



# 3D-Strukturierung von Solid-State Kathoden zur Erhöhung der Leistungs- und Energiedichte

**Förderkennzeichen: 03XP0202A**

Fördermaßnahme: Batterie 2020

Förderbereich: Batteriematerialien für zukünftige elektromobile und stationäre Anwendungen

GEFÖRDERT VOM



Bundesministerium  
für Bildung  
und Forschung

**Schlussbericht gemäß Nr. 8.2 NKBF 98**  
**Teilvorhaben Vitesco Technologies Germany GmbH**

**In Zusammenarbeit mit**  
**Von Ardenne GmbH**  
**SITEC Industrietechnologie GmbH**  
**LPKF Laser & Electronics AG**  
**Westfälische Wilhelms Universität Münster**  
**Technische Universität Carlo-Wilhelmina zu Braunschweig**

## Inhaltsverzeichnis

|     |   |    |
|-----|---|----|
| I.  | Kurzdarstellung.....  | 3  |
| 1.  | Aufgabenstellung.....   | 3  |
| 2.  | Voraussetzungen, unter denen das Vorhaben durchgeführt wurde .....  | 3  |
| 3.  | Planung und Ablauf des Vorhabens .....  | 4  |
| 4.  | Wissenschaftlicher und technischer Stand, an den angeknüpft wurde.....  | 5  |
| 5.  | Zusammenarbeit mit anderen Stellen.....   | 7  |
| II. | Eingehende Darstellung .....  | 8  |
| 1.  | Verwendung der Zuwendung und des erzielten Ergebnisses im Einzelnen, mit Gegenüberstellung der vorgegebenen Ziele .....                             | 8  |
| 2.  | Wichtigste Positionen des zahlenmäßigen Nachweises .....  | 26 |
| 3.  | Notwendigkeit und Angemessenheit der geleisteten Arbeit.....  | 27 |
| 4.  | Voraussichtlicher Nutzen, insbesondere Verwertbarkeit des Ergebnisses im Sinne des fortgeschriebenen Verwertungsplans.....                          | 27 |
| 5.  | Während der Durchführung des Vorhabens dem Zuwendungsempfänger bekannt gewordener Fortschritt auf dem Gebiet des Vorhabens bei anderen Stellen..... | 28 |
| 6.  | Erfolgten oder geplante Veröffentlichungen des Ergebnisses nach Nr. 11 .....  | 28 |

## I. Kurzdarstellung

### 1. Aufgabenstellung

Technologisch versprechen All-Solid-State Ansätze höchste Energiedichten, die praktisch bisher jedoch noch nicht erreicht werden. Bei den klassischen Flüssigelektrolytsystemen sind die energie-dichte- und leistungsbestimmenden Parameter sowie die Transportprozesse der Elektronen und Lithiumionen mittlerweile gut verstanden, dies gilt nicht für All-Solid-State Systeme. Mit steigendem Elektrodenenergiegehalt, respektive Flächenbeladung, wird die Ausbildung der Leitpfade immer essenzieller für die generelle Funktionsfähigkeit und Schnellladefähigkeit der Batterien.

Die wissenschaftlichen Ziele der Vitesco Technologies Germany GmbH (ehemals CPT Zwei GmbH, vormals Conti Temic microelectronic GmbH) lagen in der Evaluierung des Potentials strukturierter Feststoffelektroden gegenüber konventionell gefertigten Zellen. Ein besonderer Fokus lag auf der Identifizierung geeigneter Herstellungsprozesse sowie darauf aufbauender Prozessketten, die eine wirtschaftliche Produktion von All-Solid-State Zellen gewährleisten. Diese sollten einen Performancevorteil gegenüber kommerziell erhältlichen Zellen für den Einsatz in Elektrofahrzeugen aufweisen. Durch die vernetzte Aufstellung im Projekt konnten und können noch unterschiedliche Einzelprozesse sowie Prozessrouten untersucht werden.

Im Bereich der Simulation sollten durch die Zusammenarbeit mit dem iPAT geeignete Modelle für die Berechnung der elektrischen und mechanischen Eigenschaften von Festkörper-batterien aufgestellt und evaluiert werden. Diese sollen projektübergreifend eine Wissensbasis für das Design und die weitere Auslegung solcher Batteriezellen bilden.

Am Ende dieses Projekts sollte ein umfängliches Wissen über strukturierte Feststoffelektrolyt-elektroden sowie sonstige Zellkomponenten und Prozesse zu deren Herstellung zur Verfügung stehen. Somit wäre eine solide Grundlage für die weitere Entwicklung und Fertigung von fest-körperionenbasierten Batteriezellen bei Vitesco Technologies gelegt.

### 2. Voraussetzungen, unter denen das Vorhaben durchgeführt wurde

Die in der Förderrichtlinie "Batteriematerialien für zukünftige elektromobile, stationäre und weitere industrierelevante Anwendungen (Batterie 2020)" unter Ziffer 2.2 (Material- und Prozesstechnik für sekundäre Hochenergie- und Hochleistungs-Batteriesysteme) und Ziffer 2.3 (Zukünftige

Batteriesysteme) genannten Schwerpunkte werden von 3D-SSB bedient: 3-D-strukturierte Elektroden, Mehrschichtsysteme, Festelektrolyt, Solid-State-Ansätze für LIB, reversible und sichere Lithiummetall-Anoden, Skalierung, Weiterentwicklung der Inaktivmaterialien, alternative Zelldesign- und Elektrodenkonzepte, maßgeschneiderte Elektroden inkl. Prozesstechnik sowie Entwicklung von Elektrolyten und Separatoren, bildeten den Kern des Projekts 3D-SSB. Durch den Einsatz einer passivierten Li-Metall Anode sowie die Entwicklung einer Feststoffelektrolytkathode mit Mikrostruktur ist eine Steigerung des praktisch abrufbaren Energiegehalts bzw. der Leistungsdichte von All-Solid-State Zellen zu erreichen. Zudem verfolgte das Projektkonsortium das Ziel, die Wertschöpfungskette der All-Solid-State Zelle ganzheitlich, beginnend von der Materialentwicklung über die Elektrodenprozessierung bis hin zur Zellfertigung, abzubilden.

Die Business Unit Hybrid Electric Vehicle ist innerhalb der Vitesco Technologies Germany GmbH spezialisiert auf Elektromotoren, hochwertige Leistungselektronik sowie Batteriesysteme im Niedervoltsegment. In der Antragsphase sowie zum Start des Projekts lief zudem die Prüfung, ob der Einstieg in den Markt für Hochvoltbatteriesysteme und Batteriezellen ein sinnvoller Schritt für die Continental respektive Vitesco Technologies ist. Während der Projektlaufzeit erfolgte bei Continental die Entscheidung nicht mehr in Festkörperbatteriezellen einzusteigen, was zum Ausstieg aus dem Projekt geführt hat.

### 3. Planung und Ablauf des Vorhabens

Die innovativen Lösungsansätze zum Erreichen der unter I.1 aufgezeigten Aufgabenstellung sind im nachfolgenden tabellarischen Arbeitsplan detailliert ausgeführt.

*Tabelle 1: Übersicht der Arbeitsinhalte für Vitesco Technologies.*

| AP | Titel   | Arbeitsinhalt   |
|----|---|---|
| 0  | Projektorganisation                           | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Technische Projektspezifikationen</li> <li>• Vorschlag einer Prozesskette für den Gesamtprozess</li> </ul>                         |
| 1  | Strukturbaublocken                            | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Materialbausteindesign</li> </ul>  |
| 4  | Struktursimulation und Eigenschaftsprädiktion | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Modellbildung FEM</li> <li>• Parametrierung des FEM-Modells und des DEM-Modells</li> <li>• Simulation der Monoschichten</li> </ul> |

|   |  |  |
|---|--|--|
|   |  | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Simulation 3D-strukturierter Elektroden</li> <li>• Ableitung einer optimierten Elektrode</li> </ul>   |
| 5 | Verbesserte Inaktivkomponenten             | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Bindermodifikation</li> <li>• Passivierung Lithium-Metallfolie</li> <li>• Separatorentwicklung - Applizierung dünner Feststoffelektrolyte</li> </ul>  |
| 6 | Entwicklung verbessertes Zellsystem        | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Grundaufbau Zellsystem</li> <li>• Alternative Feststoffelektrolyte</li> <li>• Grenzschichtbetrachtung zur Identifikation von Transportlimitierungen</li> </ul>  |
| 7 | Analytik und Produktcharakterisierung      | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Standardcharakterisierung der Elektrode</li> <li>• Spezialcharakterisierung der Elektrode an ausgewählten Laborzellen</li> <li>• Zellbau und Charakterisierung (Labormaßstab)</li> <li>• Zellbau und Charakterisierung Funktionsmuster</li> </ul> |
| 8 | Prozesskette und Verwertung der Ergebnisse | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Erstellung eines Fabrikkonzepts</li> <li>• Verwertung der Ergebnisse</li> </ul>   |

#### 4. Wissenschaftlicher und technischer Stand, an den angeknüpft wurde

Trotz zahlreicher Vorteile einer All-Solid-State Batterie (v.a. Sicherheit und Schnellladefähigkeit) und der prognostizierten hohen Energiedichte<sup>1</sup> finden diese aktuell nur wenig Anwendung und wurden bislang nur in geringem Umfang in Forschung und Entwicklung beachtet. Grund hierfür ist die z.T. schlechte ionische Leitfähigkeit der Feststoffelektrolyte, aber auch die fehlenden skalierbaren Prozesstechnologien für die Herstellung von feststoffbasierten, mechanisch festen, dicken Elektroden. Der erstgenannten Herausforderung einer zu geringen ionischen Leitfähigkeit wurde in den letzten Jahren deutlich entgegengewirkt: Erreicht der wohl bekannteste Feststoffelektrolyt LIPON noch maximal  $3 \times 10^{-6} \text{ S/cm}^2$ , zeigen Superionic Conductors wie NaSICON, LiSICON oder polymere Ionenleiter Leitfähigkeiten von bis zu  $10^{-3} \text{ S/cm}^3$ . Mit neuartigen Leitern sind sogar Werte bis zu  $25 \text{ mS/cm}^4$  erreicht worden. Sulfidische Gläser erreichen die höchste ionische Leitfähigkeit,

<sup>1</sup> Elsner, P.; Sauer D.U.: Energiespeicher-Technologiebrief zur Analyse "Flexibilitäts-konzepte für die Stromversorgung 2050", Schriftenreihe-Energiesysteme der Zukunft, acatech, München, 2015.

<sup>2</sup> Knauth P.: Inorganic solid Li ion conductors: An overview, Solid State Ionics; 180, 911-916, 2009.

<sup>3</sup> Bachmann, J. C et al.: Chem. Rev., 116, 140-162, 2016.

<sup>4</sup> Kato Y., et al.: High-power all-solid-state batteries using sulfide superionic conductors, nature energy; 1, 1-7, 2016.

vergleichbar mit flüssigen Elektrolyten von  $>10^{-2}$  S/cm<sup>5</sup>, zeigen allerdings eine hohe Sensitivität gegenüber Umgebungseinflüssen<sup>6</sup>.

