

Produktivitätssteigerung und Ausschussreduktion in der Batteriezellfertigung

Effizientes Kalandrieren von Batterieelektroden

F. Kößler, A. Diener, A. Mayr, C. Willuhn, R. Daub, J. Fleischer, A. Kwade

ZUSAMMENFASSUNG Derzeit ist die Fertigung von Lithium-Ionen-Batteriezellen nahezu über die komplette Prozesskette stark ausschussbehaftet. Eine Reduktion des Produktionsausschusses reduziert sowohl den Ressourcenverbrauch als auch die Kosten und steigert die Produktivität der gesamten Produktion. Exemplarisch für den Kalandrierprozess wird aufgezeigt, wie mittels DEM-Simulationen und Sensorintegration in Brownfield- und Neuanlagen Fehlerbilder erkannt und reduziert werden können.

STICHWÖRTER

Batteriefertigung, Messtechnik, Automatisierung

Efficient calendering of battery electrodes

ABSTRACT Currently, the production of lithium-ion battery cells is subject to high levels of scrap across almost the entire process chain. A reduction in production scrap reduces both the consumption of resources and costs, and increases the productivity of the entire production process. Using the calendering process as an example, the paper shows how DEM simulations and sensor integration can be used to detect and reduce defect patterns in brownfield and new plants.

1 Motivation

Lithium-Ionen-Batteriezellen bilden derzeit die Basis für die zunehmende Elektrifizierung zahlreicher Anwendungen und kommen beispielsweise in Unterhaltungselektronik, Power-Tools und batterieelektrischen Fahrzeugen zum Einsatz. Bei batterieelektrischen Fahrzeugen entfallen circa 30 % der Gesamtfahrzeugkosten auf die Traktionsbatterie, wobei deren Preis stark von den Kosten der einzelnen Batteriezellen abhängt [1]. Eine Kostenparität zwischen Fahrzeugen mit Verbrennungsmotor und batterieelektrischen Antriebsstrang ist auf dem europäischen Markt derzeit unter anderem aufgrund der hohen Batteriezellkosten noch nicht gegeben und kann potenzielle Käufer an dem Kauf eines Elektroautos hindern. Ein wesentlicher Hebel um die Herstellkosten von Batteriezellen zu senken, stellt eine Reduktion des Ausschusses dar. Im Vergleich zu anderen produzierenden Gewerben ist die Ausschussrate der Batteriezellfertigung erheblich höher und beläuft sich in den ersten Betriebsjahren einer Gigafactory auf 15 % bis 30 % und pendelt sich nach circa 5 Jahren bei etwa 10 % ein [2]. Insbesondere beim Prozessschritt des Kalandrierens können auftretende Fehlerbilder in Form von Wellen- und Faltenbildung und eine ungleichmäßige Elektrodenstärke zu erhöhtem Ausschuss führen, weswegen im Folgenden dieser Prozessschritt näher betrachtet wird.

2 Kalandrieren von Batterieelektroden

Das Kalandrieren stellt den vierten Prozessschritt in der Batteriezell- beziehungsweise Elektrodenfertigung dar. Zuvor werden die elektrochemischen Aktivmaterialien mit Additiven und

Lösungsmittel versetzt, gemischt und anschließend durch ein Nassbeschichtungsverfahren auf eine metallische Substratfolie beschichtet. Hierbei wird zwischen einer intermittierenden Beschichtung, bei der zwischen den Beschichtungsflächen jeweils ein unbeschichteter Abstand zur späteren Kontaktierung verbleibt, und einer kontinuierlichen Beschichtung unterschieden. Im industriellen Maßstab hat sich aufgrund der höheren Prozessgeschwindigkeiten die kontinuierliche und beidseitige Beschichtung im Rolle-zu-Rolle-Verfahren durchgesetzt. Zur späteren Kontaktierung der kontinuierlichen Beschichtung wird mindestens ein Randbereich nicht beschichtet. Beim nachfolgenden Trocknen wird der Beschichtung das Lösungsmittel entzogen, so dass die Schichtdicke im Vergleich zur Nassfilmdicke reduziert wird. Aufgrund der Form der Aktivmaterialpartikel weist die Beschichtung nach dem Trocknen eine poröse Struktur auf, die für die spätere Elektrolytbenetzung im Rahmen des Zell-Finishing noch zu hoch ist. Es bedarf einer Verdichtung der Batterieelektroden, die im Rahmen des Prozessschrittes des Kalandrierens mittels eines Walzprozesses durchgeführt wird, vgl. **Bild 1**. Dadurch kann die Elektrodenporosität je nach Zellspezifikation von 44 % nach dem Trocknen auf 18 % bis 35 % reduziert werden [3]. Hierdurch wird auch die Elektrodendicke reduziert, so dass durch das Kalandrieren die volumetrische Energiedichte einer Batteriezelle gesteigert wird. Ebenfalls verändert sich die Oberflächenrauigkeit der Elektrode, so dass mit zunehmender Verdichtung der Glanz der Elektroden zunimmt. Die Elektrodendicke nach dem Kalandrieren d_{kal} kann im Gegensatz zur Porosität, die oftmals mittels Quecksilberporosimetrie im Labor gemessen wird, auch in der Fertigung kostengünstig mittels einer Messuhr gemessen werden, weswegen diese Größe als Qualitätspara-

