

Zuwendungsempfänger: Technische Universität München	Förderkennzeichen: 03XP0242B
Vorhabenbezeichnung: Sim4Pro: Digitalisierungsplattform – Simulation für die Batteriezellproduktion	
Laufzeit des Vorhabens: 01.10.2019 – 31.03.2023	
Berichtszeitraum: 01.10.2019 – 31.03.2023	

## 1. Aufgabenstellung

Die Herstellung von Lithium-Ionen-Batterien besteht aus einzelnen, gekoppelten Prozessschritten. Die Kopplung dieser Schritte führt zu komplexen Wechselwirkungen zwischen den unterschiedlichen Ebenen der betrachteten Parameter (Prozess-Struktur-Eigenschaften). Die Prozessparameter der einzelnen Fertigungsschritte haben einen Einfluss auf die entstehenden Strukturen innerhalb der Batteriezelle. Diese Strukturen beeinflussen maßgeblich die elektrochemischen Eigenschaften der Batteriezelle. Gleichzeitig entstehen in jedem Fertigungsschritt Produktionsunsicherheiten, welche sich entlang der Prozesskette fortpflanzen und somit auf die Qualität der Batteriezelle auswirken.

Im Rahmen der Digitalisierungsplattform soll eine Plattform zur Simulation der Batteriezellproduktionsprozesse erarbeitet werden. Der Fokus liegt dabei darauf, neue und detailliertere Prozessmodelle für die verfahrenstechnischen und fertigungstechnischen Prozesse einzubinden und die Kopplung zwischen der Prozesskettensimulation und der Batteriezellsimulation zu verbessern. Durch die engere Verknüpfung der Teilmodelle wird der Einsatz von mathematischen Methoden zur robusten Optimierung und Sensitivitätsanalyse ermöglicht. Dies ermöglicht es, eine Betrachtung der Toleranzen entlang der Batterieprozesskette vorzunehmen.

## 2. Wissenschaftlicher und technischer Stand

Der Produktionsprozess von Batteriezellen stellt sich aufgrund der hohen Anzahl an Prozessschritten sowie vieler Wechselwirkungen und Einflussfaktoren als komplex dar. Dabei sind nicht nur Abhängigkeiten über die gesamte Prozesskette hinweg, sondern auch innerhalb der einzelnen Prozessschritte, wie beispielsweise der Befüllung der Zellen mit Elektrolyt, als herausfordernd einzustufen. Bislang erfolgten Untersuchungen der Elektrolytbefüllung auf experimenteller Basis, was mit einem hohen Zeit- und Kostenaufwand verbunden ist. Zu Beginn des Vorhabens existierte noch keine ausreichende Möglichkeit den Prozess der Befüllung simulativ abzubilden, weshalb dies im Rahmen von Sim4Pro als Ziel definiert wurde.

## 3. Ablauf des Vorhabens

Das Vorhaben Sim4Pro wurde seitens *iwb* im Rahmen von zwei Arbeitspaketen bearbeitet:

- AP 0: Definition der notwendigen Module und Schnittstellen
- AP 5: Fertigungstechnische Maschinen-/Anlagen-/Prozessmodelle

Im Wesentlichen wurde im Rahmen des AP 5 ein Modell der Elektrolytbefüllung entwickelt und in die Sim4Pro-Gesamtplattform integriert. Hierfür wurden Einflussparameter und Strukturen aus den vorgelagerten Prozessschritten verwendet, um die wechselwirkenden Einflussfaktoren entlang der Prozesskette zu berücksichtigen. Die Definition der notwendigen Module und Schnittstellen entsprach hierbei einem kontinuierlichen Prozess, in dem die einzelnen Modelle in Abstimmung waren. Hierfür wurden regelmäßige Workshops, Arbeitstreffen, Statustreffen, und digitale Regeltermine durchgeführt. Die resultierenden Arbeitsergebnisse sind in Kurzfassung im nächsten Kapitel dargestellt und in der eingehenden Darstellung im detaillierten Ergebnisbericht ausführlich beschrieben.

#### **4. Wesentliche Arbeitsergebnisse**

Aus den oben aufgeführten Arbeitsinhalten sind Ergebnisse entstanden, welche im ausführlichen Bericht detailliert beschreiben sind. Im Wesentlichen könnten die Ergebnisse jedoch wie folgt zusammengefasst werden:

- Identifikation der Wirkzusammenhänge entlang der Prozesskette als für einzelne Prozessmodelle nutzbare In- und Output-daten
- Erarbeitung eines Modells zur Visualisierung und Quantifizierung der Elektrolytsättigung in den Poren basierend auf den Simulationen der vorgelagerten Prozessschritte
- Aufbau eines Befüllprozessmodells der gesamten Zelle, welches das Dosier- und Benetzungsverhalten über eine reale Prozesszeit abbildet.
- Untersuchung verschiedener Einflüsse, wie z. B. der Elektrodenbeladung oder -welligkeit auf die Benetzungseigenschaften der Zelle
- Integration des Befüllmodells in die Sim4Pro-Gesamtplattform

#### **5. Zusammenarbeit mit anderen Forschungseinrichtungen**

Durch enge Zusammenarbeit mit den Instituten der TU Braunschweig (IWF, InES und iPAT) und dem Karlsruher Institut für Technologie (wbk, MVM und TFT) wurde ein enges, deutschlandweites Netzwerk von Experten im Bereich Prozesssimulation bei der Batterieproduktion aufgebaut und gefördert. Durch den hohen Grad an Vernetzung konnten hier starke Synergien zwischen den beteiligten Partnern geschaffen werden. Die Auslegung des Befüllprozesses sowie die Quantifizierung des Einflusses einzelner Prozessparameter wurde durch die Zusammenarbeit mit den Experten der anderen Prozessschritte erarbeitet. Hierbei entstanden mehrere gemeinsame Veröffentlichungen. Weiterhin wurde das Prozessverständnis durch eine Analyse der Struktureigenschaften und durch die Modellierung der Befüllung sowie der Benetzung erhöht. Das aufgebaute Wissen kann in der Herstellung von Batteriezellen zur Reduktion der Kosten, zur Verbesserung der Qualität, und zur Reduktion des Ausschusses eingesetzt werden.

Zuwendungsempfänger: Technische Universität München	Förderkennzeichen: 03XP0242B
Vorhabenbezeichnung: Sim4Pro: Digitalisierungsplattform – Simulation für die Batteriezellproduktion	
Laufzeit des Vorhabens: 01.10.2019 – 31.03.2023	
Berichtszeitraum: 01.10.2019 – 31.03.2023	

## I. Verwendung der Zuwendung

Im Laufe des Projekts Sim4Pro sind mehrere Arbeiten entstanden. Hierzu gehören Veröffentlichungen, Präsentationen und Studienarbeiten

- Veröffentlichungen: 04
- Präsentationen: 01
- Studienarbeiten: 14

Zusätzlich zu den zahlreichen betreuten Studienarbeiten wurden auch Doktoranden an der Technischen Universität durch ihre Mitarbeit im Projekt Sim4Pro ausgebildet; hierzu gehören Herr Dr.-Ing. Florian Günter und Herr Jan Hagemeister. Ebenfalls wurden Themen aus Sim4Pro im Rahmen der Vorlesung Batterieproduktion und dem Praktikum Batterieproduktion an ca. 50 Studenten pro Semester herangetragen.

Das Projekt Sim4Pro betrachtet alle Prozessschritte vom Mischen bis zur Elektrolytbefüllung sowie übergeordnete Themen, wie die Energieeffizienz und elektrochemischen Zelleigenschaften. Die Befüllung von Batteriezellen mit flüssigem Elektrolyten ist aufgrund der langen Prozesszeit ein Fertigungsschritt mit hoher Kapitalbindung. Zusätzlich sind Fehler bei der Benetzung aufgrund der bereits erfolgten Wertschöpfung besonders kostenintensiv. Deshalb liegt der Fokus der Arbeitspakete des *iwb* auf der Elektrolytbefüllung, für welche im Rahmen des Projektes ein Simulationsmodell aufgebaut wurde. In folgendem Bericht werden die Ergebnisse der Projektarbeit der letzten 3,5 Jahre zusammenfassend dargelegt. Insgesamt trägt das Vorhaben Sim4Pro dazu bei, die Rolle Deutschlands auf dem Forschungsgebiet der Batteriezellproduktion zu stärken und auch im internationalen Vergleich eine führende Rolle einzunehmen.