Entwicklungsansätze für die Herstellung von All-Solid-State Batterieelektroden sind vor allem in der Dünnschichtbatterietechnik bekannt, bei der die schlechten Leitfähigkeiten durch sehr dünne Elektroden und kurze Diffusionswege kompensiert werden. Mit den typischerweise 20–200 nm dicken Elektroden werden Kapazitäten von  $12 \mu\text{Ah}/(\text{cm}^2 \mu\text{m})^7$  erreicht. Mit NaSICON und monoklinem  $\text{Li}_3\text{V}_2(\text{PO}_4)_3$  als Aktivmaterial werden bei Verbundschichtdicken (Kathode + Separator ca. 400  $\mu\text{m}$ ) Kapazitäten von bis zu  $2,2 \text{ mAh}/\text{cm}^2$  erzielt, jedoch nur bei einem äußerst kleinen Strom von C/50<sup>8</sup>. Die stark herabgesetzte Leitfähigkeit dieser Elektroden für Ionen und Elektroden verhindert anwendungsnahe C-Raten von bis zu 1C.

Der Automobilhersteller Toyota fokussiert sich vor allem auf die Untersuchung des schwefelbasierten Ionenleiters LGPS in All-Solid-State Kathoden<sup>4</sup>. Dieser Feststoffelektrolyt erreicht bei Raumtemperatur eine ionische Leitfähigkeit von bis zu 25 mS/cm, die sogar klassischen Flüssigelektrolyten überlegen ist. Mit der Kombination von LCO als Aktivmaterial und LGPS als Ionenleiter konnten Zellen entwickelt werden, die bei 100°C und hohen C-Raten von 18C bei einer Entladung von 80% über mehrere hundert Zyklen konstante Kapazitäten zeigten. Bei Kontakt mit der Umgebungsatmosphäre (Luftfeuchtigkeit) reagiert der schwefelbasierte Ionenleiter jedoch zu toxischem Schwefelwasserstoff<sup>6</sup>. In den Untersuchungen von Toyota konnte außerdem keine Lithium-Metallanode genutzt werden, da das sulfidische Glas Inkompatibilitäten aufgrund chemischer Nebenreaktionen zeigte. Dieses Phänomen soll durch den Einsatz des oxidischen Ionenleiters LLZO, der eine bessere Kompatibilität aufweist [26], kompensiert werden.

Ein vielversprechender Ansatz zur Steigerung der abrufbaren Elektrodenkapazität in Feststoffelektrolytbatterien und zur Steigerung der elektrischen und ionischen Transportkinetik ist nicht nur der Entwicklung verbesserter Feststoffelektrolyte, sondern auch die Variation der Elektrodenzusammensetzung (BMBF-Projekt FELIZIA). Alcock et al.<sup>9</sup> haben in kombinatorischen

---

<sup>5</sup> Kamaya N., et al.: A lithium superionic conductor, *Nat. Mater.*, 10, 9, 682-686, 2011.

<sup>6</sup> Masahiro Tatsumisago et. al.: Recent development of sulfide solid electrolytes and interfacial modification for all-solid-state rechargeable lithium batteries, Elsevier, *Journal of Asian Ceramic Societies*, Japan (2013)

<sup>7</sup> Nowak S., et al.: Ultra-thin LiPON films – Fundamental properties and application in solid state thin film model batteries, *J. Power Sources*; 275, 144-150, 2015.

<sup>8</sup> Delaizir G., et al.: The storage age revisited: Building a monolithic inorganic lithium-ion battery, *Adv. Funct. Mater.*; 22, 10, 2140-2147, 2012.

<sup>9</sup> Alcock H.J., et al.: New high-throughput methods of investigation polymer electrolytes, *J. Power Sources*; 196, 3355-3359, 2011.

Versuchen zum Aufbau des Polymerelektrolyten gezeigt, dass die Quantität der Komponenten die Leitfähigkeit beeinflusst. Weitere Varianten sind die 3D-Strukturierung von Stromsammlern (EU-Projekt Elibama) bzw. von Elektrodenkomponenten (z.B. hochporöse Kohlenstoffe, BMBF-Projekt Flow3D). 3D-strukturierte Kompositelektroden werden bei konventionellen Lithium-Ion Batterien z.B. mittels des Pasten-3D-Drucks untersucht<sup>10</sup>. Feststoffelektrolytbasierte Elektroden werden hingegen nur in der Dünnschichttechnologie mittels Bedampfung, Laserablation, Magnetron-Sputtern oder Siebdruck dreidimensional strukturiert<sup>11</sup>. Als weitere Maßnahme zur Kapazitätserhöhung kann der Anteil des Aktivmaterials durch die Konstruktion dicker Batterieelektroden gesteigert werden. Dabei kommt es aufgrund der begrenzten Ionenleitfähigkeit typischerweise zu Transportlimitierungen, die zu einer Reduktion der Stromdichte und Aktivmaterialausnutzung führen. Eine Lösung dieser Diskrepanz ist die Fertigung dreidimensionaler Batterien (3D-Batterien). Beispiele für einzigartige Architekturen sind Schwamm- und Netzgewebegerüste oder Honigwabenstrukturen<sup>12</sup>. Sie ermöglichen eine Erhöhung des Aktivmaterialanteils bei gleichzeitiger Erhaltung kurzer Diffusionswege für Ionen sowie maximaler Kontaktflächen zwischen Elektrode und Elektrolytssystem. Um solche Strukturen zu ermöglichen, werden zum einen additive Fertigungsverfahren verwendet, zum anderen werden mittels Laserverdampfung oder reaktiven Ionenätzen<sup>13</sup> Strukturen in Elektrolyte projiziert. Die so vergrößerten Oberflächen, die dem Austausch von Ionen dienen, führen in den untersuchten Dünnschichtbatterien zu um den Faktor 3 gesteigerten Ionenaustauschraten.

## 5. Zusammenarbeit mit anderen Stellen

Besonders erwähnenswert ist die offene und gute Zusammenarbeit mit den Verbundpartnern Von Ardenne GmbH, SITEC Industrietechnologie GmbH, LPKF Laser & Electronics AG, Westfälische Wilhelms Universität Münster, Technische Universität Carlo-Wilhelmina zu Braunschweig in allen Teilprojekten, an denen Vitesco Technologies Germany beteiligt war.

---

<sup>10</sup> Sun K., et al.: 3D printing of interdigitated Li-ion microbattery architectures; *Adv. Mater.*, 25, 4539-4543, 2013.

<sup>11</sup> Jung C.Y., et al.; Screen printed cathode for non-aqueous lithium-oxygen batteries, *J. Power Sources*; 297, 174-180, 2015.

<sup>12</sup> Kotobuki M., Suzuki Y., Munakata H., Kanamura K., Sato Y., Yamamoto K., Yo-shida T.; Effect of sol composition on solid electrode/solid electrolyte interface for all-solid-state lithium ion battery, *Electrochim. Acta*; 56, 1023-1029, 2010

<sup>13</sup> Notten P.H.L., Roozeboom F., Niessen R.A.H., Baggetto L.; 3-D Integrated all-solid-state rechargeable batteries, *Adv. Mater.*; 19, 4564-4567, 2007

## II. Eingehende Darstellung

### 1. Verwendung der Zuwendung und des erzielten Ergebnisses im Einzelnen, mit Gegenüberstellung der vorgegebenen Ziele

#### **Projektorganisation (Arbeitspaket 0)**

Das Ziel des Projekts 3D-SSB ist die Bereitstellung einer Batteriezelle für den Einsatz im Automotive-Bereich. Hierzu erfolgte im Rahmen der Antragsphase von 3D-SSB eine Analyse zur IP-Landschaft sowie dem Stand der Technik. Diese Analyse ist unter I.4 dargestellt und diente als Grundlage zur Ausarbeitung des Konsortialvertrags sowie der darin verankerten Verwertungsrechte und -strategien seitens Vitesco Technologies. Eine weitere Vertiefung der Aktivitäten über das für die Vertragsverhandlungen erforderliche Niveau hinaus war im aktuellen Berichtszeitraum nicht vorgesehen.

#### ***Technische Projektspezifikationen: Spezifikation Labormusterzellen, Komponenten und Zelltest (UAP 0.1)***

Zur Ausarbeitung des Entwicklungsziels erfolgte eine detaillierte Berechnung, Auslegung und anschließende Spezifikation der Labormusterzellen (Demonstrator), deren Komponenten sowie der entsprechenden Testbedingungen und Testbeschreibungen inkl. Datenanalyse. Die erweiterte Spezifikation umfasst dabei Zellen mit Flüssig- und Feststoffelektrolyt. Nachfolgende Punkte wurden in dem Projekt thematisiert:

- Setup fürs Testen von Labor Halb- und Voll-Zellen
- Zellen Testsystem für Flüssigelektrolyte
- Zellen Testsystem für Feststoffelektrolyte
- Testbeschreibung für Zykluslebensdauertests an Halb-Zellen
- Testbeschreibung für Zykluslebensdauertests an Voll-Zellen
- Standard Datenanalyse und graphische Darstellung
- Elektrodenspezifikation für Demonstrator Zellen
- Pouch Zellspezifikation für Demonstrator Zellen

Als Aktivmaterialien lag der Fokus auf dem Schichtoxid Lithium-Nickel-Mangan-Kobaltoxid NMC622 ( $\text{LiNi}_{0.6}\text{Mn}_{0.2}\text{Co}_{0.2}\text{O}_2$ ), da dieses aufgrund des hohen Nickelanteils eine hohe spezifische Energie von 665 Wh/kg sowie Energiedichte von ca. 3200 Wh/l auf Aktivmaterialebene bei guter Resistenz gegenüber thermischer Fehlnutzung und Überladung aufweist. Das Material ist damit für die Applikation in BEV-Batteriezellen geeignet. Wie jedoch bekannt ist, kann es aufgrund des hohen Oxidationspotentials des Schichtoxids zu Nebenreaktionen mit PEO-basierten Polymerelektrolyten kommen. Der Fokus wurde daher in Abstimmung mit dem Projektkonsortium so gelegt, dass kathodenseitig Feststoffelektrolyte integriert werden sollten, die auf den oxidischen Ionenleitern  $\text{Li}_a\text{Al}_b\text{Ti}_c(\text{PO}_d)_e$  (LATP) und  $\text{Li}_i\text{La}_g\text{Zr}_h\text{O}_i$  (LLZO) basieren. Da polymere Festelektrolyte für die Verarbeitung des Kathodenmaterials und die Bereitstellung stabiler Strukturbausteine erforderlich sein können, sollten hier alternative Systeme zum klassischen PEO-Polymer mit Leitsalz LiTFSI identifiziert werden. Sofern sich hinsichtlich der Prozesssicherheit Herausforderungen ergeben, könnte auf Lithium-Eisenphosphat (LFP), das eine Energiedichte von  $< 2000$  Wh/l besitzt, zurückgegriffen werden. LFP ist dabei jedoch als reines Beispielsystem zu betrachten, für welches der Einsatz in BEV-Batteriezellen unwahrscheinlich ist.