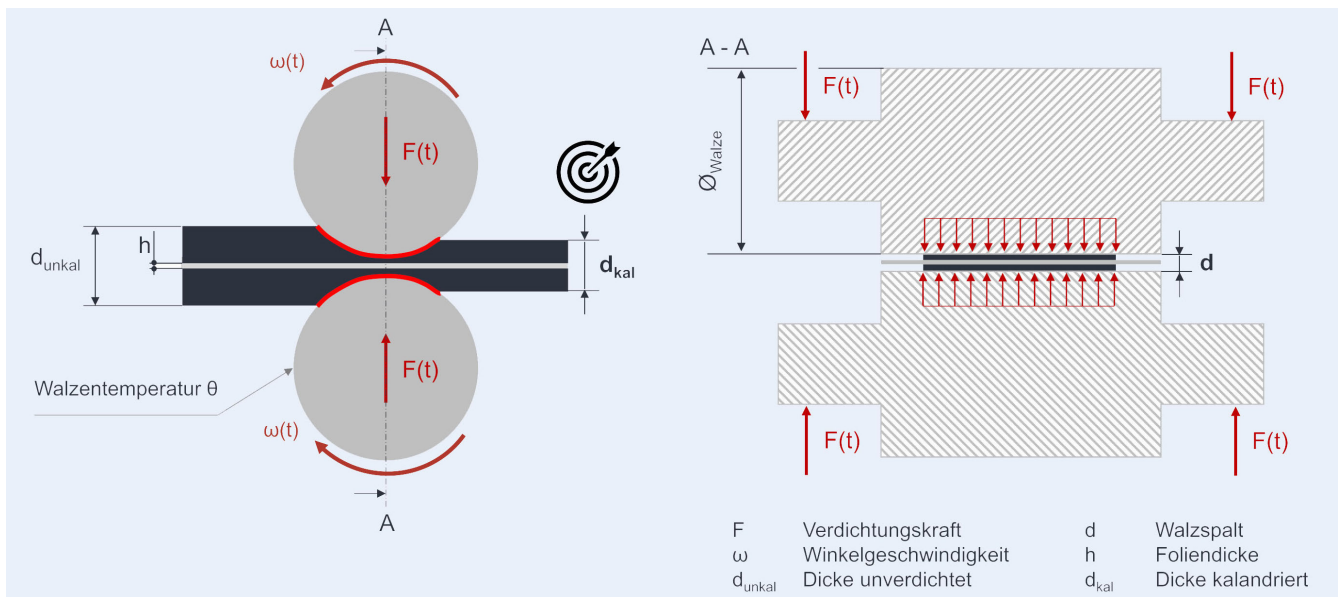


Bild 1. Schematische Darstellung des Kalandrierprozesses von Batterieelektroden. Grafik: wbk

meter fungiert. In der Praxis wird die Elektrodenstärke im einstelligen μm -Bereich toleriert, da bereits eine Dickenschwankung von wenigen Mikrometern einen signifikanten Einfluss auf die elektrochemischen Eigenschaften der späteren Batteriezelle hat [4].

Während des Kalandrierens weist die Elektrodenbeschichtung ein elastoplastisches Materialverhalten auf, so dass die kalandrierte Elektrodenstärke d_{kal} größer ist als der Kalandrierwalzspalt d . Die notwendige Differenz zwischen d_{kal} und d ist abhängig von der Zellchemie, der unkalandrierten Elektrodenstärke d_{unkal} , der Stärke der Substratfolie h , der Temperatur der Kalandrierwalzen θ , der Verdichtungskraft F und der Winkelgeschwindigkeit der Walzen ω [5; 6]. In der Praxis wird dabei iterativ und erfahrungsbasiert der Kalandrierwalzspalt solange variiert, bis die gewünschte Zielelektrodenstärke erreicht wird. Der Spaltabstand von industriellen Batteriekalandern wird dabei indirekt geregelt, indem entweder der über kapazitive Sensoren gemessene Abstand der abgedrehten Walzenschultern im Randbereich der Walzen [6] oder die Position der Walzenlagerung beziehungsweise der verbauten Hydraulikzylinder als Regelgröße verwendet wird. Um Dickenabweichungen der kalandrierten Elektroden und somit Ausschuss bei diesen Regelungsarten frühzeitig zu erkennen beziehungsweise zu vermeiden, bedarf es einer regelmäßigen Messung der Elektrodenstärke und bei Bedarf einer Anpassung der Führungsgrößen. Im industriellen Umfeld wird dabei sowohl die Elektrodenstärkenmessung als auch das Anpassen der Führungsgrößen des Kalanders manuell durchgeführt.

Andere Fehlerbilder, die neben einer unzulässigen Elektrodenstärke insbesondere bei kontinuierlich beschichteten Elektroden mit seitlicher Ableiterfolie beim Kalandrieren auftreten, sind eine Faltenbildung im unbeschichteten Ableiterbereich und eine Wellenbildung der Elektrode, die beim anschließenden Slitten der Elektrode zu einem Säbeleffekt führen kann [7; 8]. Ursache hierfür ist der in Bild 1 auf der rechten Seite dargestellte Kraftfluss, der rein über die beschichtete Fläche in die Batterieelektrode eingeleitet wird. Neben der gewünschten Verdichtung der Elektrodenbeschichtung kann dieser Krafteintrag auch aufgrund des Überschreitens der Fließspannung zu einer Längung der beschichteten metallischen Substratfolie in Längsrichtung führen

[9]. Da Kathoden üblicherweise stärker verdichtet werden als Anoden, treten diese Effekte insbesondere beim Kalandrieren von Kathoden auf Basis von Lithium-Nickel-Mangan-Kobaltoxiden (NMC) auf. Mögliche Kompensationsmaßnahmen sind eine Erhöhung der Walzentemperatur oder eine Vorerwärmung der Batterieelektrode durch eine größere Umschlingung um eine Kalandrierwalze [9].

3 Erkennung und Reduktion von Ausschuss beim Kalandrieren

3.1 Sensorintegration zur Erfassung von Fehlerbildern

Insbesondere bei den industriellen Kalandriergeschwindigkeiten im Bereich von 30 m/min bis 100 m/min ist es aufgrund der hohen Materialkosten insbesondere an rohstoffarmen Produktionsstandorten wie Deutschland unabdingbar, entstehende Fehlerbilder unmittelbar zu erkennen, um entsprechende Gegenmaßnahmen zielgerichtet und unverzüglich einleiten zu können [10]. Im Folgenden werden entsprechende Inline-Sensorsysteme vorgestellt, die sowohl in Bestandskalander nachgerüstet als auch in Neuanlagen direkt integriert werden können.

Zur Inline-Dickenmessung wurden in der Vergangenheit oftmals Lasertriangulationspunktsensoren eingesetzt. Diese Sensoren kommen insbesondere bei kalandrierten Kathoden an ihre Grenzen, da derartige Elektroden infolge der Verdichtung eine glänzende Oberfläche aufweisen. In Kombination mit einer Wellenbildung führt dies zu großen Streulichteinflüssen, die zu einem großen Messrauschen führen können. Aus diesem Grund wurden im Rahmen dieser Arbeit an zwei Bestandskalandern und einer Neuanlage konfokal-chromatische Sensoren zur Dickenmessung integriert. Diese Sensoren sind weniger empfindlich gegenüber Streulicht und kommen auch mit glänzenden Batterieelektroden zurecht. Bild 2a zeigt den Aufbau am Bestandskalander des wbk Instituts für Produktionstechnik, bei dem das Sensorpaar in einen C-Bügel aus Hartgestein integriert wurde, an dem zuvor ein Lasertriangulationssensor befestigt war. Konkret wurden „Precitec DPS“ Sensorköpfe mit einem Messbereich von 3 mm, einer