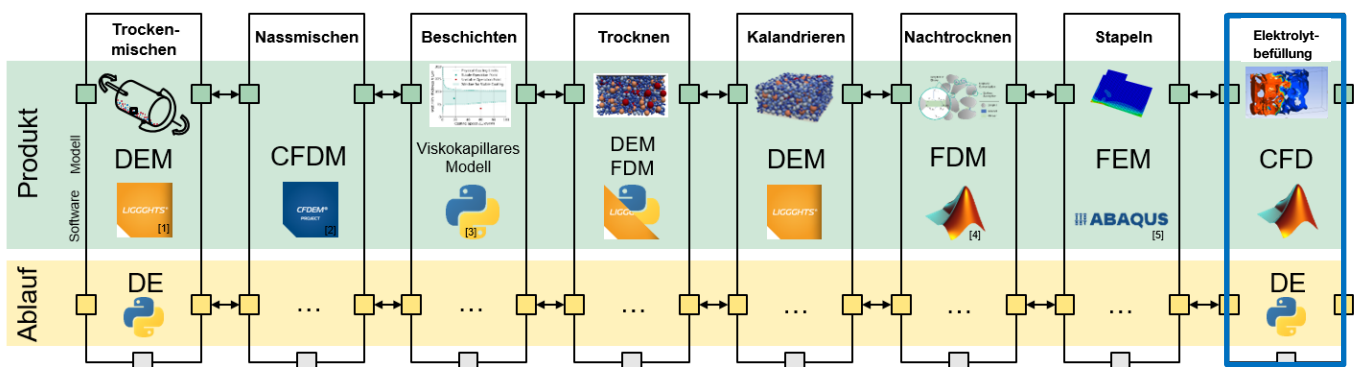
## II. Darstellung der Ergebnisse

Im Wesentlichen wurden die Projektergebnisse seitens *iwb* in zwei Arbeitspaketen bearbeitet. In AP1, Definition der notwendigen Module und Schnittstellen, wurden alle übergreifenden Themen bearbeitet, mit dem Ziel einer erfolgreichen Integration des Modells in die Gesamtplattform. In AP 5, fertigungstechnische Maschinen-/Anlagen-/Prozessmodelle, wurde das Modell der Elektrolytbefüllung erarbeitet.

### AP 1: Definition der notwendigen Module und Schnittstellen

#### Definition der Module und Schnittstellen

Im Rahmen von UAP 1.1 wurde in einem gemeinsamen Workshop aller Projektmitglieder eine Parameterlandkarte erarbeitet. Diese beinhaltet die Prozess- und Strukturparameter aller Prozessschritte der Batterieproduktion, um eine Übersicht der Wechselwirkungen bzw. Schnittstellen der verschiedenen Prozesse zu erlangen. Die gesamte Ausarbeitung der Parameterlandkarte kann aus dem Zwischenbericht der TU Braunschweig entnommen werden. Zusätzlich zu der Parameterlandkarte wurde jedes Modul der Fertigungsprozesse definiert, welches in *Abbildung 1* dargestellt ist.



*Abbildung 1. Übersicht der Module für Prozesskettensimulationen<sup>1</sup>.*

Hierbei wurde sowohl die Art der einzelnen Modelle, als auch die Schnittstellen dieser bzw. die Integration der einzelnen Schritte in das Gesamtmodell festgelegt. Folgend der Definition aller Schnittstellen der verschiedenen Modelle, wird im Rahmen dieses Teilprojekts die Elektrolytbefüllung (blau umrandet) im Detail modelliert. Die Schnittstelle des Modells der Elektrolytbefüllung umfasst ein analytisches Grundmodell (programmiert in Matlab) sowie Unterstützung durch CFD-Simulationen (*ENG: Computational Fluid Dynamics*). Der detaillierte Aufbau des Modells wird in UAP 1.2 betrachtet und an entsprechender Stelle dargelegt. Diese Art der Modellierung (analytisches Grundmodell + CFD-Simulationen) bietet eine nahtlose Integration in ablauforientierte Prozesskettensimulationen, geprägt durch geringe Rechenzeiten.

Die Einflussgrößen des Elektrolytbefüllprozesses lassen sich in Struktur- und Prozessparameter unterteilen. Die Strukturparameter beschreiben dabei Eigenschaften des Produkts (der Zellkomponenten), die einen Einfluss auf den Prozess haben. Diese sind in *Tabelle 1* dargestellt, mit

<sup>1</sup> Englisch – DEM: Discrete elemente methode, CFDM: Computational Fluid Dynamics (CFD) -Discrete Element Method (DEM) coupling, FDM: finite difference method, FEM: Finite element method,

Einheiten sowie dem Dateiformat des Datenaustauschs zwischen den verschiedenen Prozessmodellen.

*Tabelle 1. Strukturparameter der Elektrolytbefüllung*

Strukturparameter	Einheit	Dateiformat
Porosität	%	CAD-Modell des Kalandrierprozesses
Schichtdicke	$\mu m$	CAD-Modell des Kalandrierprozesses
Porengröße	$\mu m$	CAD-Modell des Kalandrierprozesses
Format des Zellgehäuses	—	Herstellerangaben
Elektrodenfläche	$mm \times mm$	Herstellerangaben
Wellenform der Elektroden	—	FEM-Modell des Stapelprozesses

Die Porosität, Schichtdicke und Porengröße (bzw. Porengrößenverteilung) sind allesamt Strukturparameter, die während der Kalandrierung festgelegt werden und für den Befüllprozess entscheidende Einflussfaktoren darstellen. Die Daten werden hierfür mittels CAD-Modell aus der DEM-Kalandriersimulation übertragen. Alternativ können die Werte für Porosität, Schichtdicke und Porengröße auch direkt abgeleitet werden und als Direkteingabewert dem Modell der Elektrolytbefüllung übergeben werden. Das geometrische Format des Zellgehäuses sowie die Elektrodenabmaße stammen von Herstellerangaben der zu modellierenden Zelle. Ein Beispiel hierfür sind die PHEV-1-Zellen des ZSW, bei denen die o.g. Angaben bei der Herstellung der Zellen bereits dokumentiert werden. Die Kopplung der Prozesse Stapeln und Elektrolytbefüllung erfolgt über den Input der Wellenform der Elektroden. Dies wird im Rahmen der Stapelsimulationen mittels FEM modelliert, aus welcher eine Output-CAD-Datei den Input für die Befüllsimulation bietet. Einige befüllspezifische Einflussgrößen, wie z. B. die Oberflächenspannung der Elektrolytflüssigkeit, werden im Rahmen der Berechnungen unabhängig der anderen Prozessschritte berücksichtigt.

Des Weiteren haben die Prozessparameter einen erheblichen Einfluss auf die Dauer der Benetzung. Diese sind mit zu übergebender Einheit sowie den Werten aus dem Referenzprozess der Elektrolytbefüllung in *Tabelle 2* aufgeführt.

*Tabelle 2. Prozessparameter der Elektrolytbefüllung*

Prozessparameter	Einheit	Wert aus Referenzprozess
Elektrolytmenge, $V_{\text{elektrolyt}}$	$ml$	100
Evakuierungsdruck, $p_{\text{evak}}$	$mbar$	50
Begasungsdruck, $p_{\text{gas}}$	$mbar$	1300
Temperatur, $T$	$^{\circ}C$	25
Pressung des Elektroden-Separator-Verbundes, $p_{\text{press}}$	$mbar$	—

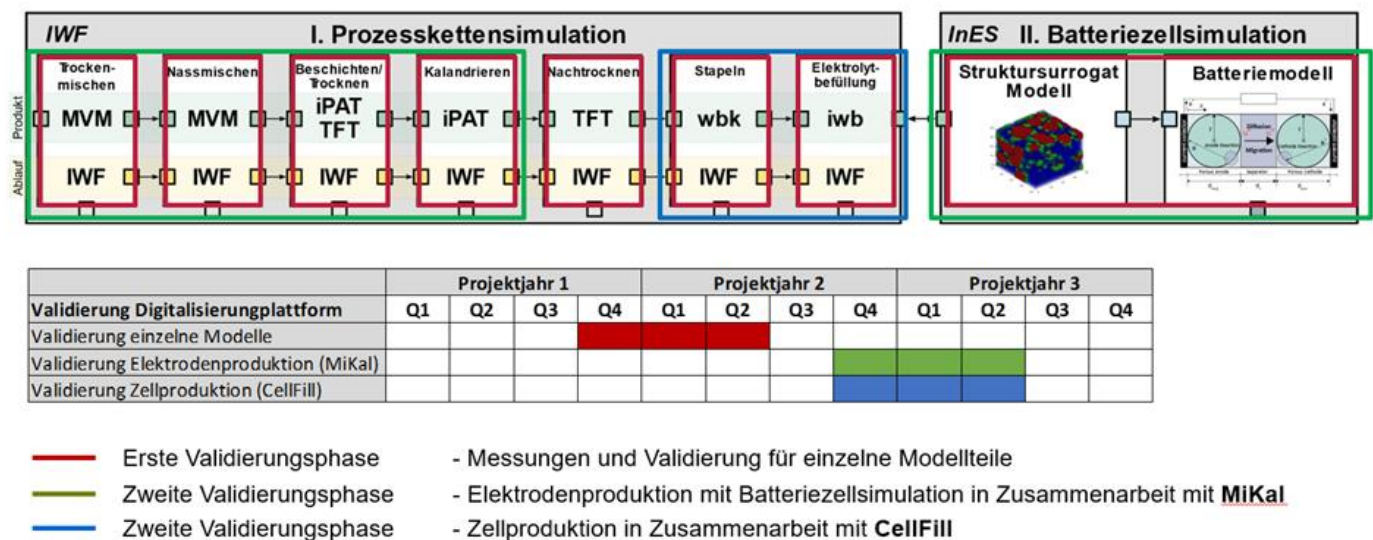
Die Prozessparameter Elektrolytmenge, Evakuierungsdruck, Begasungsdruck und Temperatur stammen aus dem im Projekt Cell-Fill definierten Referenzprozess für die Befüllung. Die Welligkeit der Elektroden bietet eine Schnittstelle mit dem Modell des Stapelprozesses. Der Output des Befüllprozessmodells ist durch den zeitlichen Benetzungsverlauf dargestellt.