**Tabelle 2: Komponenten der Kathode für die Flüssigelektrolytzelle.**

| Komponente           | Produkt                     | Hersteller        |
|----------------------|-----------------------------|-------------------|
| Aktivmaterial        | NMC622                      | BASF              |
| Binder               | Polyvinylidenfluorid (PVDF) | Solvey            |
| Leitadditiv          | Carbon Black                | Imerys            |
| Prozesslösungsmittel | N-Methylpyrrolidon (NMP)    | BASF              |
| Binderlösung, 7%ig   | PVDF in NMP                 | Intern            |
| Stromkollektor       | Aluminiumfolie              | Hitachi High-Tech |

**Tabelle 3: Eigenschaften der Zellkomponenten.**

| Komponente            | Eigenschaft             | Wert                          |
|-----------------------|-------------------------|-------------------------------|
| <b>Kupferfolie</b>    | Dicke                   | 9 $\mu\text{m}$               |
|                       | Zerreifestigkeit       | 300 N/mm <sup>2</sup> , 25°C  |
|                       | Reinheit                | > 99,99%                      |
|                       | Oberflchenrauigkeit Rz | < 1 $\mu\text{m}$             |
|                       | Erscheinung             | doppelseitig glatt            |
|                       | max. Ausdehnung         | 4%, 25°C                      |
| <b>Aluminiumfolie</b> | Dicke                   | 9–14 $\mu\text{m}$            |
|                       | Zerreifestigkeit       | > 50 N/mm <sup>2</sup> , 25°C |
|                       | Hrte                   | H19                           |

|                                |  |                         |
|--------------------------------|--|-------------------------|
|                                | Legierung                                  | 3003, 3004              |
|                                | Oberflächenrauigkeit Rz                    | < 1 µm                  |
|                                | Erscheinung                                | doppelseitig glatt      |
| <b>NMC622 Aktivmaterial</b>    | chemische Zusammensetzung                  |                         |
|                                | Li/(Ni+Co+Mn)                              | ≥ 100 mol%              |
|                                | Ni/(Ni+Co+Mn)                              | 58,5–61,0 mol%          |
|                                | Co/(Ni+Co+Mn)                              | 19,5–21,5 mol%          |
|                                | Mn/(Ni+Co+Mn)                              | 19,5–20,5 mol%          |
|                                | Partikelgröße                              |                         |
|                                | Mittelwert                                 | 11,0–13,0 µm            |
|                                | D10  | ≤ 6 µm                  |
|                                | D50  | ≤ 13 µm                 |
|                                | D90  | ≤ 20 µm                 |
|                                | sonstige Parameter                         |                         |
|                                | Wasseranteil                               | < 200 ppm               |
|                                | LiOH Überschuss                            | ≤ 0,3%                  |
|                                | Li <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> Überschuss | ≤ 0,2%                  |
|                                | BET Oberfläche                             | < 1,0 m <sup>2</sup> /g |
| Klopfichte                     | > 2,4 g/cm <sup>3</sup>                    |                         |
| Nominale Entladekapazität      | 175 mAh/g, 0.1C, 25°C vs. Li               |                         |
| <b>Kohlenstoff Leitadditiv</b> | BET Oberfläche                             | < 200 m <sup>2</sup> /g |
|                                | Asche Anteil                               | < 0,05%                 |
|                                | Primärpartikelgröße                        | 30–50 nm                |
|                                | Sekundärpartikelgröße                      | < 1 µm                  |
|                                | Wasseranteil                               | < 400 ppm               |
| <b>PVDF Binder</b>             | Schmelzpunkt                               | 160–170°C               |
|                                | Zersetzungstemperatur                      | > 250°C                 |
|                                | Partikelgröße                              | < 300 µm                |
|                                | Erscheinung                                | Pulver                  |
|                                | Molgewicht                                 | 0,8–1,2Mio g/mol        |
|                                | Polymerart                                 | Homopolymer             |

### **Vorschlag einer Prozesskette für den Gesamtprozess (UAP 0.2)**

In diesem Unterarbeitspaket erfolgten im Berichtszeitraum keine relevanten Aktivitäten.

## Strukturbaukasten (Arbeitspaket 1)

### **Materialbausteindesign: Kathodenherstellung mittels klassischem Schlickerverfahren (UAP 1.1)**

Zur Bereitstellung einer Referenzkathode für das Projekt 3D-SSB wurde ein klassisches Schlickerverfahren etabliert. Hierzu wurde zunächst eine 7%ige Binderlösung von Polyvinylidenfluorid (PVDF) in N-Methylpyrrolidon (NMP) angesetzt. Dazu wurden 465 g NMP in einem Metallbecher vorgelegt und mithilfe eines Dissolvers bei 1500–2000 RPM gerührt. Die Zugabe von 35 g des granulierten PVDF-Pulvers erfolgte schrittweise, um ein Verklumpen/Gelieren zu verhindern. Nach 2 h Rührzeit hatte sich das PVDF-Pulver vollständig gelöst, sodass eine hochviskose Lösung erhalten wurde. Diese Lösung wurde in ein Vorratsgefäß überführt.

*Tabelle 4: Typische Zusammensetzung der mittels Schlickerverfahren hergestellten Kathoden.*

| Einsatz                  | Zusammensetzung |        |             |
|--------------------------|-----------------|--------|-------------|
|                          | NMC622          | PVDF   | Leitadditiv |
| Referenzkathode          | 97,0 %          | 0,75 % | 2,25 %      |
| Test von Primerschichten | 97,5 %          | 0,75 % | 1,75 %      |

*Tabelle 5: Für Kathodenherstellung verwendete Gerätschaften.*

| Arbeitsschritt | Gerät                       | Hersteller             |
|----------------|-----------------------------|------------------------|
| Binderlösung   | Dissolver                   | Dispermat              |
| Wiegen         | Präzisionswaage             | Sartorius              |
| Mischen        | Speedmixer                  | Hauschild              |
| Beschichten    | Coatmaster 510              | Erichsen               |
| Rakeln         | Filmziehrahmen              | BYK                    |
| Vortrocknen    | Coatmaster 510              | Erichsen               |
| Trocknen       | Vakuumofen                  | Memmert                |
| Kalandrieren   | Heißrollpresse MSK-HRP-03D  | MTI Corp.              |
| Zellbau        | Handschuhbox, Arbeitsgas Ar | Glovebox Systemtechnik |

In einer typischen Verfahrensvariante wurden zunächst 38,8 g des Kathodenaktivmaterials NMC622 mit 0,9 g des Leitadditivs in einem Speedmixer-Becher vereinigt. Nach intensivem Schütteln wurden der Mischung ca. 60 g Zirkonoxid-Kugeln zugegeben. Es folgte ein mehrminütiger Trockenmahlschritt bei 2000 RPM. Nach Beendigung des Trockenmahlschritts wurden die Zirkonoxid-Kugeln entfernt und der homogenisierten Pulvermischung 7,0 g NMP zu dosiert. Es folgte

ein mehrminütiger Mischschritt bei variabler RPM unter Vakuum. Nach Zugabe von weiteren 4,6 g NMP wurde die gleiche Mischprozedur wiederholt. Der erhaltenen Aufschlämmung wurden anschließend 4,29 g der 7%igen Binderlösung zugegeben und abermals intensiv gemischt. Zur Entgasung des Schlickers wurde die Elektrodenmasse für 3 min unter Vakuum bei 2000 RPM gerührt. Der Feststoffanteil des Schlickers betrug 72%.

Die Beschichtung auf die Substratfolie (Aluminiumfolie mit/ohne Primerschicht) erfolgte mithilfe eines automatischen Filmziehtisches unter Nutzung eines Filmziehrahmens mit definiertem Spaltmaß als Rakel. Das Spaltmaß des Rakels wurde im Rahmen von Voruntersuchungen so ausgewählt, dass die Schichtdicke der trockenen Beschichtung in einer Flächenmasse äquivalent zu der angestrebten Flächenkapazität von 2,0–4,0 mAh/cm<sup>2</sup>, bevorzugt jedoch exakt 2,0 mAh/cm<sup>2</sup> bzw. 4,0 mAh/cm<sup>2</sup>, resultiert.

Nach der Beschichtung wurden die Kathodenschichten zunächst auf der beheizten Vakuumsaugplatte des Rakeltisches ausgeheizt, um überschüssiges NMP zu entfernen. Anschließend wurden die Schichten in einen Vakuumtrockenschrank mit Absaugung transferiert und dort über Nacht bei 120°C unter Vakuum < 10 mbar getrocknet.

Die Verdichtung der hergestellten Kathoden erfolgte nach Zuschnitt der Elektrodenblätter auf eine definierte Breite von 7 cm mittels Kalandrierens. Hierzu wurde eine Heißrollpresse auf 80°C aufgeheizt und das Spaltmaß nach Erreichen der Zieltemperatur auf 0 µm eingestellt, um den maximalen Liniendruck zu erhalten. Eine geometrische Dichte von 3,1–3,3 g/cm<sup>3</sup> (Porosität ca. 30%) wurde als Zielwert angestrebt.

Aus den kalandrierten Schichten wurden anschließend runde Elektroden mit einem Durchmesser von 16 mm ausgestanzt. Zur Charakterisierung der Homogenität der Beschichtung anhand der Parameter Schichtdicke, Flächenmasse und Flächenkapazität wurden die Werte für 10 Stanzlinge erfasst und statistisch ausgewertet. Eine relative Abweichung von ≤ 2,0% wurde als Akzeptanzkriterium gesetzt.

Zur Analyse der elektrochemischen Eigenschaften der hergestellten Kathoden wurden Halbzellen mit Lithium-Metallanode aufgebaut. Eine tiefgründige Bewertung der Performance aussichtsreicher Proben erfolgte in Vollzellen gegen Referenzanoden aus Graphit. Diese Referenzanoden wurden von einem externen Lieferanten (Custom Cells Itzehoe) bezogen. Der Aufbau der Zellen erfolgte unter Argon-Atmosphäre in einer Handschuhbox. Vor der Assemblierung der entsprechenden Testzelle wurden die verbauten Komponenten intensiv unter Vakuum getrocknet. Die Feintrocknung

der Kathodenproben erfolgte bei < 10 mbar und 120°C. Als Elektrolytsystem für die Referenzzellen wurde ein Flüssigelektrolyt genutzt.

Die genauen Parameter der Muster- und Testspezifikation für Labormusterzellen im Knopfzellformat, PAT-Zellformat sowie Pouch-Zellformat können den Ausführungen in Arbeitspaket 0 entnommen werden.