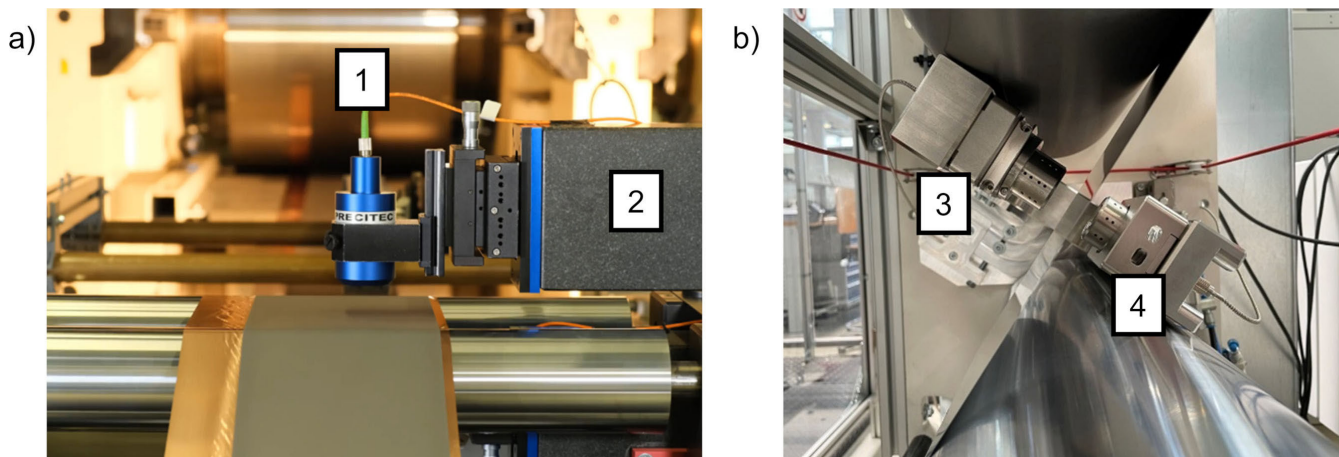


Bild 2. a) Elektrodenendickenmessung am KIT mittels konfokal-chromatischem Sensorpaar (1) und C-Bügel aus Granit (2). Foto: wbk in Zusammenarbeit mit Precitec; b) Integration einer Dickenmessung basierend auf einem konfokal-chromatischen Sensorpaar (3) und C-Bügel aus austenitischem Edelstahl (4) innerhalb der Zugentkopplung nach dem Walzspalt. Grafik: iw b

axialen Auflösung von 8 nm und einer Linearität von 990 nm eingesetzt. Zur Inline-Messung der Schichtdicke an der Neuanlage des iw b - Instituts für Werkzeugmaschinen und Betriebswissenschaften wurden die konfokal-chromatischen Sensoren „CL-S015“ der Firma Keyence verwendet, vgl. Bild 2b. Diese besitzen eine Auflösung von $0,25\ \mu\text{m}$ sowie eine Linearität von $\pm 0,35\ \mu\text{m}$. Der Lichtpunktdurchmesser der Sensorköpfe beträgt $10\ \mu\text{m}$.

Aufgrund dieser hohen Auflösung reagieren derartig genaue Sensorköpfe sensibel auf Störgrößen wie Schwingungen und Temperaturschwankungen [10]. Daher ist es zu empfehlen, die Sensoren möglichst schwingungsentkoppelt zum Walzenstuhl und Hydraulikaggregat zu integrieren. C-Bügel aus Granit eignen sich besonders aufgrund der Dämpfungseigenschaften des Materials und der geringen thermischen Ausdehnung. Bei der Verwendung von metallischen Sensorhaltern können durch eine regelmäßige Kalibrierung oder ein Temperaturmodell thermische Einflüsse auf das Messergebnis reduziert werden. Der am iw b integrierte C-Bügel wurde aus austenitischem Edelstahl gefertigt und berücksichtigt durch diese Konstruktion mögliche Wärmeausdehnungen des Bügels. Durch die Integration des Sensorpaares in der Zugentkopplung nach dem Walzspalt ist die Dickenmessung vom Walzwerk schwingungsentkoppelt. Gleichzeitig ermöglicht die Zugentkopplung die Einstellung einer höheren Bahnspannung, um eine ruhige Bahnführung der Elektrode zu erreichen. Dadurch wird ein Einfluss von Elektrodendefekten sowie einer unruhigen Bahnführung auf das Messergebnis reduziert [10]. In der Praxis zeigt sich, dass sich die optisch gemessene Elektrodenstärke oftmals von einer mittels Messuhr taktile gemessenen Elektrodenstärke unter anderem aufgrund des unterschiedlichen Einflusses der Oberflächenrauheit der Elektroden auf das Messergebnis unterscheidet. Bei einer taktilen Elektrodenstärkenmessung hängt zudem das Messergebnis noch vom verwendeten Messeinsatz ab [11]. Um eine bestmögliche Übereinstimmung zwischen taktiler und optischer Elektrodenstärkenmessung zu erhalten, bietet es sich daher an, die optische Dickenmessung mittels einer taktilen Referenzdickenmessung an einer bereits auf Zieldicke kalandrierten Elektrode zu kalibrieren.

Die bereits erwähnten Fehlerbilder, wie zum Beispiel Elektrodenwellungen oder Wrinkles, können mithilfe von Lasertriangulationssensoren inline überwacht werden [9; 10; 12]. Hierfür kom-

men unterschiedliche Sensortypen zum Einsatz, um die jeweiligen Anforderungen hinsichtlich der Auflösung und des Messbereichs der Fehlerbilder abdecken zu können. Zur Detektion der typischerweise wenige Millimeter großen Wrinkles im Randbereich am Übergang zwischen beschichteter und unbeschichteter Substratfolie wurden zwei Lasertriangulationssensoren vom Typ „LJ-X-8060“ von Keyence eingesetzt. Die allgemeine Elektrodenwellung – mit einer Höhengröße im Bereich von Millimetern beziehungsweise Zentimetern – wurde beispielsweise mit dem Lasertriangulationssensor vom Typ „LJ-X-8400“ beziehungsweise „LJ-X-8900“ inline gemessen, wobei die Wahl des Messkopfes jeweils abhängig war von der definierten maximalen Elektrodenbreite [13]. Die Anpassung der Messtechnik an variierende Elektrodenbreiten wurde an der Bestandsanlage des wbk und der Neuanlage am iw b durch präzise justierbare Linearachsen berücksichtigt. Bild 3 zeigt den schematischen Aufbau der Sensorintegration am iw b als CAD-Konstruktion.

Die integrierte Messtechnik ermöglicht die geometrischen Deformationen der Elektrodenoberfläche inline zu überwachen. Der Fokus liegt auf der Analyse der Fehlerbilder der Elektrodenwellung, Falten am Beschichtungsrand und des Fehlerbilds der Wrinkles in Form von Höhenbildern. Hierfür wurden verschiedene Kennzahlen identifiziert, mithilfe derer die Intensität der Fehlerbilder quantifiziert werden kann. Dies umfasst zum Beispiel die Quantifizierung der allgemeinen Elektrodenwellung mittels dem Defect Evaluation Index (DEI), der die Differenz des höchsten und tiefsten Punktes der Elektrodenwellung bezogen auf eine Referenzlänge darstellt, und der Elektrodenlängung in Prozent. Weiterführende Informationen zur Auswertung der Sensorrohreignisse und zur Berechnung quantitativer Kennzahlen finden sich in [10] und [13].