### Festlegen der Simulationsstudien

Die Komplexität der Elektrolytbefüllung resultiert daraus, dass das Dosierverhalten (Einfüllung des Elektrolyten in das Totvolumen der Zelle) und Benetzungsverhalten (Eindringen des Elektrolyten in die Poren) auf sehr verschiedenen Skalen stattfindet. Daher muss das Modell sowohl die Porenstruktur (Sub- $\mu\text{m}$ -Skala) als auch die Zellgeometrie (cm-Skala) berücksichtigen. Um diese Herausforderung zu lösen, wurden Teilmodelle aufgebaut, welche in den weiteren Ergebnissen beschrieben sind.

### Definition der Validierungsstrategie

Der erste Schritt der Validierungsstrategie beinhaltet die Validierung der einzelnen Modelle der Prozesskette, in diesem Fall der Elektrolytbefüllung. Der zeitliche Plan der Validierungsstrategie des Projekts Sim4Pro ist in *Abbildung 1* aufgezeigt. Diese bildet alle Prozesse und deren Einordnung in die Validierungsstrategie ab.



*Abbildung 3.* Übersicht der Validierungsstrategie des gesamten Projekts Sim4Pro, zur Einordnung des Modells der Elektrolytbefüllung in die Prozesskette.

Die Validierung des Einzelmodells der Elektrolytbefüllung wird in den Ergebnissen aus AP 5 gezeigt. In UAP 1.3 handelte es sich um die Erstellung einer gemeinsamen Strategie für die Validierung der Gesamtplattform.



## AP 5: Fertigungstechnische Maschinen-/Anlagen-/Prozessmodelle

### Erstellung der Teilmodelle für Poren- und Zellsimulation

Aus Platzgründen kann im Rahmen dieses Berichtes nicht auf alle Details eingegangen werden, weshalb an der ein oder anderen Stelle auf die entstandenen Veröffentlichungen verwiesen wird. Die Ergebnisse der Teilmodelle wurden im Jahr 2022 in den folgenden Publikationen veröffentlicht:

*Titel: Numerical Models of the Electrolyte Filling Process of Lithium-Ion Batteries to Accelerate and Improve the Process and Cell Design*

*Autoren: Jan Hagemeister, Florian J. Günter, Thomas Rinner, Franziska Zhu, Alexander Papst and Rüdiger Daub*

*DOI: 10.3390/batteries8100159*

Im Folgenden werden die wichtigsten Arbeitsergebnisse der Teilmodelle für diesen Bericht dargestellt. Wie in AP 1 beschrieben, muss das Modell sowohl die Porenstruktur als auch die Zellgeometrie abbilden können. Aus diesem Grund wurden zwei Teilmodelle aufgebaut, welche alle identifizierten Einflussgrößen einnehmen, und die definierten Ergebnisse liefern. Die zwei Teilmodelle sind in Abbildung 1 dargestellt. Im Rahmen der Arbeiten wird auch der Begriff „Makro“ für die Zellebene und „Mikro“ für die Porenebene verwendet.

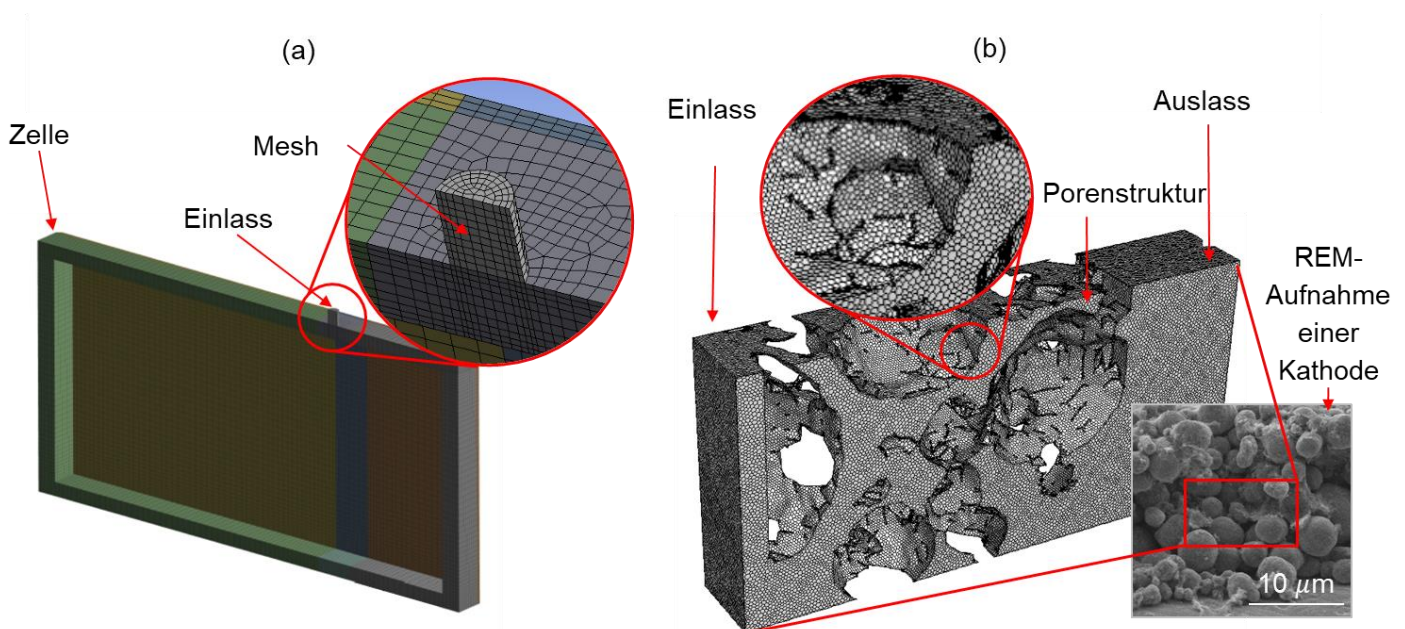


Abbildung 1. Aufbau der beiden Teilmodelle, mit der Zellsimulation der Makroebene (a) und der Porensimulation der Mikroebene (b)

Zu sehen ist jeweils eine starre Geometrie, vernetzte Elemente, und definierte Ein- bzw. Auslässe für das Elektrolyt. Im Fall der Zelle gibt es keinen Auslass, da die Benetzung in einem geschlossenen System geschieht und weder Flüssigkeit noch Gas aus der Zelle entweichen

kann. In dem Modell der Porenstruktur ist das Leervolumen dargestellt, also das Volumen zwischen den Partikeln, durch welches auch das flüssige Elektrolyt stömt.

Die Details der Mikroebene während einer Simulation sind in Abbildung 2 dargestellt. Das Elektrolyt (rot) wird dabei von der linken Seite in die Struktur eingelassen und verdrängt das Gas (blau) während des Benetzungsvorgangs. Die in Abbildung 2 dargestellte Struktur dient als Beispiel für den Simulationsaufbau, und kann mit beliebigen Strukturen aus der Kalandriersimulation verwendet werden.

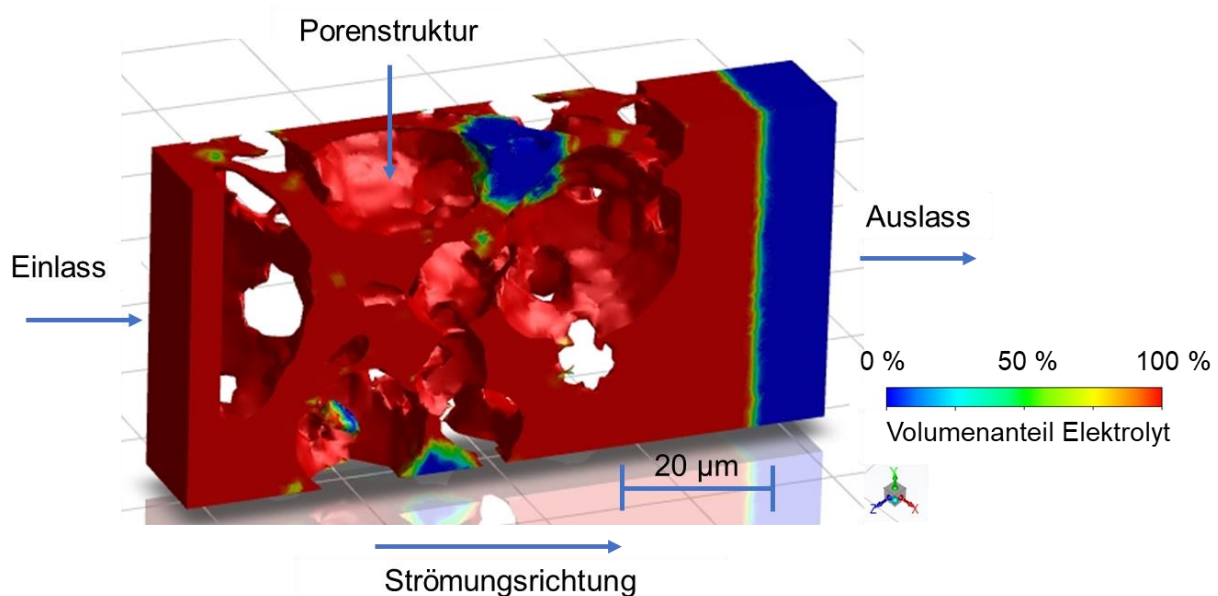


Abbildung 2. Aufbau des Modells für die CFD-Simulation der Elektrolytströmung durch das Porenvolumen (Mikromodell).

