei 50 m/min). Diese Beobachtungen sind in Übereinstimmung mit der Studie zu Modellstoffsystemen. Da in System 1 aufgrund der unterschiedlichen Steigungen der Viskositätsprofile ein mit steigender Scherrate ebenfalls steigendes Viskositätsverhältnis entsteht, kann eine Erhöhung der Geschwindigkeit in Bezug auf das Beschichtungsfenster wie eine Erhöhung des Viskositätsverhältnisses bei Modellstoffsystemen interpretiert werden. Die Trends stimmen überein und stellen eine weitere Validierung der Untersuchungen dar.

Die unterschiedlichen Viskositätsverläufe von System 2 lassen einen komplexeren Hintergrund erwarten. Während das Viskositätsverhältnis bei niedrigen Geschwindigkeiten (Scherraten) sehr groß ist, nähert sich dieses bei höheren Scherraten dem Wert 1 an. Dies lässt vermuten, dass die Beschichtung in diesem Fall bei höheren Geschwindigkeiten stabiler ist als bei niedrigen. Die ermittelten Prozessfenster bestätigen die Erwartung, wie in Abbildung 20 gezeigt.

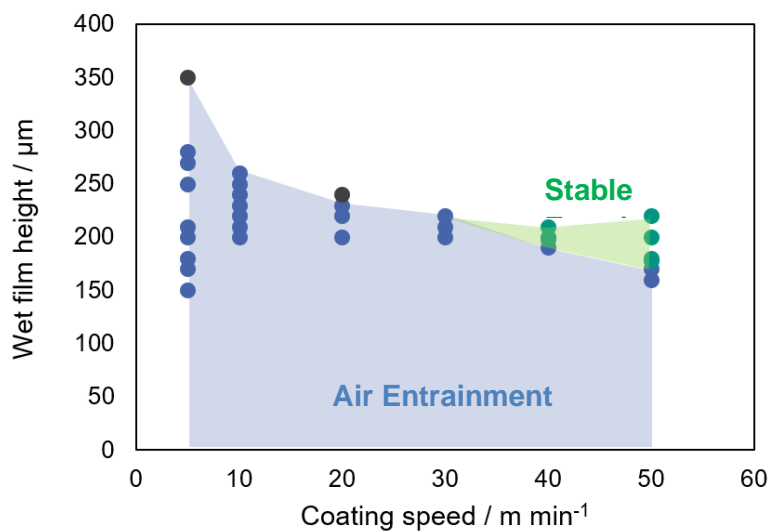


Abbildung 20: Stabilitätsbereich für die Beschichtung von System 2.

Hierbei ist ersichtlich, dass bis zu einer Geschwindigkeit von 40 m/min keine stabile Beschichtung erzeugt werden kann. Die Air-Entrainment-Defekte waren bis zum Auftreten von Swelling vorhanden. Bei einer Erhöhung der Geschwindigkeit verschiebt sich einerseits das Swelling-Limit nach unten, andererseits ist die Intensität der Air-Entrainment-Defekte merklich geringer ausgeprägt. Ab einer Geschwindigkeit von 40 m/min war es dann möglich, eine defektfreie Beschichtung zu erzeugen. Bei 50 m/min weitet sich das Beschichtungsfenster auf (Breite ca. 40 μm). Das Beschichtungsbild in Abbildung 21 zeigt diesen Sachverhalt noch einmal anschaulich.