3.2 Visualisierung von Fehlerbildern mittels eines Dashboards

Zur gezielten Unterstützung des Anlagenpersonals bei einer effizienten und ausschussminimierten Produktion werden die erfassten und ausgewerteten Sensor- und Anlagendaten in Form eines Dashboards visualisiert [13]. Dieses kann beispielsweise durch eine modulare Implementierung an variierende Produktionsumgebungen angepasst beziehungsweise um nachträglich inte-

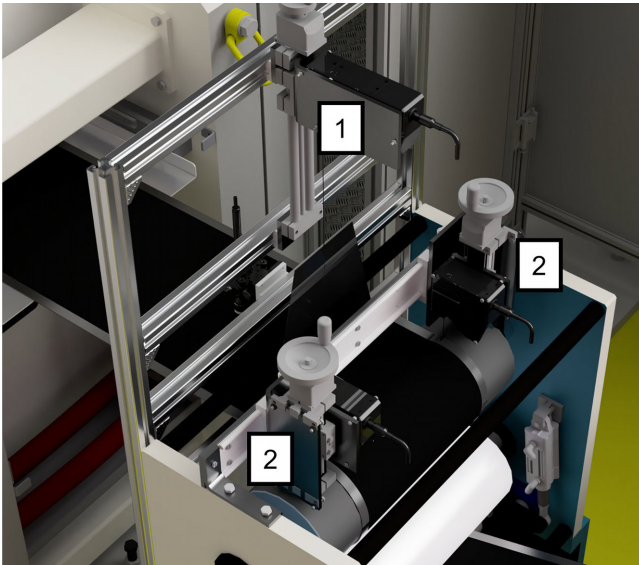


Bild 3. Schematische Darstellung der Integration der Inline-Messtechnik zur Fehlerbild-Überwachung an der Kalandrieranlage vom Typ „GKL600“ der Firma Saueressig am iwB: Messposition 1 stellt die Messung der Elektrodenwellung mittels Sensortyp „LJ-X-8400“ dar, Messposition 2 hingegen die Wrinkle-Überwachung durch zwei Sensoren vom Typ „LJ-X-8060“. Foto: iwB

grierte Sensoreinheiten ergänzt werden. Das am iwB implementierte Dashboard stellt die Schnittstelle zwischen dem Benutzer und dem digitalen Abbild der Kalandrieranlage dar. Um kurze Reaktionszeiten des Benutzers zur Anpassung des Prozesses zu erreichen, stellt das Benutzerinterface echtzeitnah sämtliche Prozessdaten der Kalandrieranlage und der angebotenen Sensoreinheiten dar. Die Benutzeroberfläche, dargestellt in **Bild 4**, als eine Art digitales Abbild der Kalandrieranlage wurde in Form einer HTML-basierten Website über einen Webserver auf dem Desktop-PC an der Anlage bereitgestellt. Alle Prozess- und Sensordaten werden im laufenden Betrieb in einer lokalen Datenbank gesichert. Alle dafür zugrunde liegenden Funktionseinheiten für die Kommunikation zwischen den Sensoreinheiten und der Kalandrieranlage wurden mithilfe von Python-Skripten programmiert. Die Benutzereinheit wurde in „NodeRED“, einem flussbasiertes Entwicklungswerkzeug, implementiert. Die NodeRED-Erweiterung bietet ein responsives Webdesign, welches den Aufruf in Webbrowsern unterschiedlicher Art und auf unterschiedlichen Endgeräten erlaubt. Die Benutzeroberfläche ist in mehrere Seiten aufgeteilt, die durch Anklicken der Seitenliste ausgewählt werden können. Folgende Seiten sind in der Benutzeroberfläche integriert:

- Übersicht,
- Daten und
- Produktion.