Die Simulation bildet ca. 0,02 Sekunden Strömungszeit ab. Der Ausschnitt in Abbildung 2 wurde am Ende der Simulation aufgenommen, was ersichtlich wird, da die Struktur fast vollständig mit Elektrolyt (rot) benetzt ist. In der Mitte der Struktur gibt es einige Gaseinschlüsse, die durch die blaue Färbung dargestellt sind. Diese Informationen liefern Hinweise über das tatsächlich befüllte Leervolumen sowie den durch die Strömung entstandenen Druck, die wiederum in das Gesamtmodell einfließen. Pro durchgeführtem Simulationsdurchlauf wird der zeitliche Verlauf für folgende Werte aufgenommen:

- Massenstrom des Elektrolyten (g/s),
- Druck in der Porenstruktur (Pa)
- Dosiertes Elektrolytvolumen (ml)
- Volumenanteil Elektrolyt (%)

Parallel zu den Mikrosimulationen wird die Makrosimulationen der Zelle durchgeführt, um ein Gesamtmodell zu erzeugen. In Abbildung 3 ist die Dosierung des Leervolumens der Zelle mit Elektrolyt dargestellt. Zu sehen ist eine prismatische PHEV1-Zelle nach ca. einer Sekunde der Dosierung.



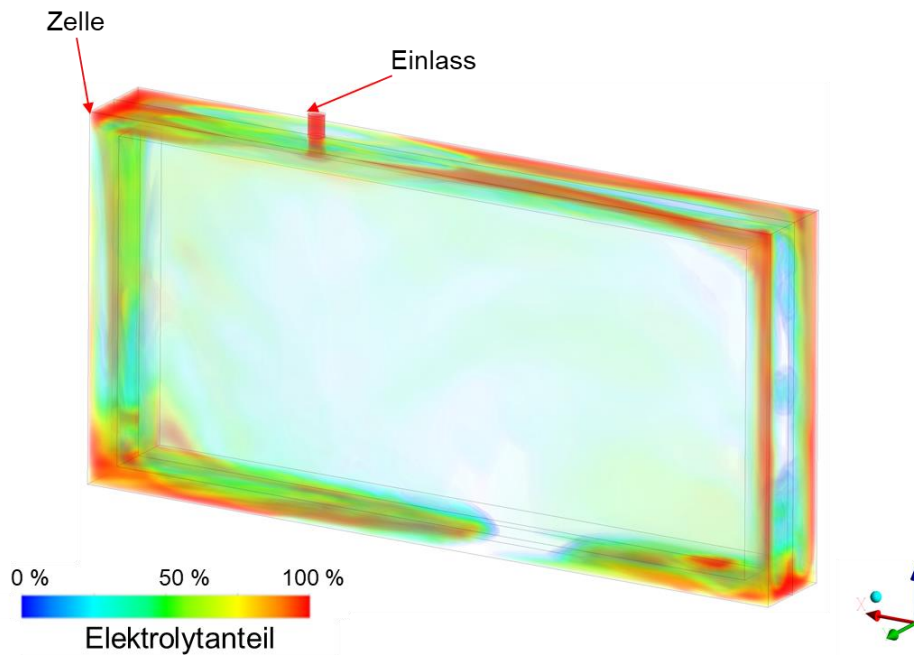


Abbildung 3. Aufbau des Modells für die CFD-Simulation der Elektrolytströmung durch das Leervolumen der Zelle (Makromodell).

Die Modellierung beider Skalen ermöglicht nun das Zusammenführen, um den gesamten Dosier- und Benetzungsprozess abzubilden. Hierfür wurden acht Schritte definiert, welche im Folgenden beschrieben sind.

### Aufbau des Gesamtmodells

Hierfür wurde als Basis die entwickelte Mikro- und Makrosimulation verwendet, und über verschiedene Zusammenhänge zu einem Gesamtmodell zusammengetragen. Der Ablauf ist in Abbildung 4 dargestellt, und zeigt das Vorgehen, um aus den Partikelstrukturen der vorherigen Prozessschritte die Elektrolytbenetzung zu simulieren. Die Ergebnisse hiervon sind in Abbildung 4 dargestellt. Jeder der acht Schritte wird im Folgenden nochmal ausführlich beschrieben.

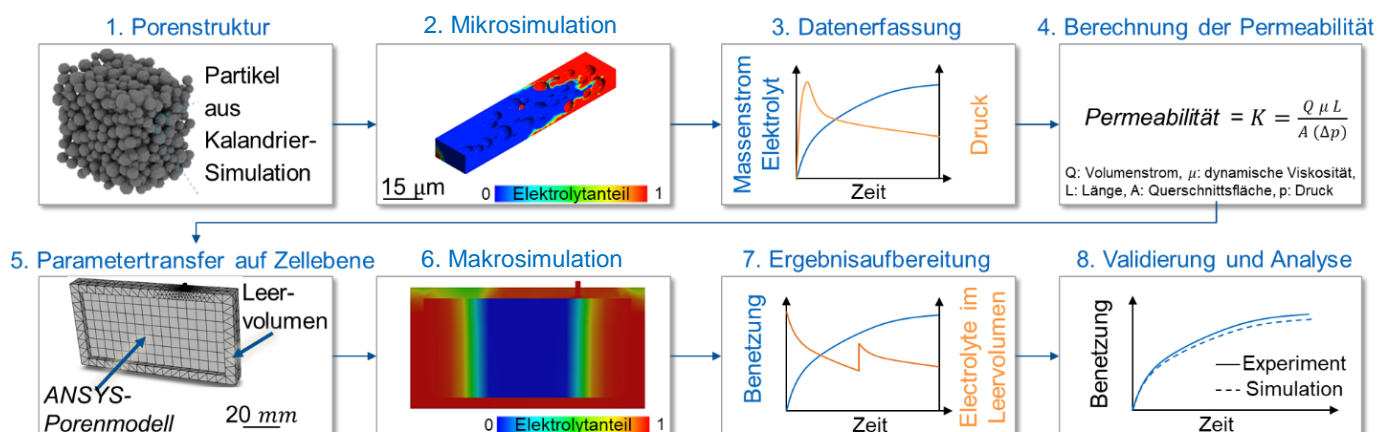
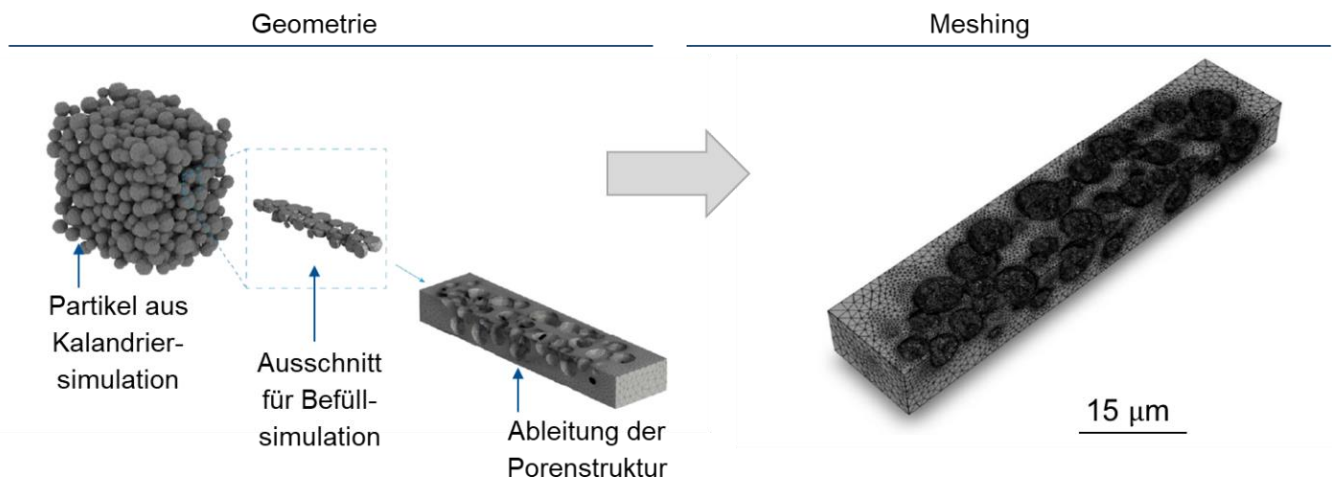


Abbildung 4. Aufbau des Modells über acht Schritte, um den gesamten Befüllprozess auf Poren- und Zellebene abzubilden.

Zuerst wird aus der Elektroden-Partikelstruktur der Kalandriersimulation das Porenvolumen abgeleitet. Danach kann die Mikrosimulation, wie in vorherigen Berichten beschrieben, durchgeführt werden. Aus der Simulation können Strömungsdaten wie z. B. der Massenstrom oder der entstehende Druck, entnommen werden. Aus diesen Daten kann die Permeabilität der Struktur berechnet werden, welche den Widerstand des Porenvolumens gegenüber der Strömung darstellt. Dieser Wert wird dann als Materialparameter in das Modell auf Zellebene überführt. Danach wird die Makrosimulation durchgeführt, aus welcher z. B. der Benetzungsgrad oder der Füllstand des Elektrolyten im Leervolumen entnommen wird. Zum Schluss kann das Benetzungsverhalten auf Zellebene mit experimentellen Daten validiert werden. Diese acht Schritte werden im Laufe des Berichtes detailliert beschrieben.