## **Entwicklung von dreidimensional strukturierten dicken Elektroden (Arbeitspaket 2)**

### ***Elektrodenherstellung für die Funktionsmuster (UAP 2.9)***

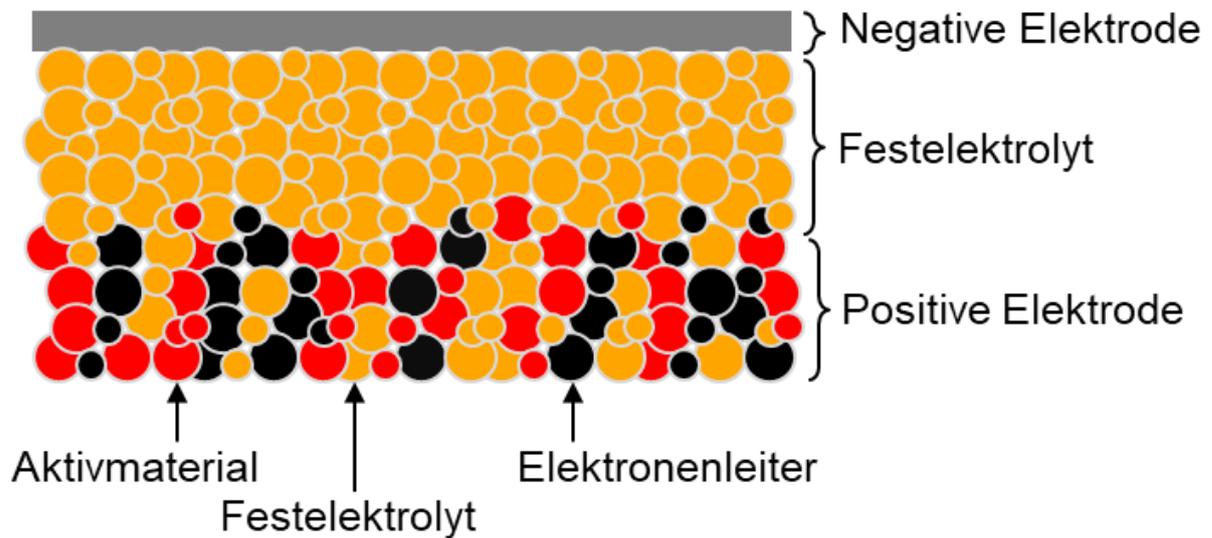
In diesem Unterarbeitspaket waren im Berichtszeitraum keine Aktivitäten vorgesehen.

## **Struktursimulation und Eigenschaftsprädiktion (Arbeitspaket 4)**

Das Ziel von AP 4 ist die Entwicklung von Simulationsumgebungen in Finite-Elemente-Methode (FEM) und Diskrete-Elemente-Methode (DEM) zur Abbildung des mechanischen Verhaltens und des Ionen- und Elektronentransports in einer hierarchisch strukturierten Elektrode.

### ***Modellbildung FEM (UAP 4.1)***

Im Berichtszeitraum wurde gemäß AP 4.1 zur Evaluation geeigneter Programme zur Simulation zunächst ein 1D-Modell einer Festkörperzelle in COMSOL Multiphysics aufgebaut. Das Modell besteht aus einer Lithiummetallelektrode als Anode, einem Festionenleiter und einer Kathode bestehend aus Aktivmaterial, Festelektrolyt und Ruß zur Verbesserung der ionischen Leitfähigkeit. Eine schematische Darstellung der modellierten Elektrode ist in Abbildung 1 gezeigt.



*Abbildung 1: Schematische Darstellung der modellierten Festkörperzelle mit Lithiummetallanode, Festelektrolyt und Kompositkathode.*

Da das Modell im ersten Schritt zur Evaluation der Simulationsumgebung aufgebaut wurde, wurden für die Parametrisierung Literaturwerte herangezogen. Als Kathodenaktivmaterial wurden Literaturwerte für NMC622 genutzt, als Festionenleiter wurden zunächst Literaturwerte für  $\text{Li}_{10}\text{GeP}_2\text{S}_{12}$  herangezogen. Als Zusammensetzung für die Kompositkathode wurde ein Aktivmaterialanteil von 60%, ein Anteil des Festionenleiters von 28% und Anteil des Leitadditivs von 12%. Die Porosität wurde entsprechend von Literaturdaten auf 13,5% festgelegt. Die verwendeten Daten wurden genutzt, um zu überprüfen, dass sowohl der Elektronen- als auch der Ionentransport korrekt abgebildet werden. Für die Kapazität der Zelle wurden 60 Ah angenommen, ein Wert, der für eine EV-Batterie repräsentativ ist.

Abbildung 2 zeigt die Entladung und Abbildung 3 die Ladung der Zelle bei C-Raten von 0.5C, 1C, 2C und 5C und jeweils noch die Leerlaufspannung beim entsprechenden Ladezustand. Für die Lade-/Entladekurven wurden ein Spannungsbereich zwischen 2,8 V und 4,2 V gewählt.

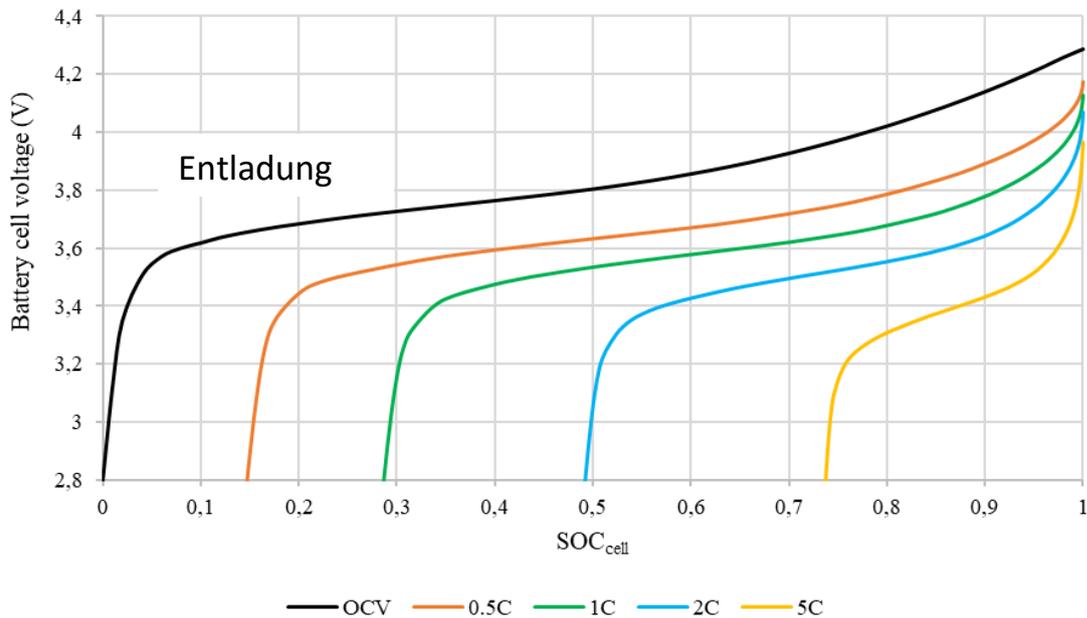


Abbildung 2: Zellspannung in Abhängigkeit vom Ladezustand der Zelle bei der Entladung mit verschiedenen C-Raten.

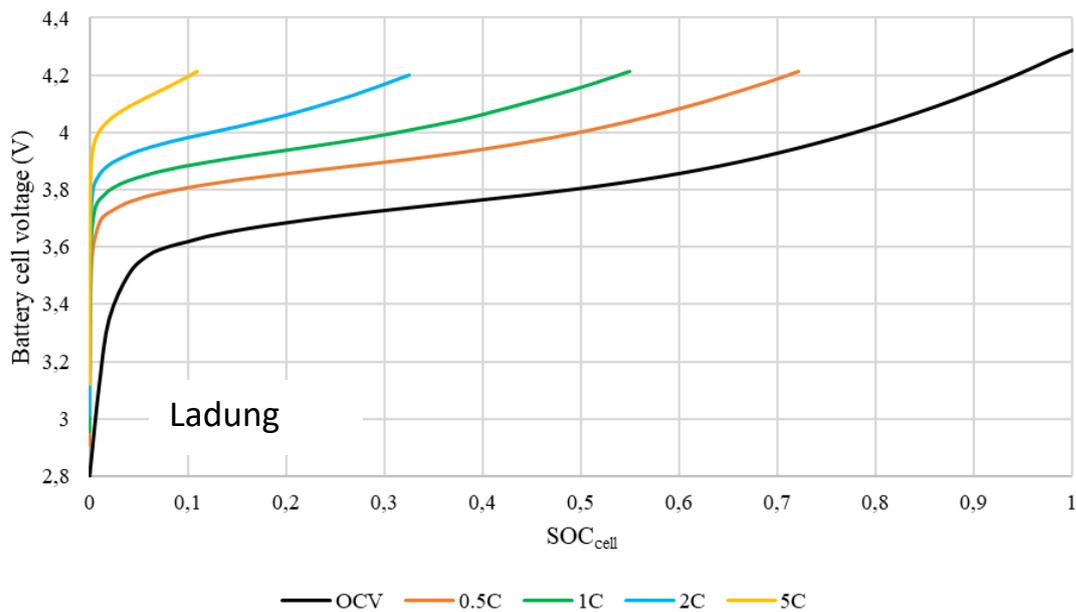


Abbildung 3: Zellspannung in Abhängigkeit vom Ladezustand der Zelle bei der Ladung mit verschiedenen C-Raten.

Erwartungsgemäß lässt sich bei höheren C-Raten nicht der volle Ladezustandsbereich ausnutzen. Bezogen auf die Kapazität bedeutet das, dass bei höheren C-Raten nicht die volle Kapazität der Zelle genutzt werden kann. Abbildung 4 zeigt die Kapazitätsmenge, die bei verschiedenen C-Raten bei der Ladung genutzt werden kann. Bei einer C-Rate von 0.5C können 43 Ah genutzt werden, bei 1C 32 Ah, bei 2C 19,5 Ah und 5 C 6,5 Ah.

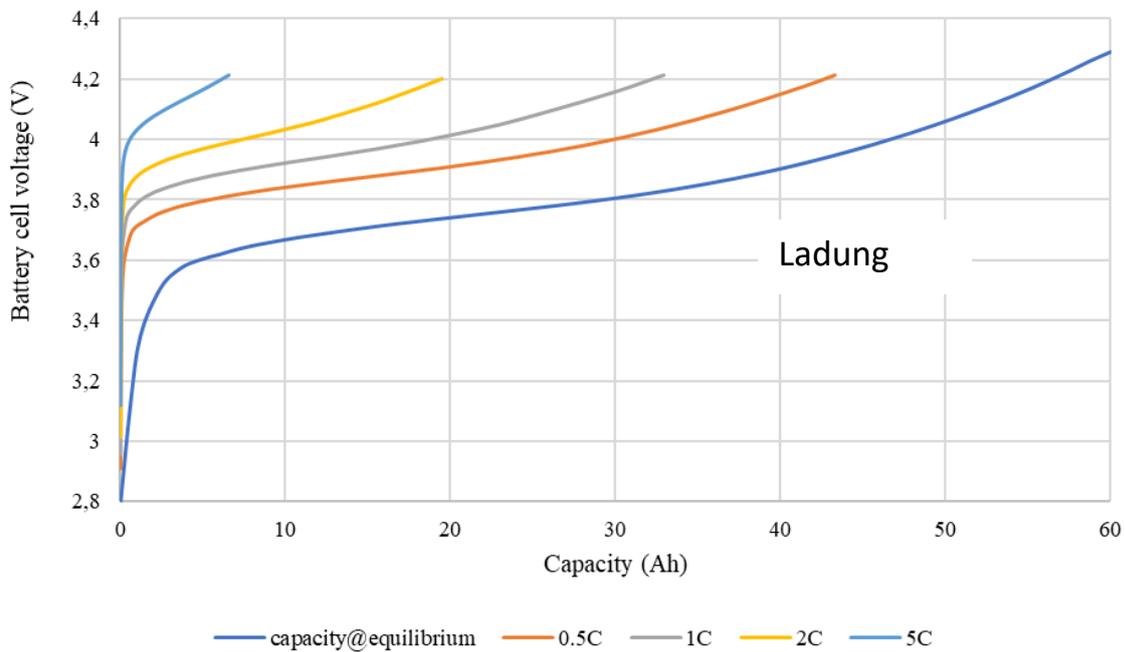


Abbildung 4: Nutzbare Kapazität bei der Ladung der Zelle mit verschiedenen C-Raten.