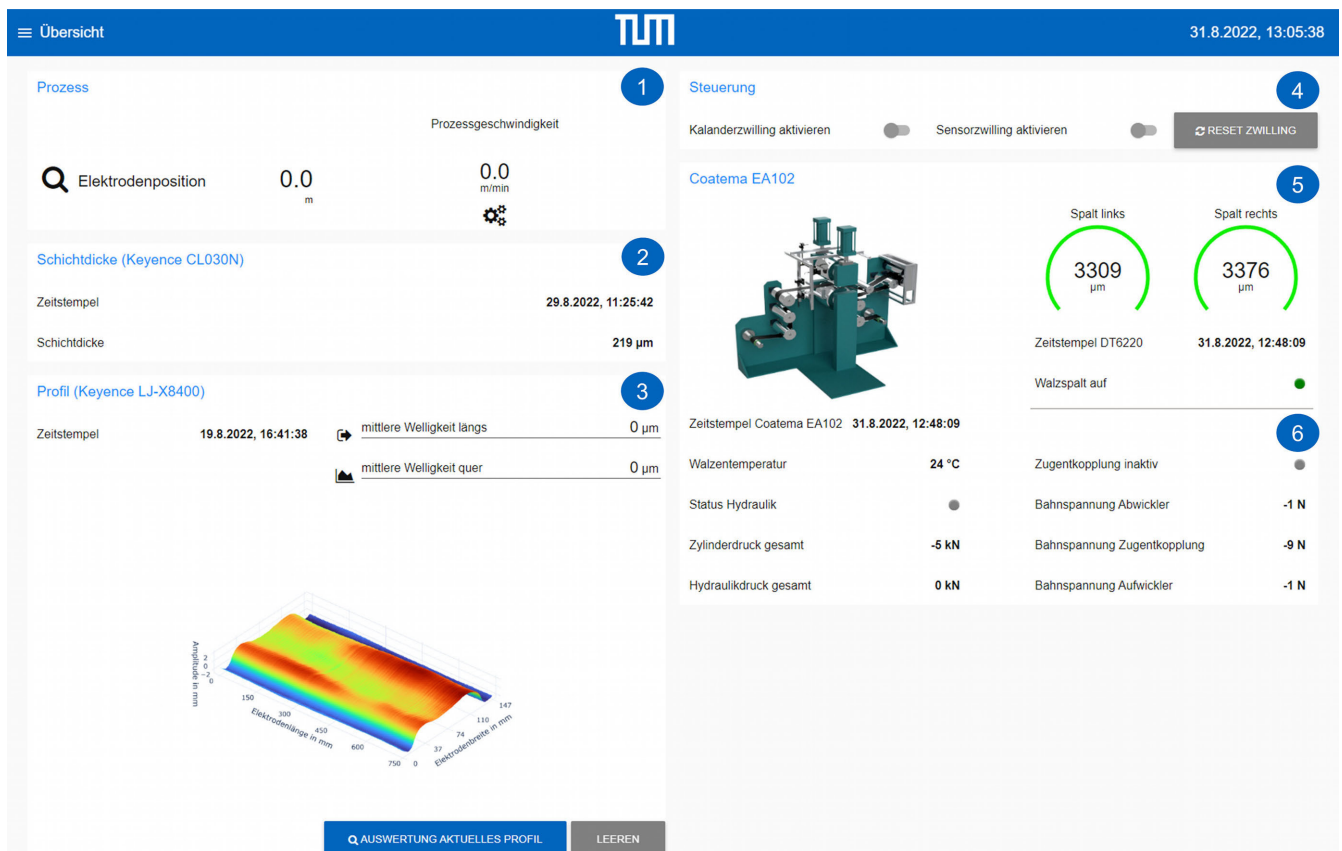


Bild 4. Auszug der Seite „Übersicht“ in der Benutzeroberfläche. Dargestellt sind (1) die Daten des Prozesses, (2) die Daten zur Schichtdicke, (3) die Höhenbild-Auswertung der Elektrodenentopologie, (4) die Steuerung der Benutzeroberfläche, (5) die Daten zum Spalt und (6) die Daten zur Kalandrieranlage. Grafik: iwB

Die Übersichtsseite enthält alle relevanten Sensor-, Anlagen- und Prozesswerte, die Steuerung des Dashboards sowie die erweiterte Auswertung der aufgezeichneten Fehlerbilder in Form der Elektrodenwellung. Dabei sind grundsätzlich alle Funktionen in eigene Bereiche aufgeteilt. Besonders relevante Datenwerte, wie der Meterzähler des aktuell zu bearbeitenden Elektroden coils und die Prozessgeschwindigkeit (1) sowie der Spalt (3), werden dem Bediener dargestellt. Durch die einfache Darstellung der relevanten Prozessgrößen kann dieser mit geringen Reaktionszeiten eine Anpassung der Prozessparameter bei Abweichung vom jeweiligen Soll vornehmen. Weiterhin sind die Schichtdicke (2), relevante Anlagenwerte (4) und die erweiterte Auswertung der Elektrodentopographie (5) in der Übersichtsseite dargestellt. Die Steuerung einzelner Datenaufzeichnungen und Sensoren ist im oberen, rechten Bereich (6) der Benutzeroberfläche positioniert worden und durch einen Schiebeschalter steuerbar. Sämtliche Knöpfe und Schalter sind in einer für die jeweilige Funktionen einheitlichen Logik gestaltet worden. So werden Schiebeschalter durch die Möglichkeit der Darstellung des aktuellen Zustandes für die Steuerung durch den Bediener eingesetzt, wohingegen Knöpfe für einmal zu betätigenden Funktionen, wie die Ausführung von Python-Skripten, verwendet werden. Die Steuerung der Höhenbildauswertung (5) wurde ebenso wie das Zurücksetzen aller Funktionen (6) über eine Knopfbetätigung implementiert.

4 Optimierung des Kalandrierprozesses mittels DEM-Simulation

Die vorgestellte Erfassung von Fehlerbildern mittels Inline-Sensoren und die Darstellung der aufbereiteten Ergebnisse in einem Dashboard ermöglichen entstehenden Ausschuss in der Produktion schnell zu erkennen, um Gegenmaßnahmen zu ergreifen. Um bereits präventiv ausschussminimale Prozessfenster zu identifizieren, kann der Kalandrierprozess beziehungsweise das Verhalten der Batterieelektrode mittels der Diskreten-Elemente-Methode (DEM) simuliert werden. Hierbei werden die einzelnen Partikel der Beschichtung als diskrete Elemente modelliert, so dass ohne ausschussbehaftete experimentelle Versuche und ohne dazugehörige Anlagenbelegungszeiten Parameterfenster virtuell angefahren werden können. Dadurch kann effizient untersucht werden, wie die Kalandrierung die partikuläre Mikrostruktur der Elektroden beeinflusst. Besonders interessant ist dabei die Simulation von verschiedenen Linienlasten oder Spaltweiten, die erforderlich sind, um die gewünschten Elektrodenichten zu erreichen. Diese Simulationsergebnisse ermöglichen es, an der realen Anlage die Anzahl der notwendigen Iterationen zur Einstellung geeigneter Anlagenparameter zu reduzieren, so dass die Zielelektroden dicke schneller und mit weniger Ausschuss in Form von zu dick oder zu dünn kalandrierten Elektroden erreicht wird. Analysen der Mikrostrukturen des DEM-Produktzwilings erlauben zudem Rückschlüsse auf die elektrische und ionische Leitfähigkeit der so virtuell kalandrierten Elektroden. Insbesondere im Rahmen der Entwicklung neuer Batteriezellspezifikationen können so vielversprechende Zieldicken bereits in der virtuellen Welt ausgewählt und die Anzahl der physikalischen Kalandrierversuche reduziert werden.

Die Vorgehensweise zur Erstellung eines solchen virtuellen Produktzwilings sieht im ersten Schritt die Erzeugung einer partikulären Mikrostruktur auf Basis der Elektroden Eigenschaften in der Simulationsumgebung „LIGGGHTS“ vor. In diesem Beitrag

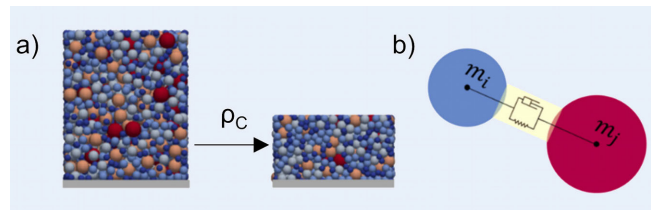


Bild 5. a) erzeugte Partikelstruktur zur Darstellung des Aktivmaterials NMC in der Kathode. b) schematische Darstellung des Bondmodells. Grafik: iPAT

handelt es sich um eine NMC-Kathode, sodass hier das Aktivmaterial NMC als eine Vielzahl runder Partikel mit der richtigen Partikelgrößenverteilung zufällig in einem Simulationsbereich verteilt wird. Die Größe dieser Simulationsdomäne wurde als das 10-fache der Größe des größten Aktivmaterialpartikels gewählt, da Vorstudien gezeigt haben, dass dieses Verhältnis zu einer kleinstmöglichen aber immer noch repräsentativen Simulationsdomäne führt. Je größer eine Simulationsdomäne, desto besser bildet sie die dazustellende Mikrostruktur ab, während die Simulation dann allerdings mehr Rechenzeit benötigt. Der in der Simulation sichtbare Bereich der Elektrode hat in der x-y-Grundfläche das Abmaß $150\ \mu\text{m} \times 150\ \mu\text{m}$, die Höhe z der richtigen Kathode und ist in x- und y-Richtung mit periodischen Rändern versehen, um eine unendlichen Breite simulieren zu können. Zwischen den Aktivmaterialpartikeln werden zylindrischen Brücken erstellt, die das Inaktivmaterial darstellen und entsprechend dem Volumen des Leitadditivs und Binders eingefügt werden [14]. Die obere Kalandrierwalze wird in dem virtuellen Modell mittels einer Platte dargestellt. Diese Platte bewegt sich von oben senkrecht auf das Partikelbett und kompaktiert die erstellte Mikrostruktur bis zur gewünschten Spannung oder Spaltweite. **Bild 5 a** zeigt die zu Anfang erstellte und die kompaktierte Mikrostruktur und **Bild 5 b** zeigt die eingefügten zylindrischen Brücken, die die passiven Materialien darstellen. Kontaktkräfte zwischen den Aktivmaterialpartikeln werden über das Thornton-Ning Modell berechnet [15] und die durch die Brücken übertragenen Kräfte und Momente sind in [16] beschrieben. Weitere Details zum Simulationsaufbau können vorherigen Veröffentlichungen entnommen werden [14; 17].