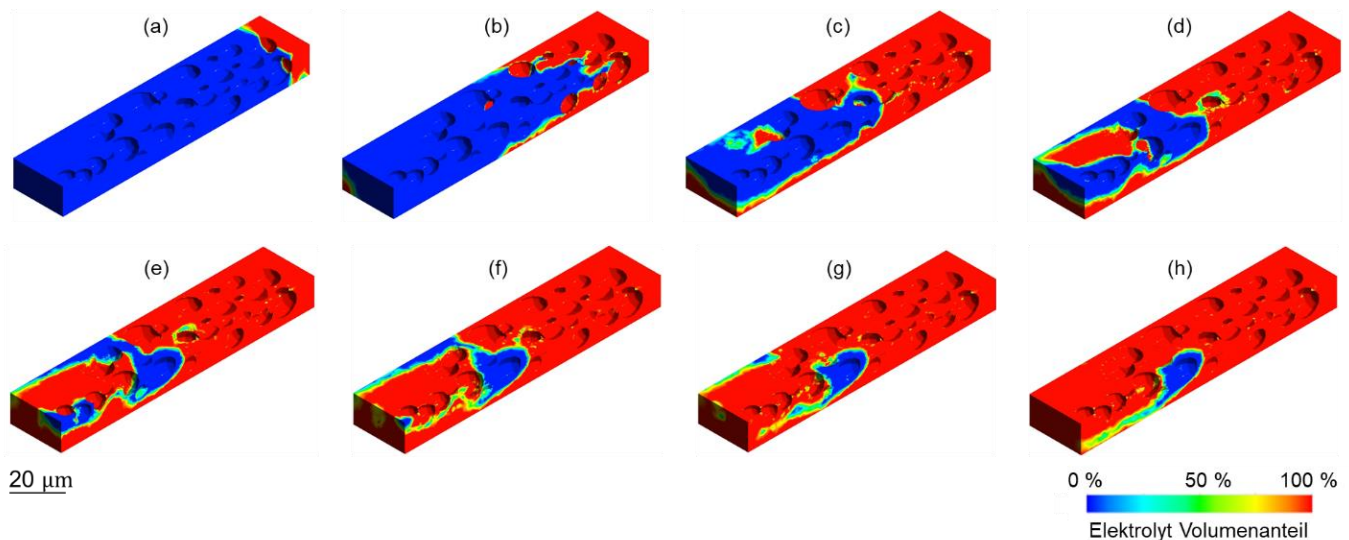
Um die Schnittstelle mit den anderen im Projekt betrachteten Prozessen zu gewährleisten, dient der Output der Kalandriersimulation als Input für die Befüllsimulation. In Abbildung 5 ist dargestellt, wie aus der Partikelstruktur das Porenvolumen für die CFD-Simulation abgeleitet werden kann.



**Abbildung 5.** Arbeitsablauf, um aus der Partikelstruktur der Kalandriersimulation das Porenvolumen für die Befüllsimulation zu ermitteln.

Zu Beginn wird eine stl-Datei in eine CAD-Umgebung importiert. Beispielhaft ist dies auf der linken Seite von Abbildung 5 dargestellt. Da die Simulation der Befüllung der gesamten Struktur rechnerisch sehr komplex wäre, wird die Geometrie weiter segmentiert und somit zum Zweck einer recheneffizienten Simulation vereinfacht. Zusätzlich ist es somit möglich, die Fluidströmung abzubilden, ohne unerwünschte Effekte der am Rande vollständigen Partikel. Im letzten Schritt der geometrischen Segmentierung wird das negativ des Partikelvolumens berechnet. Dieses stellt das Leervolumen dar, durch welches die Elektrolytflüssigkeit strömen kann. Mit dieser wird dann in der Simulationsumgebung der Software ANSYS das Mesh erstellt. Ein Beispiel hiervon ist auf der rechten Seite von Abbildung 5 zu sehen.

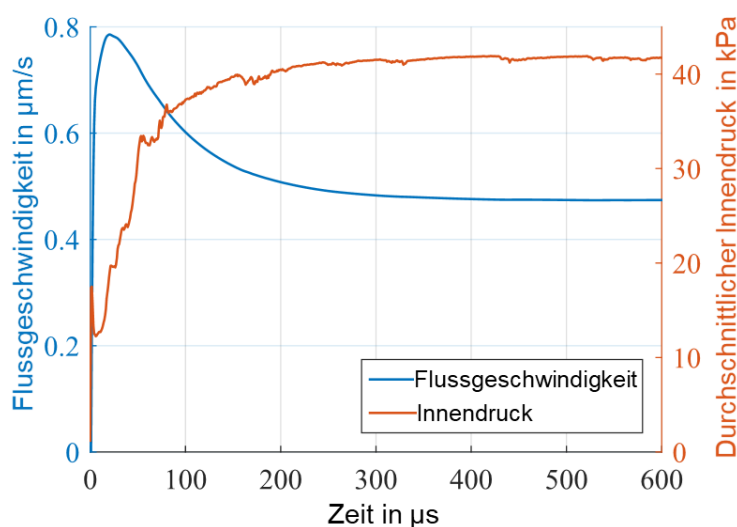
Die Ergebnisse der Mikrosimulation sind in Abbildung 6 abgebildet. Zu Beginn der Simulation, wie auch in der Realität, ist das Porenvolumen mit Stickstoff-Gas befüllt, welches durch die blaue Farbe in der Simulationsumgebung ersichtlich wird. Das Elektrolyt (in rot) fließt während der Simulation in die Poren und füllt das Volumen.



*Abbildung 6.* Visualisierung der Ergebnisse der Mikrosimulation, welche die Elektrolytströmung durch die poröse Struktur darstellt. Der Benetzungsfortschritt ist zu den Zeitpunkten nach (a) 0 Sekunden, (b)  $1,3 \times 10^{-5}$  Sekunden, (c)  $2,7 \times 10^{-5}$  Sekunden, (d)  $3,9 \times 10^{-5}$  Sekunden, (e)  $5,2 \times 10^{-5}$  Sekunden, (f)  $6,6 \times 10^{-5}$  Sekunden, (g)  $7,9 \times 10^{-5}$  Sekunden und (h)  $9,4 \times 10^{-5}$  Sekunden dargestellt.

Zu Beginn der Simulation werden zuerst die größeren Hohlräume gefüllt, da diese weniger Widerstand für das Elektrolyt bereiten. Dieses ist in Abbildung 6 (b) und (c) ersichtlich, da sich zuerst der untere Bereich füllt, welcher in diesem Fall größere Porenräume aufweist. Über die Zeit, z. B. in Abschnitt (e) und (f), werden auch die kleineren Porenräume gefüllt, bevor am Ende der Simulation in Abschnitt (h) fast das gesamte Volumen mit Elektrolyt gefüllt ist.

Hinter diesen qualitativen Ergebnissen liegen auch quantitative Daten, welche in definierten Zeitintervallen aufgenommen werden. Hierzu gehörten z. B. die Flussgeschwindigkeit des Elektrolyten oder der entstehende Innendruck im Leervolumen. Die Ergebnisse hiervon sind in Abbildung 7 über die Simulationszeit von 600 µs aufgetragen.

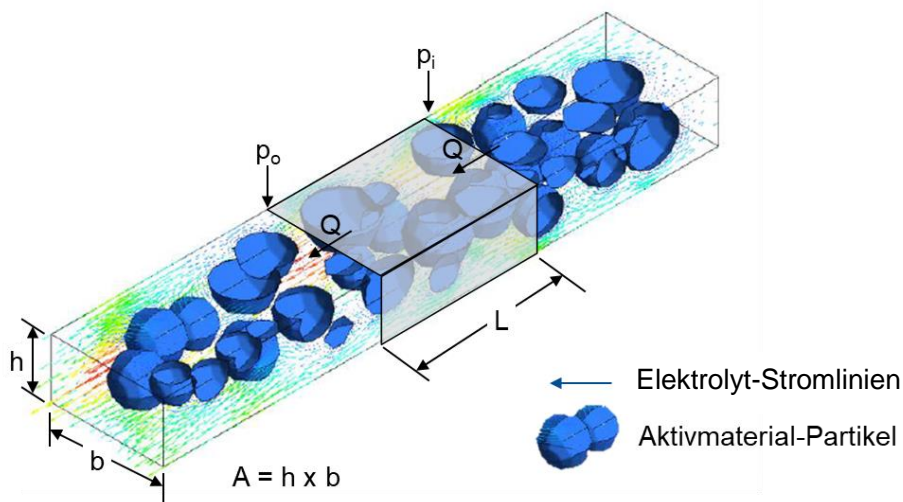


*Abbildung 7.* Zeitlicher Verlauf der Flussgeschwindigkeit (linke y-Achse) und des durchschnittlichen Innendrucks (rechte y-Achse) während der Mikrosimulation