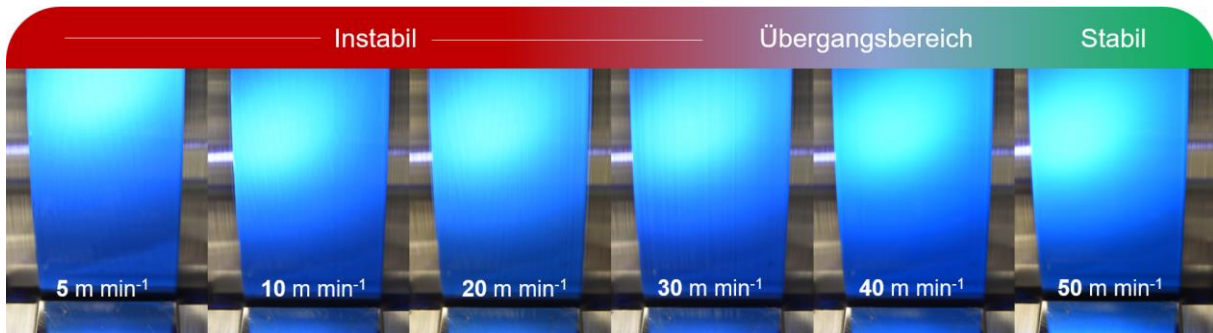


Abbildung 21: Beschichtungsbild von System 2 bei verschiedenen Geschwindigkeiten.

Bei der Betrachtung der Stabilisierung bei hohen Geschwindigkeiten wird die Relevanz für den Produktionsprozess von Batterieelektroden deutlich. In einer Ramp-Up-Phase, in der sich die Geschwindigkeiten von der Designgeschwindigkeit noch unterscheiden, können die veränderten Scherratenbereiche zu einem minderwertigen Produkt führen.

Zuletzt wurden Möglichkeiten zur Beeinflussung der Strömung bei der Beschichtung von System 2 konzeptionell untersucht. Eine Möglichkeit ist das Einbringen eines Lippenversatzes (siehe Abbildung 22).



Abbildung 22: Schematische Darstellung eines Lippenversatzes der Downstream-Lippe.

Die Spalthöhe unter der Downstream-Lippe wird dabei erhöht, um den Strömungsdruck durch die erhöhte Kanalhöhe in der oberen Lage herabzusetzen. Zusätzlich wird das Scherratenverhältnis geändert, sodass die hochviskose Primer-Lage höhere Scherraten erfährt als die niedrigviskose Anoden-Lage. Das Viskositätsverhältnis nähert sich deshalb weiter dem Wert 1 und erhöht die Stabilität bei der Beschichtung. In Abbildung 23 ist der Zielbetriebspunkt ($h_{\text{wet}} = 200 \mu\text{m}$) für die Geschwindigkeit 5 m/min für eine Standardkonfiguration (links) und eine Konfiguration mit Lippenversatz (rechts) gegenübergestellt.

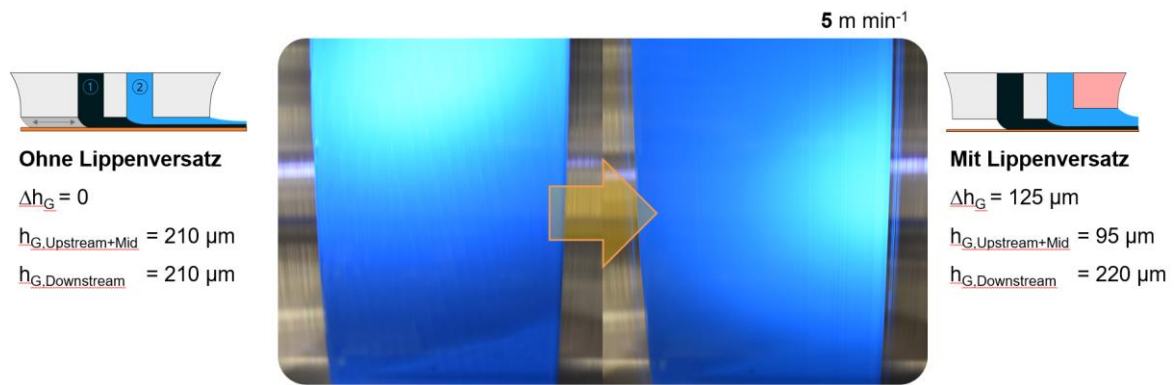


Abbildung 23: Einfluss einer versetzten Downstream-Lippe auf das Beschichtungsbild bei 5 m/min.

Durch den Lippenversatz ist eine deutliche Verbesserung des Schichtbildes im Vergleich zur Konfiguration ohne Lippenversatz (siehe System 2, 5 m/min) zu erkennen. Mit dieser Technik lässt sich ein extremes Verhältnis von Viskositäten teilweise stabilisieren. Daraus ergibt sich ein weites Feld an Optimierungspotential und Anwendungsgebieten.