Zum Vergleich des Verhaltens der simulierten Festelektrolytzelle wurde die volumetrische und gravimetrische Energiedichte bei 0.5C, 1C, 2C und 5C mit den Werten einer Flüssigelektrolytzelle verglichen (s. Abbildung 5).

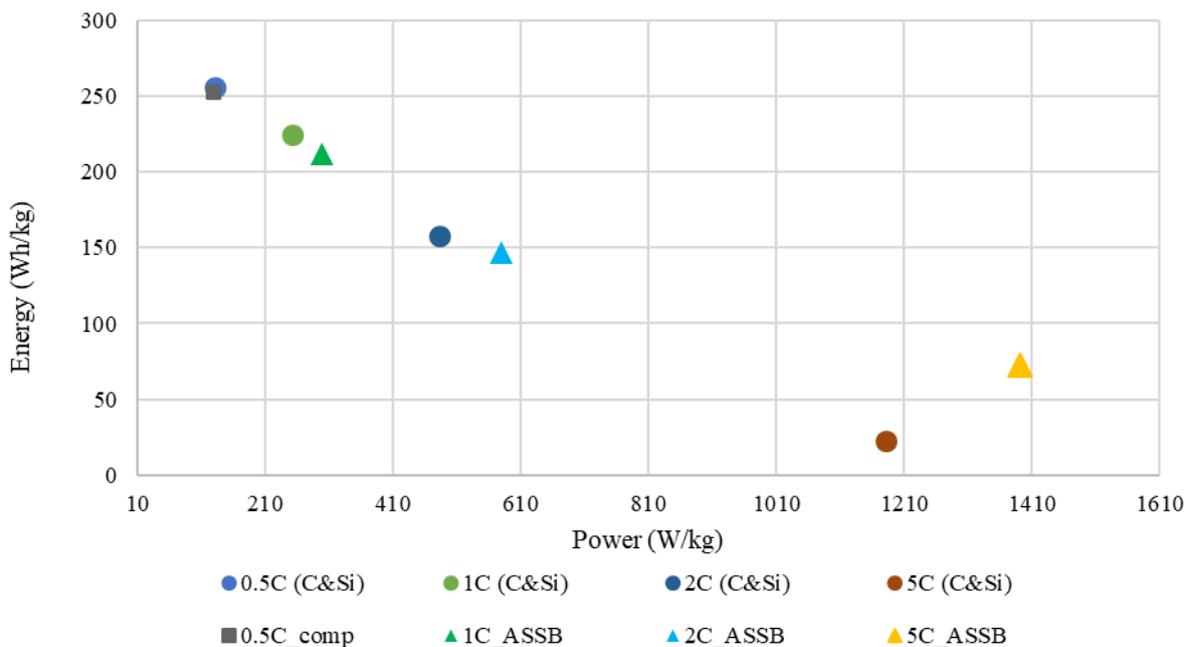


Abbildung 5: Vergleich der gravimetrischen Energiedichte von Zellen mit flüssigem und festem Elektrolyten in Abhängigkeit von der C-Rate.

Für die Flüssigelektrolytzelle wurde NMC622 als Kathodenaktivmaterial, eine Silizium-Kohlenstoffmischung als Anodenaktivmaterial und LiPF<sub>6</sub>-haltiger Flüssigelektrolyt angenommen. Die Schichtdicken waren gleich. In einem weiteren Schritt muss nun das Festelektrolytmodell mit gemessenen Werten parametrisiert werden und die Strukturierung der Elektrode simuliert werden.

#### ***Parametrierung des FEM-Modells und des DEM-Modells (UAP 4.3)***

In diesem Unterarbeitspaket waren im Berichtszeitraum keine Aktivitäten vorgesehen.

#### ***Simulation der Monoschichten (UAP 4.4)***

In diesem Unterarbeitspaket waren im Berichtszeitraum keine Aktivitäten vorgesehen.

#### ***Simulation 3D-strukturierter Elektroden (UAP 4.5)***

In diesem Unterarbeitspaket waren im Berichtszeitraum keine Aktivitäten vorgesehen.

#### ***Ableitung optimierter Elektrode (UAP 4.6)***

In diesem Unterarbeitspaket waren im Berichtszeitraum keine Aktivitäten vorgesehen.

### **Verbesserte Inaktivkomponenten (Arbeitspaket 5)**

#### ***Bindermodifikation (UAP 5.1)***

In diesem Unterarbeitspaket waren im Berichtszeitraum keine Aktivitäten vorgesehen.

#### ***Passivierung Lithium-Metallfolie (UAP 5.2)***

In diesem Unterarbeitspaket erfolgten im Berichtszeitraum keine relevanten Aktivitäten.

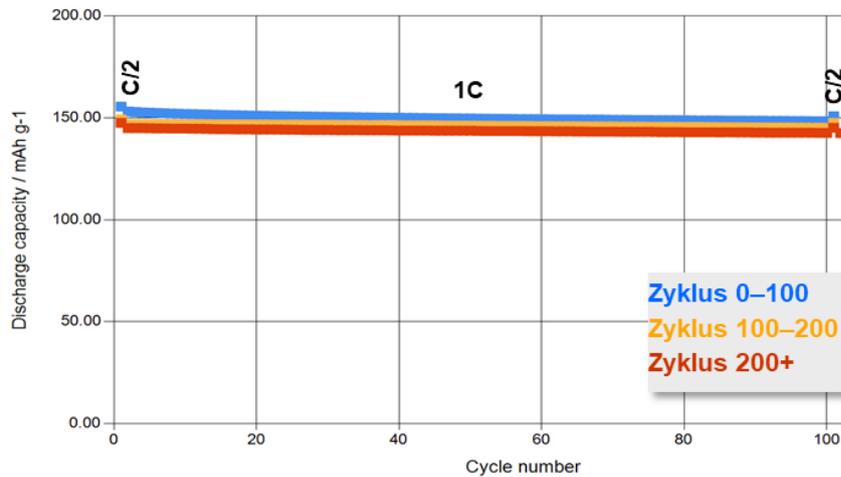
#### ***Separatorentwicklung – Applizierung dünner Feststoffelektrolyte (UAP 5.3)***

In diesem Unterarbeitspaket erfolgten im Berichtszeitraum keine relevanten Aktivitäten.

#### ***Entwicklung einer Primerschicht auf dem Kathodenstromsammler (UAP 5.4)***

Eine Primer-Funktionsschicht auf dem Kathoden-Stromsammler (Aluminiumfolie) kann dabei helfen, die Haft- und Kontakteigenschaften zur Elektrodenschicht zu steigern. Darüber hinaus kann die Korrosion der Aluminiumfolie unterbunden bzw. verlangsamt werden, da der Stromsammler durch eine dünne, aber dichte Kohlenstoffbeschichtung (Primer) gegen den Kontakt von Elektrolytkomponenten (Lösungsmittelmoleküle, Salzionen) geschützt ist.

Zur Untersuchung der Wirkung geprimerter Aluminiumfolie auf die elektrochemische Performance und Zyklenfestigkeit wurden Flüssigelektrolytzellen im Pouchformat gemäß der Spezifikation in AP0 aufgebaut. Die hierzu erforderlichen Kathodenschlicker (Verhältnis Aktivmaterial zu Inaktivmaterial von 97,5% zu 2,5%) wurden gemäß dem in AP1 beschriebenen Herstellungsverfahren gefertigt und auf drei unterschiedliche, kommerziell erhältliche Substratfolien beschichtet. Hierbei handelte es sich um doppelseitig glänzende Aluminiumfolie (Probe A [Al]), mit Kohlenstoffschlicker mikrometerskalig beschichtete Aluminiumfolie (Probe B [c-Al]) sowie Aluminiumfolie mit einer nanoskaligen Kohlenstoffbeschichtung, appliziert mittels PVD-Verfahren (Probe C [nc-Al]). Der Einfluss auf die Zyklenfestigkeit ist nachfolgend in Abbildung 6 dargestellt. Abbildung 7 veranschaulicht die Lade/Entlade-Spannungsprofile der entsprechenden Zellen nach 200, 400, 600, 800 (und 1000) Zyklen. Obwohl für alle betrachteten Substratfolien eine Anfangskapazität von ca. 152 mAh/g-NMC erzielt wird, degradieren die auf geprimerten Aluminiumfolien beschichteten Kathoden signifikant schneller als die interne Referenz (doppelseitig glänzende Aluminiumfolie 3003). Die in Abbildung 8 gezeigte Langzeitzyklisierung bestätigt diese Erkenntnis.