Wie in der qualitativen Beschreibung bereits ersichtlich, ist die Flussgeschwindigkeit des Elektrolyten zu Beginn der Simulation am höchsten. Diese nimmt über die Simulationszeit nach initialem Kurvenscheitelpunkt stetig ab. Die Druckentwicklung, dargestellt auf der rechten y-Achse, steigt hingegen über die Simulationszeit kontinuierlich an. Diese beiden Datensätze, in Kombination mit geometrischen Kennwerten, wie z. B. der Querschnitt oder Länge der Porenstruktur, können verwendet werden, um den Widerstand über die Permeabilität,  $k$  zu charakterisieren. Hierfür wird Formel 1 verwendet:

$$k = \frac{Q \cdot \mu \cdot L}{A \cdot \Delta p} \quad (1)$$

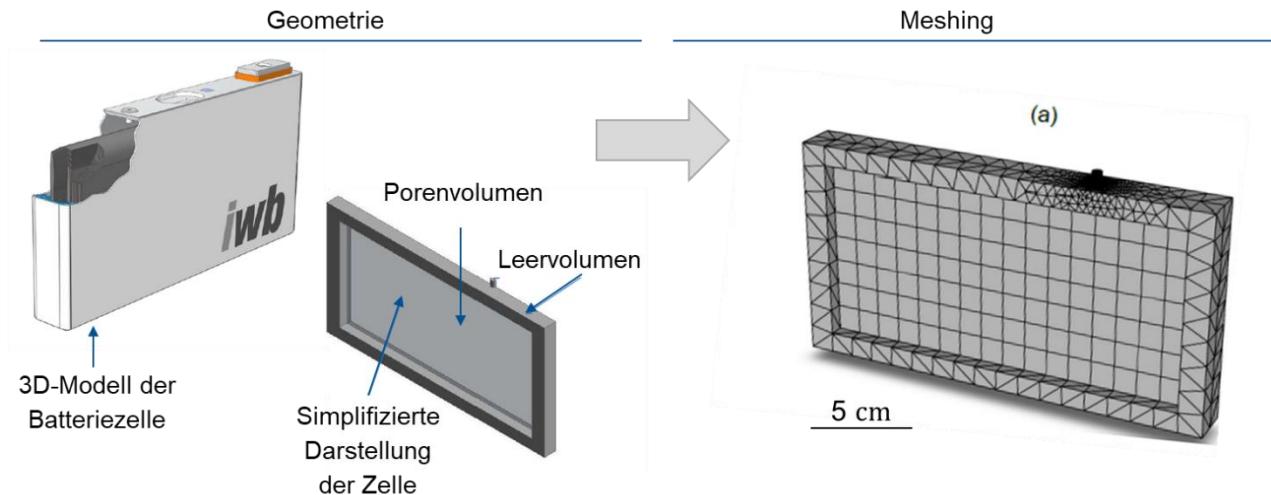
Hierbei wird der Volumenstrom des Elektrolyten  $Q$ , die dynamische Viskosität  $\mu$ , die Länge  $L$ , und der Querschnitt  $A$  (berechnet aus Höhe  $h$  und Breite  $b$ ) berechnet. Zusätzlich wird  $\Delta p$  aus der Differenz zwischen  $p_i$  und  $p_o$  ermittelt. Wie genau die Variablen definiert sind und daraus die Permeabilität berechnet wird, ist grafisch in Abbildung 8 dargestellt. Hierbei stellen die farbigen Linien die Stromlinien des Elektrolyten und die blauen Bereiche das Aktivmaterial dar.



**Abbildung 8.** Stromlinien des Elektrolytflusses aus der Mikrosimulation, inklusive der Variablen für die Berechnung der Permeabilität.

Aus diesen Daten kann dann die Permeabilität berechnet werden, welches für die weiteren Makrosimulationen verwendet wird. Ein Wert von  $2 \times 10^{-14} \text{ 1/m}^2$  wird als Eingangsparameter für die Simulation auf Zellebene verwendet. Ändert sich die Struktur aus den vorherigen Prozessschritten, kann das Vorgehen wiederholt werden, um einen neuen Permeabilitätswert zu berechnen. Somit können alle identifizierten Variablen, wie z. B. die Partikelgrößenverteilung, Porosität, Partikelform, mit dem entwickelten Modell abgebildet werden. Dies wäre mit einem einfacheren analytischen Modell nicht möglich.

Analog zu der Mikrosimulation, werden für die Makrosimulation geometrische Daten aus einer CAD-Datei als Input für die Simulation verwendet. Die Ausleitung der Informationen über das Leer- und Porenvolumen einer gesamten Zelle ist in Abbildung 9 dargestellt.



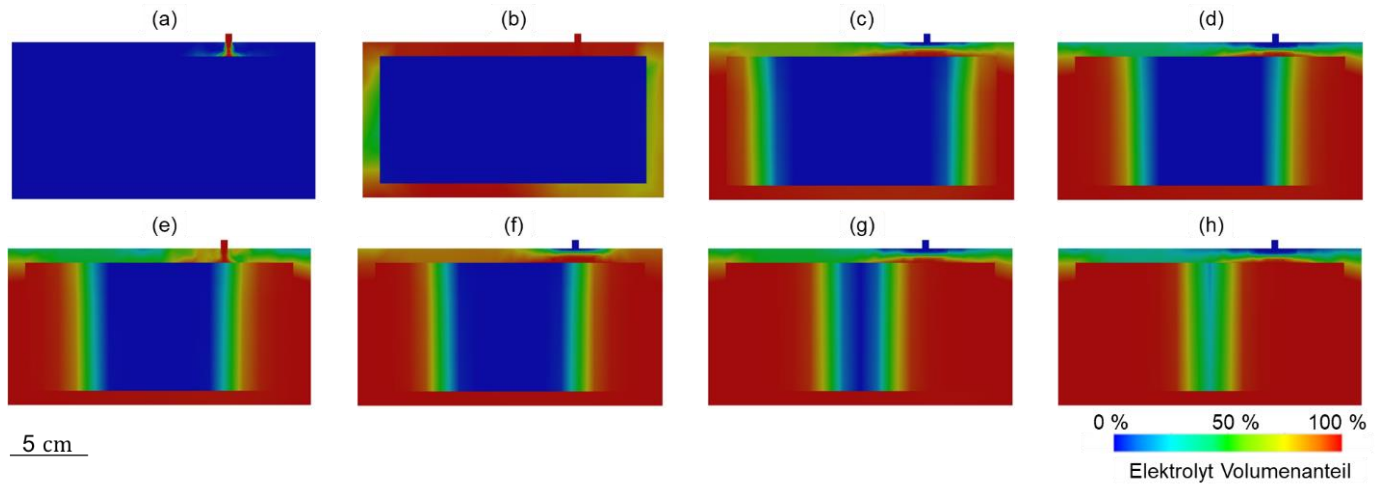
**Abbildung 9.** Arbeitsablauf, um aus der 3D-Geometrie der Zelle das Mesh für die CFD-Simulation zu erstellen.

Auf der linken Seite ist die Geometrie der Zelle, inklusive aller Details, wie z. B. der Deckelbaugruppe, dargestellt. Um den Bedarf an Rechenleistung nicht gering zu halten, werden einige Details vereinfacht und in einer simplifizierten geometrischen Form dargestellt. Hier werden bereits die Bereiche des Poren- und Leervolumens definiert. Im nächsten Schritt kann das Netz (EN: Mesh) erstellt werden, welches auf der rechten Seite von Abbildung 9 gezeigt ist. Das Netz diskretisiert die Geometrie, damit die CAD-Geometrie in der Simulationsumgebung genutzt werden kann.

Der Widerstand der Poren wird als Permeabilität im „*Porous Media Model*“ in der ANSYS-Umgebung definiert. Die weiteren Einstellungen wurden bereits in vorherigen Berichten erläutert. Wie bei den Simulationen auf Porenebene, stellt die blaue Farbe das Schutzgas und die rote Farbe den Elektrolyten dar. Die Ergebnisse der Makrosimulation sind in Abbildung 10 aufgezeigt, welche zwei Dosierschritte über eine gesamte Prozesszeit von 120 Minuten abbilden.

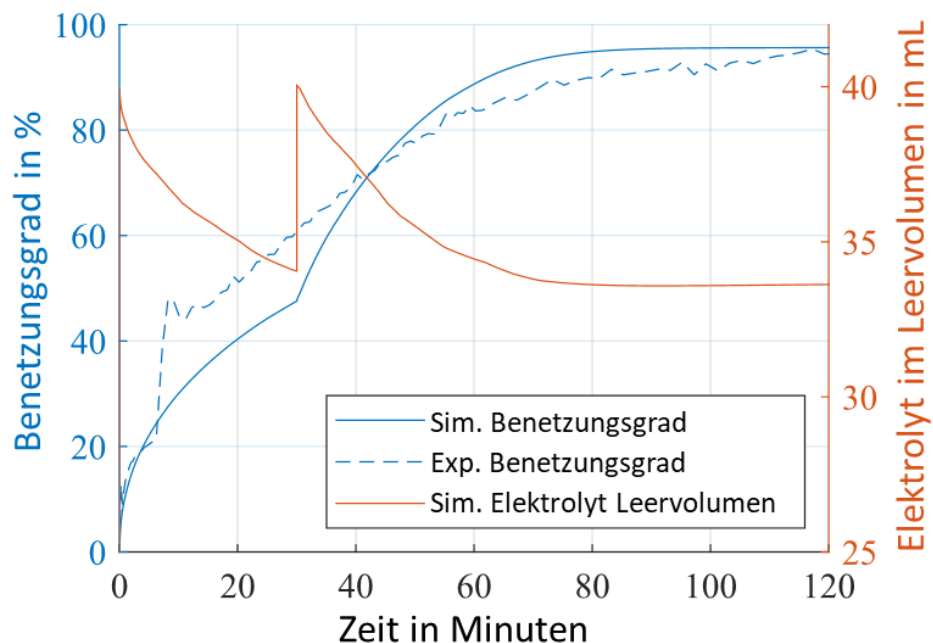
Zu sehen ist die Wechselwirkung zwischen der Dosierung und Benetzung, die über dargelegtes Vorgehen in einer einzigen Simulation abgebildet werden kann. Zuerst wird Elektrolytflüssigkeit in das Leervolumen (Bild b) dosiert, welches im Anschluss langsam in das Porenvolumen aufgenommen wird (Bild c und d). Aufgrund des begrenzten Leervolumens ist für das Zellformat ein zweiter Dosierschritt notwendig, welcher in Bild e gezeigt wird. Anschließend erfolgt die weitere Benetzung des Zellwickels mit Elektrolyt. Der Benetzungsfortschritt nach einer Zeit von 120 Minuten beträgt 95 %. Aufgrund des Gleichgewichtes zwischen dem Normaldruck und den Kapillarkräften ist eine Benetzung von 100 % simulativ aber auch experimentell nicht möglich.