I.2 Wichtigste Positionen des zahlenmäßigen Nachweises

Der Fokus des Projekts ForeCast am KIT lag auf der Modellentwicklung, um Produktionsprozesse während der simultan zweilagigen Beschichtung von Batterieelektroden abzubilden. Wegen des hohen personellen Aufwands, einerseits für die Erstellung der mathematischen Modelle und die Durchführung der Simulationen, andererseits für die Planung und Durchführung der umfangreichen Versuchskampagnen, nehmen die Personalkosten die größte Position ein. Zur Erstellung und zum Testen von Modellen und Methoden zur Abstraktion für die Implementierung in das entwickelte Vorhersagemodell wurden dabei auch Hilfwissenschaftler eingesetzt. Diese unterstützten die Arbeiten sowohl im experimentellen als auch im simulativen Bereich.

Die experimentelle Untersuchung erfordert eine an die Beschichtungsfluide angepasste Mehrlagenschlitzdüse inkl. eines Hochpräzisionsdosiersystems, welches im Rahmen des Projekts konstruiert bzw. angeschafft wurde. Die notwendigen Einsparungen durch die Eigenleistung bei der Konstruktion der Schlitzdüse führten zu einem erhöhten Personalbedarf, wobei das Projekt nach Umwidmung von Investitionskosten in Personalkosten am Ende kostenneutral bearbeitet werden konnte und alle Projektziele erreicht wurden. Während der Experimente wurde das Verbrauchsmaterial planmäßig verwendet. Im Laufe des Projektes wurden die Reisemittel für Projekttreffen zwischen den Projektpartnern sowie nationale und europäische Konferenzen genutzt, um die Projekthinhalte mit der Fachwelt zu diskutieren und neuste Erkenntnisse in das Projekt zu integrieren.

I.3 Notwendigkeit und Angemessenheit der geleisteten Arbeit

Die simultane Zweilagenschichtung im Schlitzgussverfahren ermöglicht eine Vielzahl von Optimierungen der elektrochemischen und mechanischen Eigenschaften von Batterieelektroden. Darüber hinaus können zielgerichtete Mehrlagenkonfigurationen zu einer Intensivierung des Trocknungsprozesses führen, was die Produktivität und Effizienz einer Produktionsanlage signifikant steigern kann. Da sich die Fluideigenschaften der einzelnen Lagen in der Regel unterscheiden, ist ein detailliertes Prozessverständnis zwingend erforderlich, um einen stabilen Beschichtungsprozess bei den geforderten Prozessbedingungen und Kombinationen von Materialeigenschaften sicherzustellen. Da Elektrodenlurries ein strukturviskoses Verhalten aufweisen, sind die Erkenntnisse für

newtonsche Medien, für die auch eine rechnerische Analyse einfacher möglich ist, nur bedingt übertragbar. Die im Projekt aufgezeigten Möglichkeiten und Grenzen der simultanen Mehrlagenbeschichtung von Batterieelektroden, inklusive des entwickelten Vorhersagemodells, mit direkter Verwertung im Pilotmaßstab ist daher ein grundlegender Schritt für die Optimierung des Beschichtungs- und Trocknungsprozesses für Batterieelektroden.

I.4 Voraussichtliche Nutzung, insbesondere der Verwertbarkeit des Ergebnisses im Sinne des fortgeschriebenen Verwertungsplan

Die Nutzung der im Rahmen des Projektes ForeCast erarbeiteten Ergebnisse wird nach den Gesichtspunkten der wirtschaftlichen und wissenschaftlichen Verwertbarkeit dargestellt.

Wirtschaftliche Verwertbarkeit

Im Projekt ForeCast fand schon in der Projektlaufzeit eine kontinuierliche wirtschaftliche Verwertung der am KIT generierten Inhalte durch den Projektpartner BASF SE statt, beispielsweise durch die Entwicklung der Primerformulierungen. Eine konsolidierte Form des generierten Wissens wird auch generell in Form von öffentlich zugänglichen Veröffentlichungen bereitgestellt. Für das experimentelle Design und die Strukturierung des Vorhersagemodells wurden möglichst generische Ansätze gewählt, sodass ein Transfer auf ein konkretes, industrielles Materialsystem vereinfacht wird. Eine bestmögliche Verwertung besteht in der Anwendung des Wissens zur Optimierung des Produktionsprozesses und der Batterieeigenschaften durch die Implementierung einer simultan mehrlagigen Beschichtung, was zu einer Steigerung der Batteriequalität bei niedrigeren Produktionskosten führt.