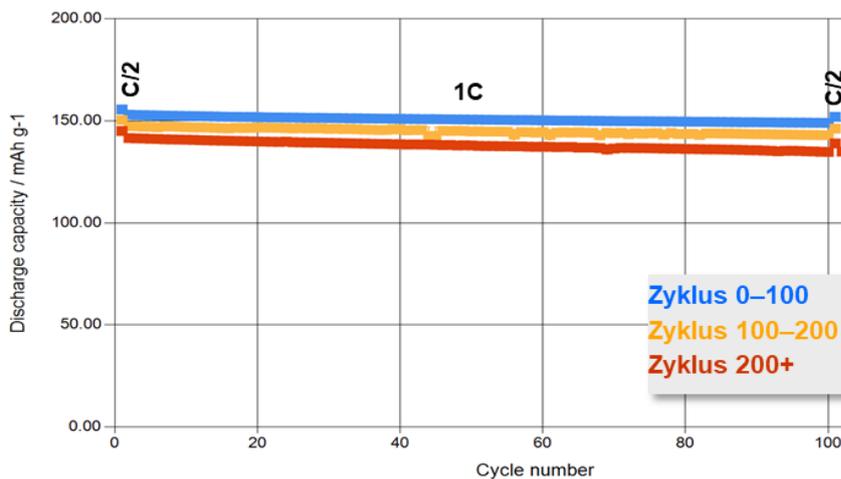
**Probe A [Al]**

Aluminiumfolie 3003

97,5% NMC622

$Q_{FI} = 2,25 \text{ mAh/cm}^2$

$\rho = 3,22 \text{ g/cm}^3$



**Probe B [c-Al]**

Aluminiumfolie mit

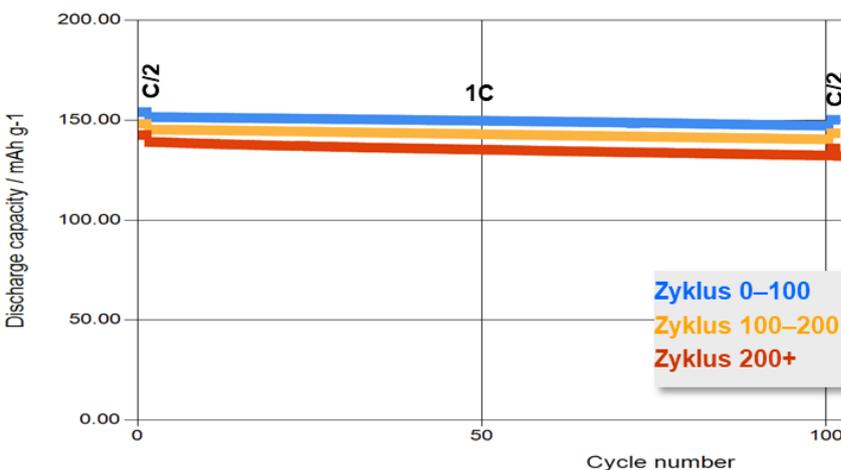
leitfähiger Kohlen-

stoffbeschichtung

97,5% NMC622

$Q_{FI} = 2,25 \text{ mAh/cm}^2$

$\rho = 3,22 \text{ g/cm}^3$



**Probe C [nc-Al]**

Aluminiumfolie mit

Nano-Kohlenstoff-

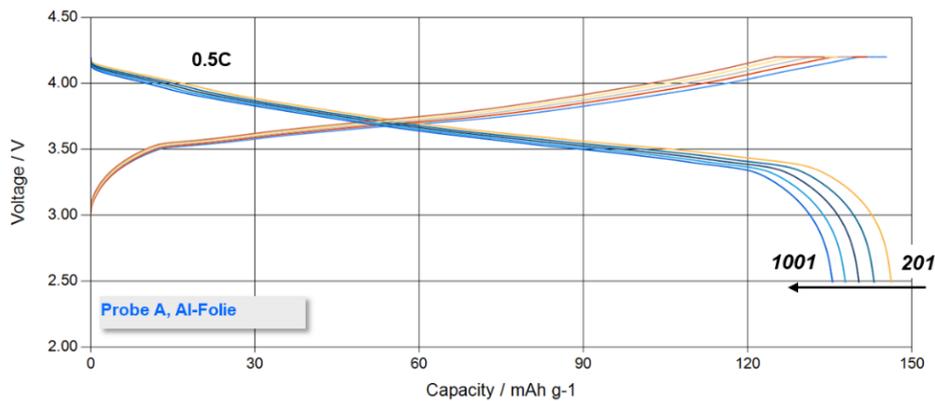
beschichtung

97,5% NMC622

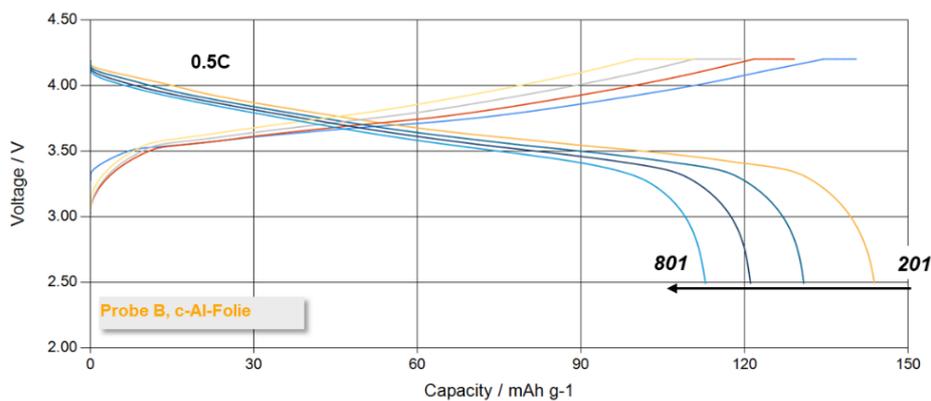
$Q_{FI} = 2,25 \text{ mAh/cm}^2$

$\rho = 3,22 \text{ g/cm}^3$

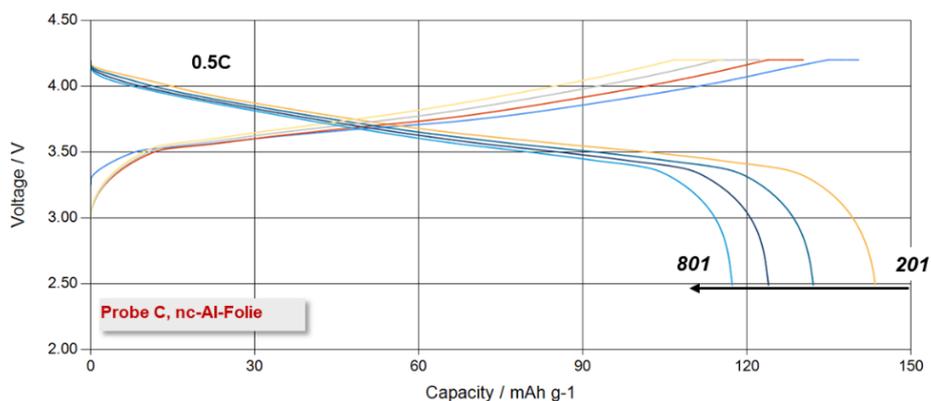
**Abbildung 6: Zyklusfestigkeit von Vollzellen mit NMC622-Kathode (97,5% Aktivmaterial, 2,25mAh/cm<sup>2</sup>) vs. Graphit-Referenzanode und Flüssigelektrolytsystem: 1,2M LiPF<sub>6</sub> in Carbonaten. Beide Elektroden wurden bei Vitesco Technologies intern entwickelt und aus Schlickern beschichtet. Es wurden drei unterschiedliche, kommerziell erhältliche Substratfolien genutzt und hinsichtlich ihrer Eignung evaluiert. Die Testparameter lauten: Zellspannung V = 4,2–2,5 V; Temperatur T = 25°C; C-Rate = 1C kontinuierlich mit C/2 Check-up. Gezeigt sind jeweils die Mittelwerte aus drei unabhängigen Pouchzellmessungen inkl. Fehlerbalken (Standardabweichung).**



**Probe A (Al)**  
Aluminiumfolie  
3003



**Probe B (c-Al)**  
Aluminiumfolie  
mit leitfähiger  
Kohlen-  
stoffbeschichtung

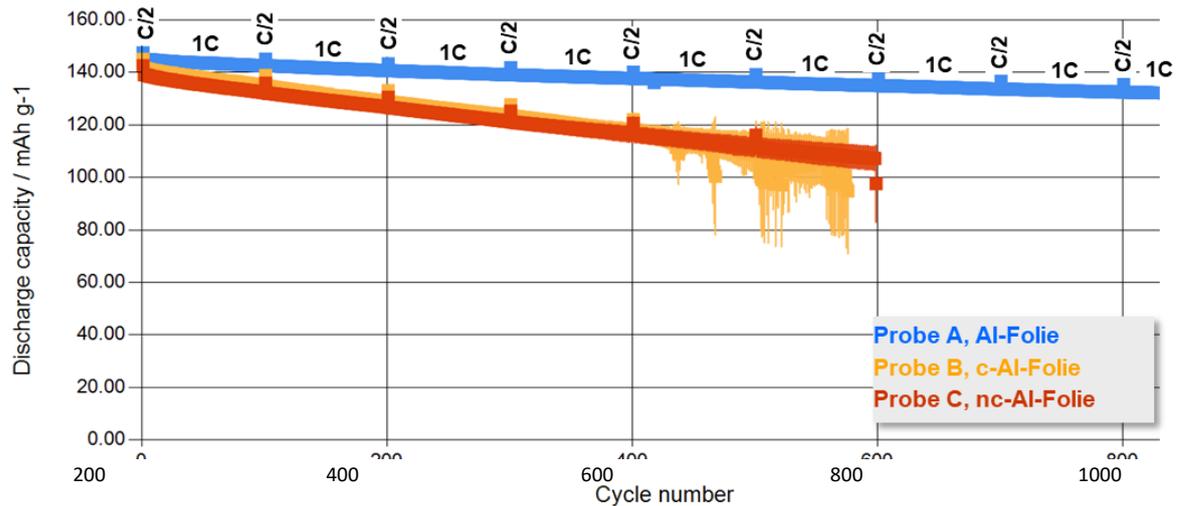


**Probe C (nc-Al)**  
Aluminiumfolie  
mit Nano-  
Kohlenstoff-  
beschichtung

**Abbildung 7: Lade-/Entlade-Spannungsprofile der Vollzellen mit NMC622-Kathode (97,5% Aktivmaterial, 2,25mAh/cm<sup>2</sup>) vs. Graphit-Referenzanode und Flüssigelektrolytsystem: 1,2M LiPF<sub>6</sub> in Carbonaten. Gezeigt sind die Check-up-Zyklen mit der Nummer: 201, 401, 601, 801 (und 1001). Für die Darstellung wurden jeweils die Daten von einer der drei unabhängig gemessenen Pouchzellen herangezogen.**

Es ist davon auszugehen, dass die Hersteller der Proben B und C Aluminiumfolie minderer Qualität bzw. ungeeigneter Legierung als Träger eingesetzt haben. Probe A, die laut Hersteller in den von Panasonic für Tesla gefertigten 2170-Rundzellen eingesetzt wird, zeigt dagegen hervorragende Stabilität gegenüber Korrosion. Aus diesem Grund wurde die Entscheidung getroffen, die

Aluminiumfolie aus Probe A auch als Referenz für 3D-SSB zu nutzen. Zur Weiterführung der Primertests wurden daher Von Ardenne Zuschnitte dieser Folie für Applizierungsversuche zur Verfügung gestellt. Die Proben mit A: reinigender Vorbehandlung, B: Primerschicht 1, C: Primerschicht 2 wurden anschließend für Tests an das iPAT übermittelt.



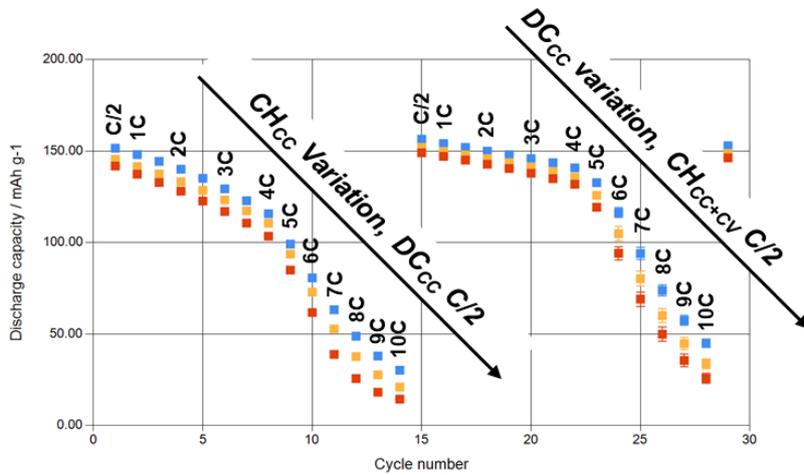
**Abbildung 8: Langzeitzyklierung als Fortsetzung von Abbildung 6: Vollzellen mit NMC622-Kathode (97,5% Aktivmaterial, 2,25mAh/cm<sup>2</sup>) vs. Graphit-Referenzanode und Flüssigelektrolytssystem: 1,2M LiPF<sub>6</sub> in Carbonaten. Die Testparameter lauten: Zellspannung V = 4,2–2,5 V; Temperatur T = 25°C; C-Rate = 1C kontinuierlich mit C/2 Check-up. Gezeigt sind jeweils die Mittelwerte aus drei unabhängigen Pouchzellmessungen inkl. Fehlerbalken (Standardabweichung).**

In Abbildung 9 sind die C-Ratentests der drei Proben zusammengefasst. Es ist erkennbar, dass die Ratenfähigkeit der Referenz-Aluminiumfolie A im Vergleich zu den Folien mit Primer über 200 Vollzyklen erheblich weniger degradiert. Die Auswirkung ist in Lade- und Entlade-Richtung ähnlich stark ausgeprägt, was auf einen gleichmäßigen Anstieg der Impedanz schließen lässt. Dieser kann nicht nur durch Korrosionseffekte und den resultierenden Verlust von Haftung (Adhäsion) und elektronischem Kontakt zustande kommen, sondern auch durch eine Akkumulation isolierender Zersetzung- und Abscheideprodukte.