*Abbildung 10.* Simulation der Elektrolytströmung (in rot) durch das Totvolumen der Zelle und den Zellwickel über 120 Minuten, welches die Wechselwirkung zwischen den Teilprozessen ‚Dosierung‘ und ‚Benetzung‘ abbildet. Die Bilder sind nach (a) 0,1 Sekunden, (b) 2,3 Sekunden, (c) 9 Minuten, (d) 30 Minuten, (e) 30 Minuten und eine Sekunde, (f) 32 Minuten, (g) 65 Minuten und (h) 160 Minuten dargestellt.

Zusätzlich zu den qualitativen Ergebnissen können auch die Daten aus den erstellten „Monitoren“ verwendet werden, um das Benetzungsverhalten grafisch darzustellen. In Abbildung 11 ist der Benetzungsgrad und die Menge an Elektrolyt im Leervolumen über die Zeit dargestellt. Zusätzlich sind experimentelle Daten aus vergleichbaren Versuchen mit identischen Prozess- und Zellparametern aufgezeigt, die zur Validierung des Modells herangezogen werden.



*Abbildung 11.* Quantitative Ergebnisse der Makrosimulation zum Vergleich des Verlaufs des simulierten (Sim.) und experimentellen (Exp.) Benetzungsgrades (linke y-Achse). Zusätzlich ist der Elektrolytstand im Leervolumen (rechte y-Achse) dargestellt.

Das simulierte Benetzungsverhalten zeigt eine sehr gute Übereinstimmung mit den experimentellen Daten. Zu einem kann das asymptotische Verhalten der Benetzungskurve in beiden Fällen abgebildet werden. Zusätzlich kann der Füllstand des Elektrolyten im Leervolumen überwacht werden, was in Experimenten messtechnisch nicht erfassbar ist. Dieser Simulationsansatz kann als Input die Daten aus vorherigen Prozessen verwenden, und die Benetzung der Zelle über die gesamte Prozesszeit abbilden. Im weiteren Schritt, wird die Befüllsimulation verwendet, um die Interaktion zwischen den Prozessen Stapeln und Elektrolytbefüllung zu modellieren.

Die Veröffentlichung der Schritte zur Erstellung des Gesamtmodells wurden unter den folgenden Infos akzeptiert:

*Titel: Holistic modeling of the electrolyte filling process to study the dosing and wetting behavior of lithium-ion batteries*

*Autoren: Jan Hagemeister, Ahmed Elkhoshet, Yiping Hu, Rüdiger Daub*

*Konferenz: 17th CIRP Conference on Intelligent Computation in Manufacturing Engineering*

#### Interaktion Stapeln und Elektrolytbefüllung

Wie das Modell der Elektrolytbefüllung mit den weiteren Prozessschritten interagiert und in die Sim4Pro-Plattform integriert ist, wurde in nachfolgender Veröffentlichung im Journal „*Energy Technology*“ publiziert:

*Titel: Digitalization Platform for Sustainable Battery Cell Production: Coupling of Process, Production, and Product Models*

*Autoren: Gabriela Ventura Silva, Matthias Thomitzek, Mark Lippke, Thilo Heckmann, Hassan Karaki, Clemens Lischka, Felix Möhlen, Dominik Mayer, Jan Hagemeister, Rüdiger Daub, Jürgen Fleischer, Hermann Nirschl, Daniel Schröder, Philip Scharfer, Wilhelm Schabel, Arno Kwade, and Christoph Herrmann*

*DOI: 10.1002/ente.202200801*

Eine PDF-Version der Veröffentlichung wurde dem Bericht beigelegt.

Der Einfluss des Stapelprozesses bzw. die Auswirkungen der Elektrodenpositionierung und deren Wölbung auf die Prozesszeiten der Elektrolytbefüllung wurde im Rahmen des Arbeitspaketes im Detail untersucht. Hierfür musste das bereits erläuterte „Standard-Vorgehen“ der Befüllsimulation etwas angepasst werden. Anstatt eine homogene Dicke der porösen Zone anzunehmen, wurde die wellige Elektrode aus der Abaqus-Stapelsimulation importiert und in der Befüllsimulation weiterverarbeitet. Die vier Schritte zur Kopplung der Stapel- und Befüllsimulation sind in Abbildung 12 dargestellt.

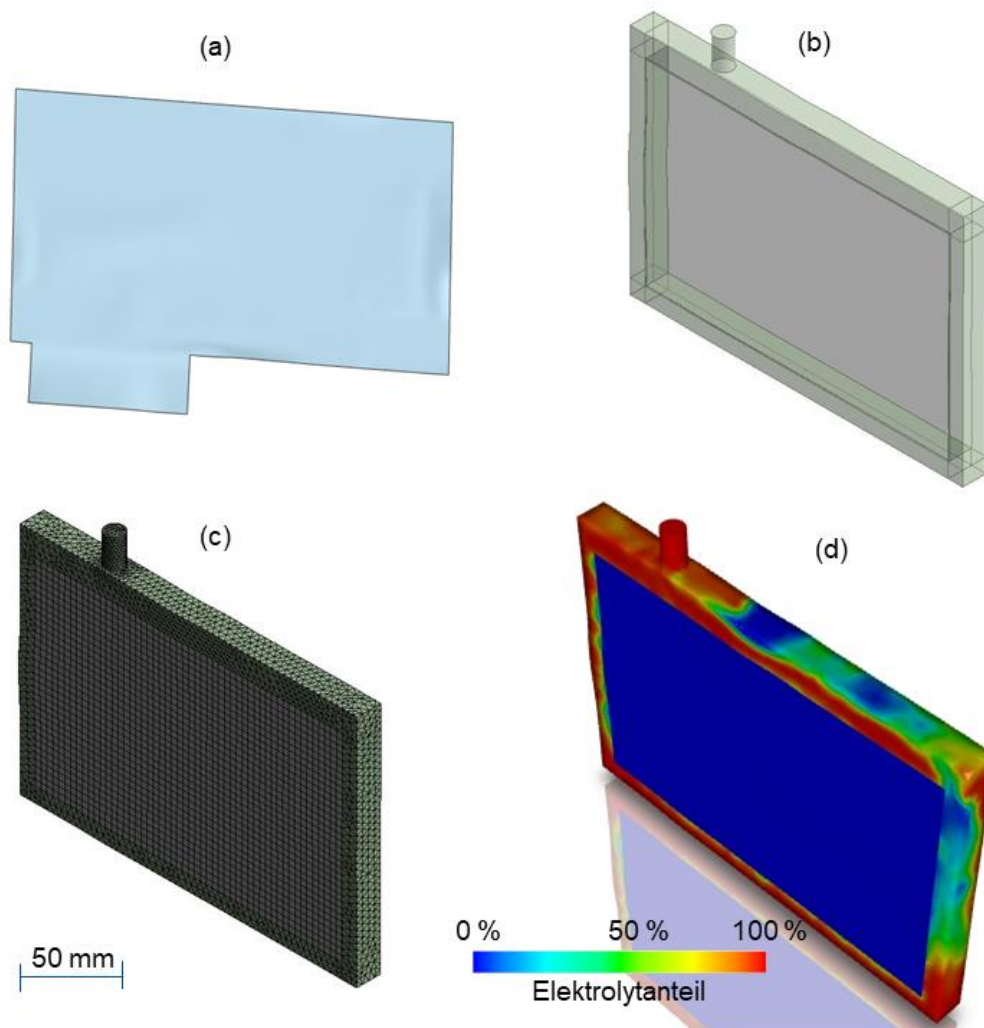
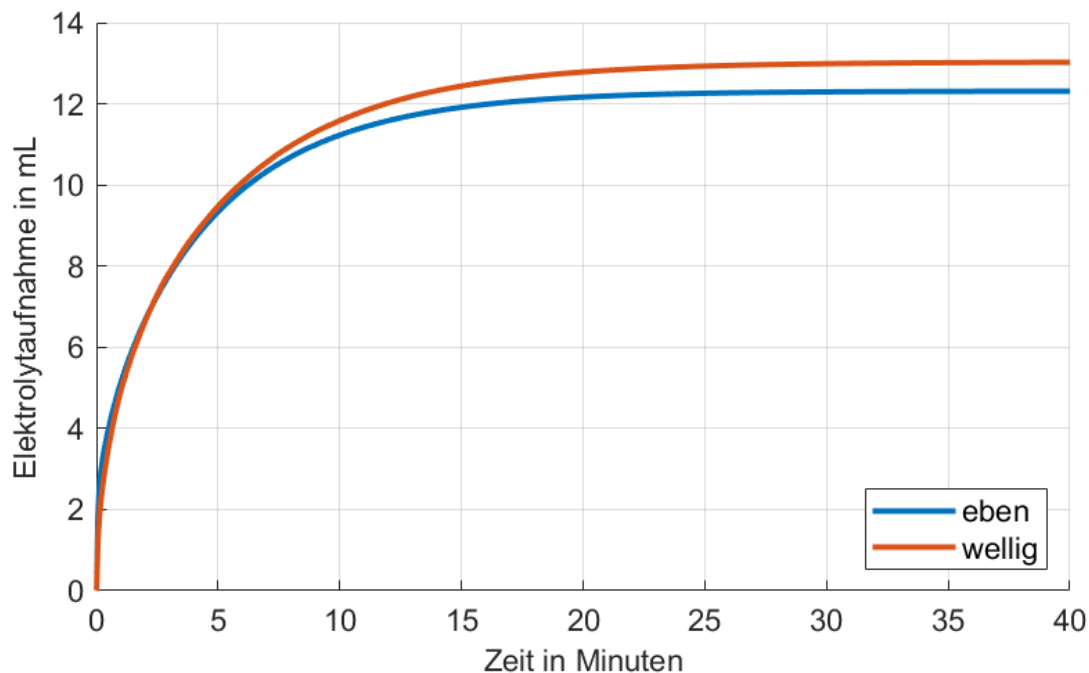


Abbildung 12. Schritte zur Kopplung der Stapel- und Befüllsimulation, dargestellt durch die wellige Elektrode (a), CAD-Datei der Zelle (b), Mesh (c) und Befüllsimulation (d).