Wissenschaftliche und technische Verwertbarkeit

Die wissenschaftlichen Inhalte des Projekts sollen in Form von Publikationen zur wissenschaftlichen und technischen Verwertung zur Verfügung gestellt werden. Zum Berichtszeitpunkt befindet sich eine Veröffentlichung im Peer-Review-Prozess, in der zwei unterschiedliche Realstoffsysteme mit direktem Bezug zum Produktionsprozess vorgestellt werden, die zwei Grenzfälle für Materialkombinationen abbilden und die Einflussgrößen umreißen. An einer weiteren Veröffentlichung wird gearbeitet, die das Prozesswissen durch eine Aufbereitung der experimentellen Ergebnisse präsentiert und die technischen Grundlagen bereitstellt, die für die Vorhersage des Beschichtungsfensters für die simultane Zweilagenschichtung notwendig sind.

I.5 Während der Durchführung des Vorhabens dem ZE bekannt gewordenen Fortschritts auf dem Gebiet des Vorhabens bei anderen Stellen

Im Verlauf des Projektes wurden ähnliche, vorwiegend simulative Untersuchungen von koreanischen Arbeitsgruppen durchgeführt [8]. Die Ergebnisse mindern den Wert des Projekts jedoch nicht, einerseits durch die Tragkraft der umfangreichen experimentellen Validierung und andererseits durch die Möglichkeit zur maßgeschneiderten Anwendung des Vorhersagemodells an einem konkreten Prozess.

I.6 Erfolgte und geplante Veröffentlichung der Ergebnisse Zeitschriftenartikel

2024

Hoffmann, et. al, Scharfer, Schabel (2024): „Optimized battery electrodes with primer layers by simultaneous two-layer slot-die coating”, Journal of Coatings Technology and Research, **(under peer review)**

2025

Hoffmann, et. al, Scharfer, Schabel (2025): „Experimental study and numerical prediction of coating defects in multilayer slot-die coating of battery electrodes” **(in progress)**

Präsentationen

A. Hoffmann, J. Klemens, P. Scharfer, W. Schabel, Simultaneous multilayer coating for battery electrodes and numerical simulations with model material systems (Talk), European Coating Symposium, September 2023, Paris

Literatur

1. Schmitt M (2015) Slot die coating of lithium-ion battery electrodes, Dissertation, KIT; Karlsruher Institut für Technologie
2. S.F. Durst, N. Dongari, R. Sambasivam (2007) Slot coaters operating on their bead mode. 1–6
3. Tsuda Coating Flows of Power-Law Non-Newtonian Fluids in Slot Coating. Journal of the Society of Rheology
4. Ruschak KJ (1976) Limiting flow in a pre-metered coating device. Chemical Engineering Science 31:1057–1060. [https://doi.org/10.1016/0009-2509\(76\)87026-1](https://doi.org/10.1016/0009-2509(76)87026-1)
5. Mezger T (2016) Das Rheologie Handbuch: Für Anwender von Rotations- und Oszillations-Rheometern. Vincentz Network, Hannover
6. Diehm R, Kumberg J, Dörrer C, et al (2020) In Situ Investigations of Simultaneous Two-Layer Slot Die Coating of Component-Graded Anodes for Improved High-Energy Li-Ion Batteries. Energy Technol 8:1901251. <https://doi.org/10.1002/ente.201901251>
7. Ji HS, Ahn W-G, Kwon I, et al (2016) Operability coating window of dual-layer slot coating process using viscocapillary model. Chemical Engineering Science 143:122–129. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2015.12.016>
8. Park JS, Yoo T, Chun B, et al (2022) Operability limits for non-Newtonian liquids in dual-layer slot coating processes using the viscocapillary model. J Coat Technol Res 19:35–47. <https://doi.org/10.1007/s11998-021-00499-5>