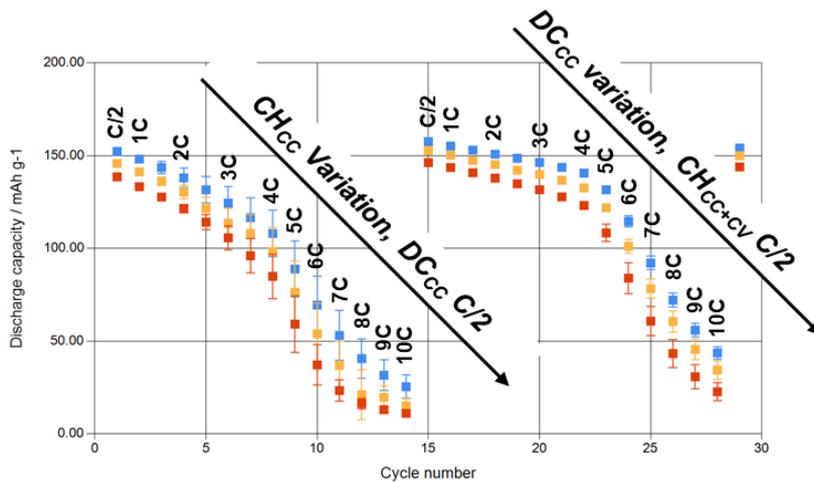
Da die in AP0 gemäß der Zellsystemauslegung von Continental spezifizierten Zielparameter für eine Automotive-taugliche BEV-Batteriezelle eine Flächenkapazität der Kathode von 4,0 mAh/cm<sup>2</sup> bei 0.1C (Zielwert bei 0.5C: 3,65 mAh/cm<sup>2</sup>) erfordern, wurden in weiterführenden Untersuchungen Kathodenschlicker auf der Referenz-Aluminiumfolie A beschichtet. Im Rahmen des Projektauftrags zur Prozessskalierung wurden hierfür neben Laborprozessen auch Untersuchungen im

Technikumsmaßstab bei einem externen Partner durchgeführt. Die in Abbildung 10 gezeigten vorläufigen Ergebnisse zeigen die Performance der mittels skaliertes Prozesse hergestellten NMC622-Kathode mit einem Aktivmaterialanteil von 97% entsprechend der Zieldefinition. Im Kontrast zur guten Zyklenfestigkeit und hervorragenden Reproduzierbarkeit der Ergebnisse von vier unabhängigen Labormuster-Pouchzellmessungen ist zu erkennen, dass die Ratenfähigkeit eine Herausforderung darstellt. Hierbei ist insbesondere die Laderichtung limitierend. Um die gewünschte Schnellladefähigkeit zu erreichen, ist daher eine weitere Optimierung der Ionen-/Elektronenleitfähigkeit erforderlich.

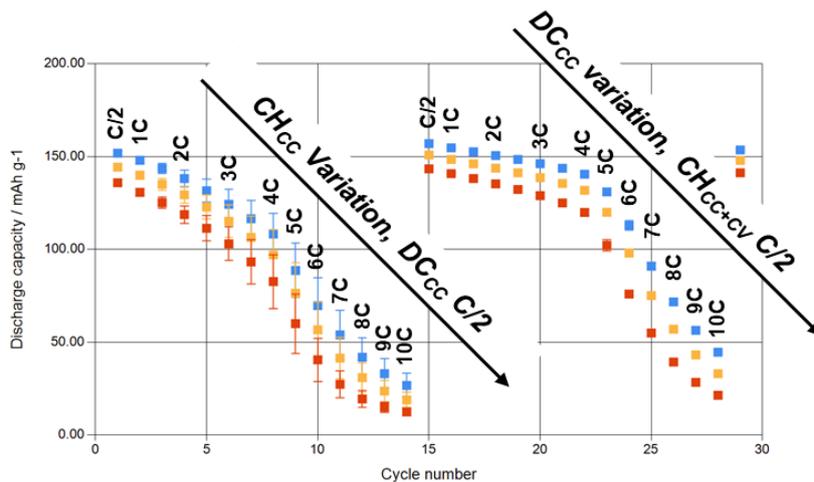
**Probe A (Al)**  
Aluminiumfolie  
3003



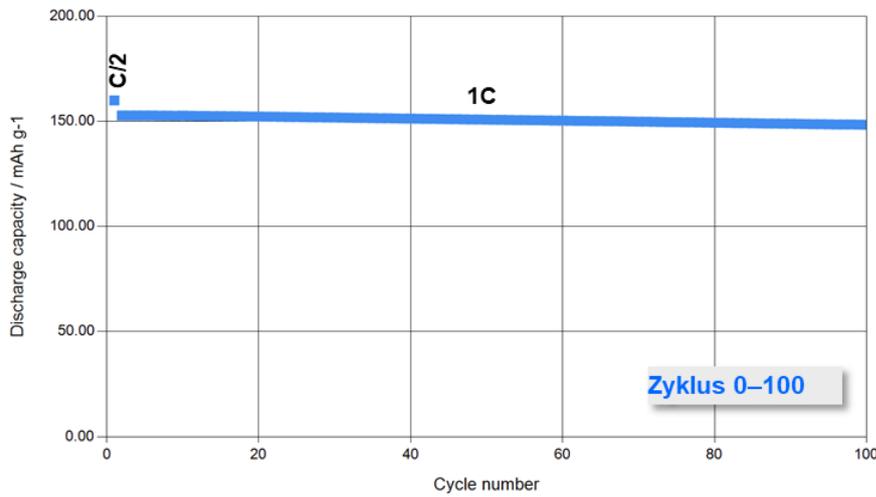
**Probe B (c-Al)**  
Aluminiumfolie mit  
leitfähiger Kohlen-  
stoffbeschichtung



**Probe C (nc-Al)**  
Aluminiumfolie mit  
Nano-Kohlenstoff-  
beschichtung

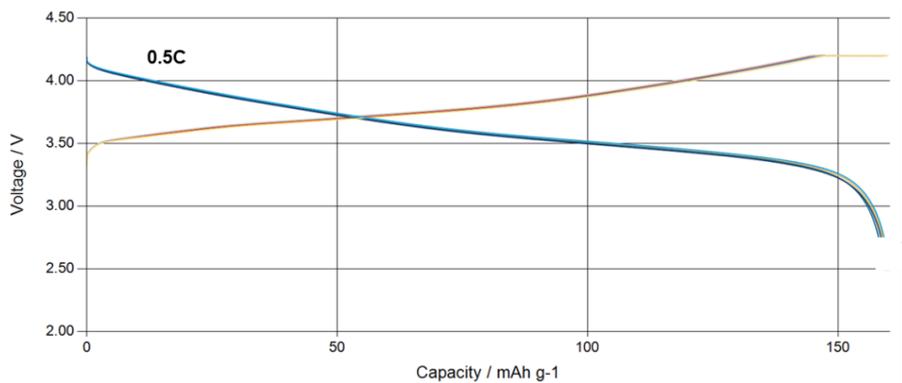


**Abbildung 9:** C-Ratenfähigkeit von Vollzellen mit NMC622-Kathode (97,5% Aktivmaterial, 2,25mAh/cm<sup>2</sup>) vs. Graphit-Referenzanode und Flüssigelektrolytsystem: 1,2M LiPF<sub>6</sub> in Carbonaten. Die gezeigten Tests wurden mit der Untersuchung der Zyklenfestigkeit gekoppelt und durchgeführt vor Zyklus 1 (blau), nach Zyklus 100 (gelb) sowie nach Zyklus 200 (rot). Die Testparameter lauten: Zellspannung V = 4,2–2,5 V; Temperatur T = 25°C; C-Rate = 1C kontinuierlich mit C/2 Check-up. Gezeigt sind jeweils die Mittelwerte aus drei unabhängigen Pouchzellmessungen inkl. Fehlerbalken (Standardabweichung).

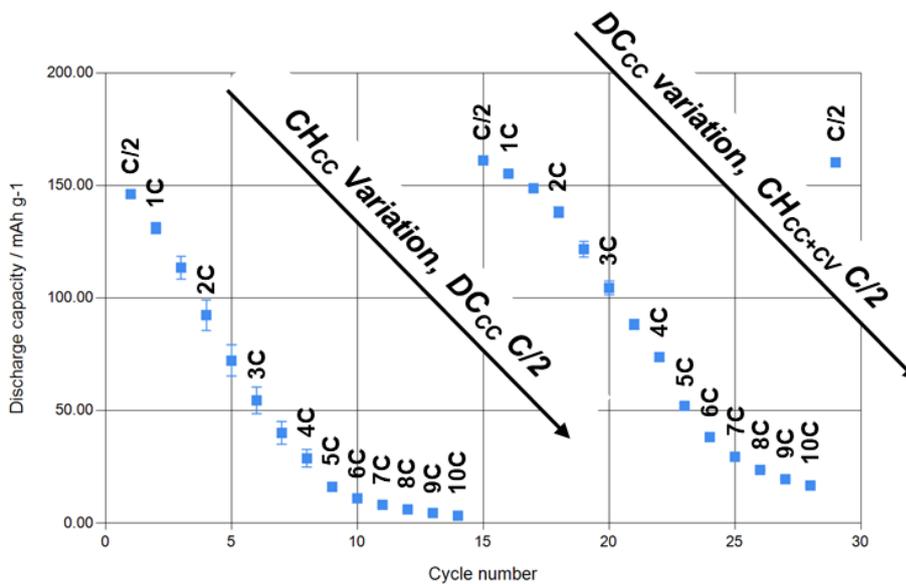


### Zyklusfestigkeit

Aluminiumfolie 3003  
97% NMC622  
 $Q_{FI} = 4,00 \text{ mAh/cm}^2$   
 $\rho = 3,16 \text{ g/cm}^3$



### Lade-/Entlade-Spannungsprofile



### C-Ratenfähigkeit

Kopplung mit Test der Zyklusfestigkeit, durchgeführt vor Zyklus 1 (blau)

Abbildung 10: Elektrochemische Charakterisierung von Vollzellen mit NMC622-Kathode (97% Aktivmaterial, 4,00mAh/cm<sup>2</sup>) vs. Graphit-Referenzanode und Flüssigelektrolytsystem: 1,2M LiPF<sub>6</sub> in Carbonaten. Die Testparameter lauten: Zellspannung V = 4,2–2,5 V; Temperatur T = 25°C; C-Rate = 1C kontinuierlich mit C/2 Check-up. Gezeigt sind jeweils die Mittelwerte aus vier unabhängigen Pouchzellmessungen inkl. Fehlerbalken (Standardabweichung).