Die Simulation kann kraft- oder spaltgesteuert erfolgen, sodass die gewünschten Kalandrierkräfte beziehungsweise Kalanderspaltweite erreicht werden, bevor sich die obere Platte wieder senkrecht nach oben bewegt. **Bild 6** zeigt den Verlauf der Schichtdicke über die Kalanderspannung der spaltgesteuerten Kalandriersimulation, und vergleicht diese mit den diskreten Werten der experimentellen Kalandrierung. Die experimentellen Spaltweiten wurden durch die Inline-Messung aufgezeichnet [6].

Die Ergebnisse zeigen, dass das Modell bei spaltgesteuerter Fahrweise in der Lage ist, die maximalen Spannungen innerhalb der Standardabweichung des Experiments zu reproduzieren. Die finalen Schichtdicken von Experiment und Simulation können dem Graphen entnommen werden. Mit einer Abweichung von nur 0,4 % bis 2,4 % können die finalen Schichtdicken und somit die Dichten der kalandrierten Kathoden bei vorgegebenen Realspalt vorhergesagt werden. Das Modell ermöglicht es somit, im Umkehrschluss zu bestimmen, welche Kalanderspaltweite oder Linienlasten angefahren werden müssen, um eine Kathode auf eine gewünschte Dichte zu kalandrieren.

Die aus der Kalandriersimulation resultierenden Mikrostrukturen können dann auf elektrische Leitfähigkeit und Li-Ionen

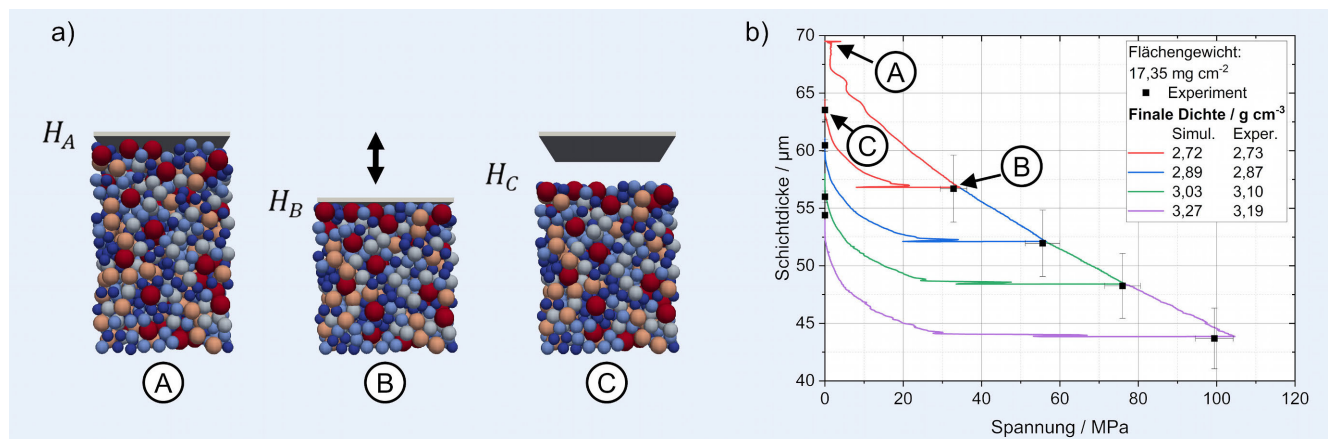


Bild 6. a) Darstellung der Mikrostruktur im Verlauf der Kalandriersimulation mit Ausgangshöhe H_A , Höhe H_B im kleinsten Kalanderspalt und der finalen Beschichtungsdicke H_C nach Relaxierung der kompaktierten Schicht. b) Ergebnisse der Simulation als Auftragung der Beschichtungsdicke über den Kalandrierdruck. Punkt A, B und C entsprechen den schematisch gezeigten Kalandrierschritten. Grafik: iPAT

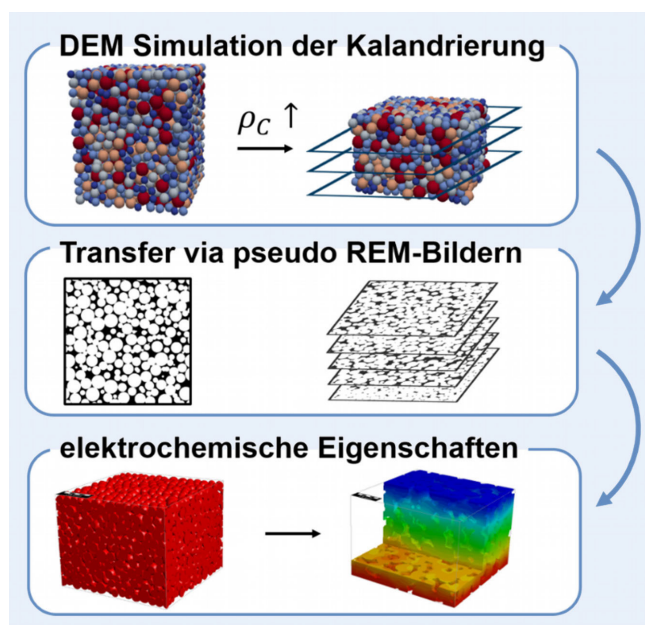


Bild 7. Schematische Darstellung des Arbeitsablaufs für den Import der mittels DEM simulierten kalandrierten Partikelstruktur in die Analysesoftware „GeoDict“ unter anderem zur Bestimmung der elektrischen Leitfähigkeit. Grafik: iPAT