## **Entwicklung verbessertes Zellsystem (Arbeitspaket 6)**

### ***Grundaufbau Zellsystem (UAP 6.1)***

Der Grundaufbau des Zellsystems Labormusterzelle sowie jegliche projektrelevanten Anforderungen an die Dimensionierung der Funktionsmuster im Labormaßstab (Knopfzelle, PAT-Zelle, einlagige Pouchzelle) sowie Industriemustermaßstab (mehrlagige Pouchzelle), deren Elektrodencharakteristik/-auslegung sowie jegliche Anforderungen an die elektrochemischen Eigenschaften (C-Ratenperformance, Zyklenfestigkeit, Alterung etc.) wurden in Arbeitspaket 0 sowie dem Begleitdokument „Muster- Testspezifikation Labormusterzellen 3D-SSB<sup>14</sup>“ zusammengefasst.

### ***Alternative Feststoffelektrolyte (UAP 6.2)***

In diesem Unterarbeitspaket erfolgten im Berichtszeitraum keine relevanten Aktivitäten.

### ***Grenzschichtbetrachtung zur Identifikation von Transportlimitierungen (UAP 6.3)***

In diesem Unterarbeitspaket waren im Berichtszeitraum keine Aktivitäten vorgesehen.

## **Analytik und Produktcharakterisierung (Arbeitspaket 7)**

Dieses Arbeitspaket hat im Rahmen der Projektaktivitäten von Continental einen entwicklungsbegleitenden Charakter. Zur Unterstützung der internen Tätigkeiten in AP1 sowie AP5 wurde insbesondere auf die Bereiche Standardcharakterisierung der Elektrode (UAP 7.2) sowie Zellbau und Charakterisierung (Labormaßstab) (UAP 7.4) zurückgegriffen. Die Ergebnisse sind den entsprechenden unterstützten Arbeitspaketen zu entnehmen. Die Spezialcharakterisierung der Elektroden (UAP 7.3) konnte im betrachteten Berichtszeitraum nicht etabliert werden. Der Zellbau und Charakterisierung des Funktionsmusters (UAP 7.5) war im betrachteten Berichtszeitraum nicht vorgesehen.

---

<sup>14</sup> VT, [190830 Muster- Testspezifikation Labormusterzellen 3D-SSB.pdf](#), 2019

## **Prozesskette und Verwertung der Ergebnisse (Arbeitspaket 8)**

Aufgrund der Entscheidung der Continental AG zum Ausstieg aus der Batteriezellentwicklung und -fertigung hat der Bewertungskatalog für die Einzelprozesse (UAP 8.1) mit Fokus auf die Material-, Precursor- und Elektrodenherstellung seine Relevanz verloren. Eine Bewertung der Einzelprozesse sowie der Prozessskalierbarkeit auf industrielle Produktion (UAP 8.2), die Erstellung eines Fabrikkonzepts (UAP 8.3) sowie die Verwertung der Ergebnisse (UAP 8.4) inkl. einer Einbettung der Festkörperbatterie in die gesamte Wertschöpfungskette waren aufgrund des frühen Austrittszeitpunkts nicht möglich. Die genannten Aktivitäten waren zudem für den Berichtszeitraum nicht vorgesehen.

Der Bericht umfasst daher insgesamt keine relevanten Aktivitäten in diesem Arbeitspaket. Eine Prüfung der Patentierbarkeit der Einzelprozesse sowie deren Verknüpfung zu einem Gesamtkonzept über den Status der Antragsphase des Projekts hinaus ist nicht erfolgt.

## **2. Wichtigste Positionen des zahlenmäßigen Nachweises**

Gemäß Zuwendungsbescheid wurde eine Förderquote von 40% bei einem Gesamtbudget des Teilvorhabens von EUR 1.892.707 bewilligt. Im Projekt wurden lediglich Personalkosten und Reisekosten verwendet, welche dem Verwendungsnachweis zu entnehmen sind. Insgesamt wurden 42% des Jahresbudget 2019 und knapp 13% des Gesamtbudgets genutzt. Aufgrund der Mitteilung zur Nichtumsetzung einer Batteriezellproduktion auf Basis der Festkörper-Zelltechnologie bei Vitesco Technologies in der 2. Jahreshälfte 2019 wurden der Ausstieg aus dem Projekt eingeleitet und keine neuen Tätigkeiten mehr aufgenommen.

0837 Personalkosten: 46% der für das Jahr 2019 budgetierten Personalkosten wurden eingesetzt und damit im Berichtszeitraum fast planmäßig verwendet.

0838 Reisekosten: Im Berichtszeitraum gab es zwei Konsortialtreffen für die 8% der Reisekosten verwendet wurden

0813 Materialkosten: Materialkosten sind in der kurzen Projektlaufzeit nicht angefallen. Planmäßig war die Anschaffung von Material ab der zweiten Jahreshälfte 2019 angedacht. Aufgrund des Projektausstiegs wurden keine Materialanschaffungen mehr durchgeführt.

0850 sonstige Vorhabenkosten: Sonstige Vorhabenkosten sind nicht angefallen, da ab Bekanntwerden des Projektausstiegs keine weiteren Tätigkeiten mehr erfolgt sind.

### **3. Notwendigkeit und Angemessenheit der geleisteten Arbeit**

Für Vitesco Technologies war die Untersuchung einer Strukturierung von Kathode und Passivierung von Lithiummetall-Folie ein Puzzleteil in der Evaluierung einer mögliche Zellfertigung mit Festkörperelektrolyten. Lithiummetall als Anode versprach Batteriezellen mit höherer Energiedichte. Feststoffelektrolyte versprachen neue Designmöglichkeiten und Energiedichteoptimierung. Um ausreichende Lebensdauer zu erhalten schien eine Strukturierung der Kathode als sinnvoll. Die Arbeiten von Vitesco Technologies zur Spezifizierung und Charakterisierung der Schichten waren notwendig und angemessen, um gefestigte Aussagen zur Einsetzbarkeit dieser Technologie zu erhalten und somit eine mögliche Zellfertigung vorzubereiten.

Die in Abschnitt II. 1. vorgestellten Ergebnisse zeigen auf, dass Vitesco Technologies und seine Projektpartner zahlreiche Erkenntnisse während der kurzen Laufzeit des Projekts gewinnen konnten. Die abgerechneten Aufwendungen entsprechen der geleisteten Arbeiten und werden auf dem Hintergrund der Ergebnisse als angemessen angesehen.

### **4. Voraussichtlicher Nutzen, insbesondere Verwertbarkeit des Ergebnisses im Sinne des fortgeschriebenen Verwertungsplans**

Mit dem Beschluss der Nichtumsetzung einer Batteriezellproduktion auf Basis der Festkörper-Zelltechnologie ist die Verwertbarkeit der Arbeitsergebnisse von 3D-SSB für die Vitesco Technologies nicht mehr gegeben. Aus diesem Grund wurde das Projekt vorzeitig zum 31.12.2019 beendet. Die gewonnenen Ergebnisse und die Definition der Rezeptur können den verbliebenen Projektpartnern als Basis für eine Fortsetzung des Projekts dienen. Für eine direkte kommerzielle Verwertung sind die Ergebnisse zum Austrittsdatum noch in einem zu frühen Stadium.

**5. Während der Durchführung des Vorhabens dem  
Zuwendungsempfänger bekannt gewordener Fortschritt auf dem  
Gebiet des Vorhabens bei anderen Stellen**

Im Berichtszeitraum wurden keine relevanten Informationen bekannt.

**6. Erfolgten oder geplante Veröffentlichungen des Ergebnisses nach  
Nr. 11**

Im Berichtszeitraum wurden keine Schutzrechte angemeldet oder sonstige Veröffentlichungen (auf Tagungen, in Journalen etc.) getätigt.

## Berichtsblatt

|   |   |
|---|---|
| 1. ISBN oder ISSN<br>-  | 2. Berichtsart (Schlussbericht oder Veröffentlichung)<br>Schlussbericht |
| 3. Titel<br>3D-SSB: 3D-Strukturierung von Solid-State Kathoden zur Erhöhung der Leistungs- und Energiedichte  |   |
| 4. Autor(en) [Name(n), Vorname(n)]<br>Sören Thieme, Miriam Steinhauer, Thomas Echelmeyer, Julia Rieche, Patrick Murmann, Markus Schweizer-Berberich   | 5. Abschlussdatum des Vorhabens<br>31.12.2019                           |
|   | 6. Veröffentlichungsdatum<br>-  |
|   | 7. Form der Publikation<br>Broschüre                                    |
| 8. Durchführende Institution(en) (Name, Adresse)<br>Vitesco Technologies Germany GmbH, Zitadellenweg 28a, 13599 Berlin  | 9. Ber. Nr. Durchführende Institution<br>-                              |
|   | 10. Förderkennzeichen<br>03XP0202A                                      |
|   | 11. Seitenzahl<br>28  |
| 12. Fördernde Institution (Name, Adresse)<br><br>Bundesministerium für<br>Bildung und Forschung (BMBF)<br>53170 Bonn  | 13. Literaturangaben<br>14  |
|   | 14. Tabellen<br>5   |
|   | 15. Abbildungen<br>10   |
| 16. Zusätzliche Angaben<br>-  |   |
| 17. Vorgelegt bei (Titel, Ort, Datum)<br>Bundesministerium für Bildung und Forschung, Bonn, 20.07.2020  |   |
| 18. Kurzfassung<br><p>Technologisch versprechen All-Solid-State Ansätze höchste Energiedichten, die praktisch bisher jedoch noch nicht erreicht werden. Bei den klassischen Flüssigelektrolytsystemen sind die energiedichte- und leistungsbestimmenden Parameter sowie die Transportprozesse der Elektronen und Lithiumionen mittlerweile gut verstanden, dies gilt nicht für All-Solid-State Systeme. Mit steigendem Elektrodenenergiegehalt, respektive Flächenbeladung, wird die Ausbildung der Leitpfade immer essenzieller für die generelle Funktionsfähigkeit und Schnelladefähigkeit der Batterien. Mit Simulationsmodellen für die Zelle kann diese besser verstanden werden und darauf aufbauend designt werden.</p> <p>Die Fertigung von All-Solid-State Zellen stellt nach wie vor eine große Herausforderung dar. Geeignete Herstellungsprozesse sowie darauf aufbauende Prozessketten, die eine wirtschaftliche Produktion von All-Solid-State Zellen gewährleisten, werden identifiziert. Eine 3D Strukturierung der Elektrode soll die Nachteile in einer Festkörperzelle ausgleichen.</p> <p>Für die durchgeführten Arbeiten wird eine Rezeptur und eine Prozessbeschreibung gegeben. Die Zellen werden hinsichtlich Belastbarkeit und Zyklenfähigkeit charakterisiert.</p> |   |
| 19. Schlagwörter<br>Lithium-Ionen Zelle, Lithium-Metall Zelle, Feststoffelektrolyt, Kompositkathode, Beschichtungstechnologie, Strukturierung   |   |
| 20. Verlag<br>-   | 21. Preis<br>-  |