Diffusion untersucht werden, welche Indikatoren für die spätere elektrochemische Performance darstellen. Eine möglichst hohe elektrische und ionische Leitfähigkeit sind unter anderem für die Schnellladefähigkeit der Batterie und die Nutzbarkeit der gesamten Kapazität ausschlaggebend. **Bild 7** zeigt den hierfür erarbeiteten mehrschrittigen Arbeitsablauf. Ausgehend aus dem in der Software LIGGGHTS modellierten dreidimensionalen DEM-Modell der verdichteten Elektrode werden mittels eines Python-codes 2D Schnittbilder entlang der Höhe der kalandrierten Partikelstruktur erstellt. Diese erstellten Pseudo-REM-Bilder enthalten allerdings nur Aktivmaterialpartikel, da die Inaktivmaterial-Brücken in der DEM-Software LIGGGHTS als virtuelle Kräfte und nicht als diskrete Partikel modelliert werden. Zur Untersuchung der elektrischen Leitfähigkeit und der Li-Ionen Diffusion wird die Software „GeoDict“ verwendet, in der die zuvor erstell-

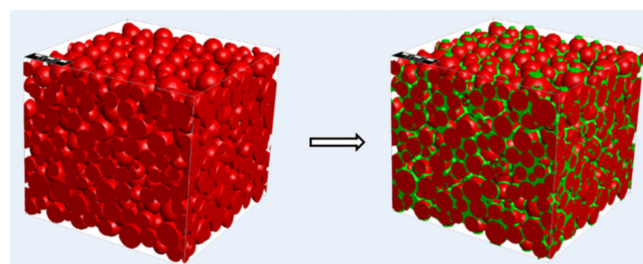


Bild 8. Struktur in GeoDict vor und nach der Rekonstitution der Inaktivmaterialien (grün) als Mischung aus CB und PVDF. Grafik: iPAT

ten 2D-Schnittbilder als Pseudo-REM-Bilder importiert werden und das Inaktivmaterial in der gleichen Verteilung über die Schichthöhe wie in der DEM-Simulation neu hinzugefügt wird.

Das Inaktivmaterial wird in GeoDict als Mischung aus dem hier verwendeten Leitadditiv Carbon Black (CB) und dem Binder Polyvinylidenfluorid (PVDF) zwischen den NMC Partikeln eingefügt. Beim Einfügen kann die Inaktivmaterialverteilung entlang der Elektrodenhöhe variiert werden, was es erlaubt, eine mögliche Binderentmischung, die durch die Trocknung entstehen kann, über die Schichthöhe darzustellen. **Bild 8** zeigt die Kathodenstruktur mit wieder hinzugefügtem Inaktivmaterial.

Jetzt wird jedem an der Simulation beteiligtem Material eine intrinsische elektrische Leitfähigkeit zugeordnet, die experimentellen Pulverleitfähigkeitsmessungen oder der Literatur entnommen werden können. Mithilfe des Ohm'schen Gesetzes und der Poisson-Gleichung konnte nun in GeoDict die Durchgangsleitfähigkeit ermittelt werden. Die simulativ erhaltenen Leitfähigkeiten wurden mit experimentellen Leitfähigkeiten aus einem „HIO-KI RM26“ validiert. Auch die Diffusivität der Lithium-Ionen, als Indikator für die ionische Leitfähigkeit und Schnellladefähigkeit, wurde mittels Fickschem Diffusionsgesetz in GeoDict untersucht. Diese Ergebnisse wurden durch Messungen der elektrochemischen Impedanz mit einem Potentiostaten (Zahner Zennium) nach der Methode von Landesfeind *et. al* überprüft [18]. **Bild 9** zeigt die simulierten Werte für die elektrische Leitfähigkeit und die ionische Diffusivität der kalandrierten Kathoden.

Wie zu erwarten steigt die elektrische Leitfähigkeit der Kathode mit stärkerer Verdichtung, da die Aktivmaterialpartikel und Leitadditive durch die Kalandrierung näher aneinanderrücken

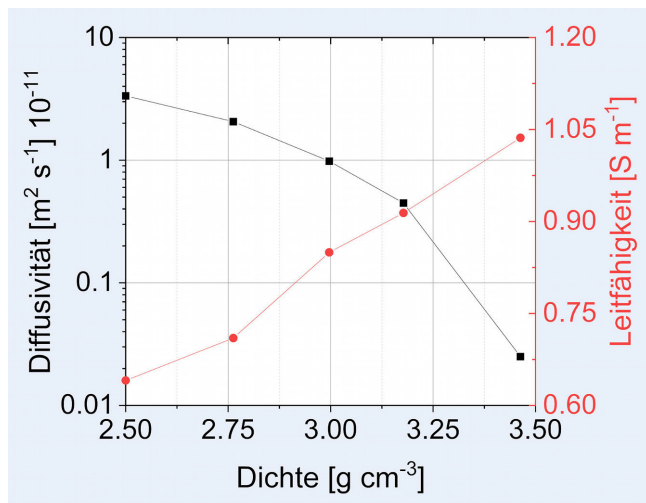


Bild 9. Ionische Diffusivität und elektrische Leitfähigkeit der virtuell kalandrierten Kathoden für verschiedene Dichten. Grafik: iPAT

und ausgeprägte Leitpfade bilden können. Zeitgleich sinkt die ionische Diffusivität bei stärkerer Kalandrierung, was auch den Erwartungen entspricht. Je stärker die Kathode kompaktiert wird, desto kleiner werden die Poren und entsprechend die Porosität und desto größer die Tortuosität, ein Maß für die Komplexität der Pfade, die das Lithium-Ion durch die Elektrode zurücklegen muss. Dies erschwert es den Lithium-Ionen, die Kathode bei Lade- und Entladevorgängen zu durchqueren, was in geringerer Diffusivität resultiert. Wegen dieser konträren Entwicklungen ist es notwendig, einen Kalandriergrad zu finden, der eine aufeinander abgestimmte, gleichzeitig möglichst gute Bewegung der Elektronen als auch der Ionen zulässt, und gleichzeitig eine möglichst hohe Elektrodendichte ergibt, um die Elektrodenperformance und insbesondere die Energiedichte [Wh/L] zu maximieren. Die hier gezeigten Simulationen liefern durch die korrekte Bestimmung von elektrischer Leitfähigkeit und ionischer Diffusivität Hinweise auf die nutzbare Kapazität, Ratenfähigkeit und Energie- und Leistungsdichte, was unabdingbar für elektrochemische Performance ist. Dies ermöglicht eine Reduktion von physischen Versuchsreihen und durch die Vorhersage der anzufahrenden Linienlasten beziehungsweise Spaltweiten eine Reduktion des Ausschusses beim Produktionsanlauf eines Batteriekalenders.

5 Zusammenfassung und Ausblick

Insbesondere bei den im Vergleich zum Labormaßstab höheren Verarbeitungsgeschwindigkeiten eines Industriekalenders ist es notwendig, entstehenden Ausschuss direkt zu erkennen. Inline-Sensorik in Form von konfokal-chromatischen Sensoren zur Dickenmessung und Lasertriangulationssensoren zur Falten- und Wellenerkennung wird an den Batteriekalendern der TU Braunschweig, der TU München und des Karlsruher Institut für Technologie erfolgreich eingesetzt und hilft, die OEE der entsprechenden Anlage zu steigern. Eine Visualisierung der wesentlichen Qualitätsmerkmale aus den von den Inline-Sensoren erfassten Daten im Form eines Dashboards ermöglicht dem Anlagenbedienpersonal unverzüglich bei auftretenden Fehlerbildern in den Prozess einzugreifen, um die Ausschussrate auf ein Minimum zu reduzieren. Die Simulation des Kalandrierprozesses mittels der Diskreten-Elemente-Methode ermöglicht die Vorhersage des Ka-

lenderspaltes oder der notwendigen Linienlast und kann den Produktionsanlauf verkürzen. Weitere Arbeiten werden sich damit beschäftigen, wie man dem Ziel eines autonomen Kalenders näherkommt, so dass zukünftig die Anlage ohne Eingriff eines Bedieners stets in den zulässigen Toleranzfenstern betrieben werden kann, ohne dass nennenswerter Ausschuss entsteht.

DANKSAGUNG

Diese Untersuchungen entstanden im Rahmen des Projekts „InteKal – Intelligente Kalandrierung“ (FKZ 03XP0348A, 03XP0348B und 03XP0348C), das durch das Bundesministerium für Bildung und Forschung gefördert wurde. Die Betreuung liegt beim Projektträger Jülich. Eingebettet sind die Vorhaben in dem Center for Electrochemical Energy Storage Ulm & Karlsruhe (CELEST), im Batterietechnikum (BATEC) des KIT und der Battery LabFactory Braunschweig (BLB) der Technischen Universität Braunschweig.

LITERATUR

- [1] Backhaus, R.: Zellentwicklungen für die Batterien künftiger Elektrofahrzeuge. *ATZ - Automobiltechnische Zeitschrift* 125 (2023) 11, S. 10–15
- [2] Fraunhofer Research Institution for Battery Cell Production FFB: Mastering Ramp-up of Battery of Production
- [3] Beuse, T.; Fingerle, M.; Wagner, C. et al.: Comprehensive Insights into the Porosity of Lithium-Ion Battery Electrodes: A Comparative Study on Positive Electrodes Based on LiNi_{0.6}Mn_{0.2}Co_{0.2}O₂ (NMC622). *Batteries* 7 (2021) 4, S. 70
- [4] Yourey, W.: Theoretical Impact of Manufacturing Tolerance on Lithium-Ion Electrode and Cell Physical Properties. *Batteries* 6 (2020) 2, S. 23
- [5] Kößler, F.; Hertweck, R.; Fleischer, J.: Wechselwirkungserfassung zwischen Walzenrundlauf und Elektrodendicke/Sensor integration in a battery calender for interaction detection between roll concentricity and electrode thickness. *wt Werkstattstechnik online* 113 (2023) 11-12, S. 469–474
- [6] Diener, A.; Ivanov, S.; Haselrieder, W. et al.: Evaluation of Deformation Behavior and Fast Elastic Recovery of Lithium-Ion Battery Cathodes via Direct Roll-Gap Detection During Calendaring. *Energy Technology* 10 (2022) 4, S. 2101033
- [7] Günther, T.; Schreiner, D.; Metkar, A. et al.: Classification of Calendaring-Induced Electrode Defects and Their Influence on Subsequent Processes of Lithium-Ion Battery Production. *Energy Technology* 8 (2019) 2, S. 1900026
- [8] Bold, B.; Fleischer, J.: Kalandrieren von Elektroden für Li-Ionen-Batterien. Wechselwirkung zwischen Anlagen- und Materialparametern. *ZWF* (2018)
- [9] Bold, B.: Kompensation der Wrinkle-Bildung beim Kalandrieren von Lithium-Ionen-Kathoden. Dissertation
- [10] Mayr, A.; Schreiner, D.; Stumper, B. et al.: In-line Sensor-based Process Control of the Calendaring Process for Lithium-Ion Batteries. *Procedia CIRP* 107 (2022), S. 295–301
- [11] Kößler, F.; Hertweck, R.; Fleischer, J.: Indentation tests on battery electrodes to estimate the target gap of battery calendars. 2024 1st International Conference on Production Technologies and Systems for E-Mobility (EPTS), Bamberg, Germany, 2024, pp. 1–6
- [12] Wurba, A.-K.; Klemens, J.; Mayer, D. et al.: Methodology for the characterization and understanding of longitudinal wrinkling during calendaring of lithium-ion and sodium-ion battery electrodes. *Procedia CIRP* 120 (2023), S. 314–319
- [13] Anderlik, S.; Kößler, F.; Sawodny, J. et al.: Dashboards in der Batterie-zellfertigung: Datenerfassung zur Bedienerunterstützung beim Kalandrieren von Batterieelektroden (2024)
- [14] Sangrós Giménez, C.; Finke, B.; Nowak, C. et al.: Structural and mechanical characterization of lithium-ion battery electrodes via DEM simulations. *Advanced Powder Technology* 29 (2018) 10, S. 2312–2321

- [15] Thornton, C.; Ning, Z.: A theoretical model for the stick/bounce behaviour of adhesive, elastic-plastic spheres. *Powder Technology* 99 (1998) 2, S. 154–162
- [16] Potyondy, D. O.; Cundall, P. A.: A bonded-particle model for rock. *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences* 41 (2004) 8, S. 1329–1364
- [17] Lippke, M.; Ohnimus, T.; Frankenberg, F. et al.: Drying and calendaring of Lithium Ion battery electrodes: A combined simulation approach. *Powder Technology* 444 (2024), S. 119984
- [18] Landesfeind, J.; Hattendorff, J.; Ehrl, A. et al.: Tortuosity Determination of Battery Electrodes and Separators by Impedance Spectroscopy. *Journal of The Electrochemical Society* 163 (2016) 7, A1373-A1387



Florian Kößler, M.Sc. 
 florian.koessler@kit.edu
 Tel. +49 1523 9502657
 Foto: Autor

**Prof. Dr.-Ing. Jürgen
Fleischer** 

Karlsruher Institut für Technologie (KIT)
 wbk Institut für Produktionstechnik
 Kaiserstr. 12, 76131 Karlsruhe
 www.wbk.kit.edu

Alexander Diener, M.Sc. 

Caroline Willuhn, M.Sc. 

Prof. Dr.-Ing. Arno Kwade 

Technische Universität Braunschweig
 Institut für Partikeltechnik
 Volkmaroder Str. 5, 38104 Braunschweig

Andreas Mayr, M.Sc. 

Prof. Dr.-Ing. Rüdiger Daub 

Technische Universität München (TUM)
 TUM School of Engineering and Design
 Institut für Werkzeugmaschinen und Betriebswissenschaften (iwb)
 Boltzmannstr. 15, 85748 Garching b. München

LIZENZ



Dieser Fachaufsatz steht unter der Lizenz Creative Commons
 Namensnennung 4.0 International (CC BY 4.0)