Die wellige Elektrode aus der Stapelsimulation ist in *Abbildung 12* (a) zu sehen und wird als .stl-Datei importiert. Die Welligkeit ist optisch nur leicht an den Rändern zu sehen, da die Ausprägungen im Mikrometerbereich befinden. Im zweiten Schritt wird die wellige Elektrode in die poröse Zone der Zelle eingefügt, welches in Abschnitt (b) zu sehen ist. Die Geometrie wird anschließend in einem Gitter segmentiert (c), damit die Befüllsimulation (d) durchgeführt werden kann.

Da die Elektrodenwelligkeit nur einen leichten Einfluss auf die Benetzungszeit auf Zellebene aufweist, wurde für den Vergleich eine quantitative Darstellung gewählt. In *Abbildung 13* ist die Benetzung über die Zeit der welligen und ebenen Elektroden aufgezeigt.



*Abbildung 13.* Quantitative Ergebnisse der Befüllsimulation zur Untersuchung des Einflusses der Elektrodenwelligkeit auf das Benetzungsverhalten der Zelle.

Zu sehen in *Abbildung 13* ist der zeitliche Verlauf der Elektrolytaufnahme in die Porenräume der Zelle. In Blau gezeigt ist die ebene Elektrode ohne Welligkeit, welche in diesem Fall die Referenz darstellt. Wie bei den vorherigen Simulationen schreitet die Benetzung aufgrund des Druckzustandes in der Zelle zu Beginn schneller und am Schluss langsamer fort. Die wellige Elektrode, in oranger Farbe dargestellt, weist einen sehr ähnlichen Verlauf auf, aber führt zu einer insgesamt höheren Benetzung. Der Grund für diese Beobachtung ist vermutlich die Entstehung von Hohlräumen innerhalb der porösen Zone, welche zu einer beschleunigten Benetzung führt. Besonders hervorzuheben, ist dass die Interaktion zwischen dem Stapel- und Befüllprozess mit dem beschriebenen Vorgehen erfolgreich simuliert werden konnte.

### III. Bewertung der Projektergebnisse

#### Wichtigste Positionen des zahlenmäßigen Nachweises

Die Zuwendung des Projekts Sim4Pro ist in unten aufgeführter Tabelle aufgeschlüsselt, gerundet auf den nächsten Euro für bessere Sichtbarkeit. Aufgeführt sind die Bewilligten sowie die verwendeten Mittel, welche im Finanzbericht detailliert ausgeführt wurden.

	Personal- mittel	Sachmittel	Investitio- nen	Mieten und Rechner- kosten	Dienst- reisen	Gesamt
Bewilligt	210.868 €	9.300 €	12.500 €	3.200 €	7.896 €	243.764 €
Verwendet	175.507 €	9.334 €	14.134 €	2.910 €	1.836 €	203.721 €

Der größte Teil der Mittel wurde für die Gehälter der wissenschaftlichen Mitarbeiter sowie Hilfwissenschaftler verwendet. Der zweitgrößte Posten entsteht durch Investitionen, welche aus einer Position (Workstation für die numerische Simulation) besteht. Dieser wurde für die Simulation der Elektrolytbefüllung verwendet, da die numerische Simulation einen leistungsstarken Rechner benötigt.

#### Notwendigkeit und Angemessenheit der geleisteten Projektarbeiten

Der Prozess der Elektrolytbefüllung ist charakterisiert durch lange Prozesszeiten und einen hohen experimentellen Aufwand. Ändert sich das Zellformat oder die Materialeigenschaften, muss der gesamte Prozess neu befähigt werden. Dazu kommt, dass zu Projektbeginn kein geeignetes Modell für die virtuelle Abbildung des Prozesses zur Verfügung stand. Aus diesem Grund wurde im Rahmen des Projektes Sim4Pro und durch die Arbeiten am *iwb* eine Prozessketten-Simulation erstellt, in welches das beschriebene Befüllmodell integriert ist. Zusätzlich ist die hohe Nachfrage an einer Simulationsplattform für die Batterieproduktion aus Gesprächen mit der Industrie deutlich vernehmbar.

#### Verwertung und voraussichtlicher Nutzen

Die Ergebnisse des Projekts finden einen Nutzen in der Lehre, der Forschung und der Industrie. Die im Rahmen des Projektes entstanden Ergebnisse wurden in Publikationen veröffentlicht, sodass die erarbeiteten wissenschaftlichen Ergebnisse für ein möglichst breites Publikum verfügbar sind. Vor allem in der Industrie können die Ergebnisse verwendet werden, um die deutsche Batterieproduktion zu stärken. In der aktuell sehr dynamischen Batterielandschaft, mit neu entwickelten Materialien, Zellformaten, Produktionskapazitäten, können die Erkenntnisse angewandt werden, um die Industrie zu unterstützen. Darüber hinzufügen können die Projektergebnisse auch als Grundlage für die Entwicklung neuer Produkte oder Dienstleistungen dienen, die sich auf dem Markt behaupten können. Letztlich kann die Verwertung der Projektergebnisse einen wichtigen Beitrag zur Wissensentwicklung, wirtschaftlichen Verbesserung und sozialen Fortschritt über die Lehre an Hochschulen darstellen.



## Veröffentlichungen

Folgende Veröffentlichungen wurden im Rahmen des Projekts Sim4Pro erstellt, von welchen sich zwei in der schriftlichen Ausarbeitung befinden.

Lfd. Nr.	Autoren	Titel	Journal, Volume, Issue, Page	Jahr	Sonstiges (DOI)
1	Florian J. Günter, Josef Keilhofer, Christof Rauch, Stefan Rössler, Michael Schulz, Wolfgang Braunwarth, Ralph Gilles, Rüdiger Daub, Gunther Reinhart	Influence of pressure and temperature on the electrolyte filling of lithium-ion cells: Experiment, model and method	Journal of Power Sources, Volume 517, 1 January 2022	2022	10.1016/j.jpowsour.2021.230668
2	Jan Hagemeister, Florian J. Günter, Thomas Rinner, Franziska Zhu, Alexander Papst and Rüdiger Daub	Numerical Models of the Electrolyte Filling Process of Lithium-Ion Batteries to Accelerate and Improve the Process and Cell Design	Batteries 2022, 8(10), 159	2022	10.3390/batteries8100159
3	Gabriela Ventura Silva, Matthias Thomitzek, Mark Lipke, Thilo Heckmann, Hassan Karaki, Clemens Lischka, Felix Möhlen, Dominik Mayer, Jan Hagemeister, Rüdiger Daub, Jürgen Fleischer, Hermann Nirschl, Daniel Schröder, Philip Scharfer, Wilhelm Schabel, Arno Kwade, and Christoph Herrmann	Digitalization Platform for Sustainable Battery Cell Production: Coupling of Process, Production, and Product Models	Energy Technology, Volume 11, Issue 5	2022	10.1002/ente.202200801
4	Jan Hagemeister, Ahmed Elkhoshet, Yiping Hu, Rüdiger Daub	Holistic modeling of the electrolyte filling process to study the dosing and wetting behavior of lithium-ion batteries	17th CIRP ICME conference proceedings	2023	Akzeptiert

5	Jan Hagemeister, Florian Günter, Yiping Hu, Ahmed Elkhoshet, Andreas Balles, Rüdiger Daub	Applying numerical simulation to model varying process and cell parameters during the electrolyte filling process of lithium-ion batteries	-	202X	Geplant
---	---	--	---	------	---------

---

Ort

---

Datum

---

Prof. Dr.-Ing. Rüdiger Daub

## Berichtsblatt

1. ISBN oder ISSN --	2. Berichtsart (Schlussbericht oder Veröffentlichung) Schlussbericht
3. Titel Sim4Pro: Digitalisierungsplattform – Simulation für die Batteriezellproduktion.	
4. Autor(en) [Name(n), Vorname(n)]  Hagemeister, Jan Daub, Rüdiger	5. Abschlussdatum des Vorhabens März 2023
	6. Veröffentlichungsdatum September 2023
	7. Form der Publikation Bericht
8. Durchführende Institution(en) (Name, Adresse)  Technische Universität München TUM School of Engineering and Design Institut für Werkzeugmaschinen und Betriebswissenschaften (iwb) Boltzmannstr. 15 85748 Garching b. München	9. Ber. Nr. Durchführende Institution --
	10. Förderkennzeichen 03XP0242B
	11. Seitenzahl 23
12. Fördernde Institution (Name, Adresse)  Bundesministerium für Bildung und Forschung (BMBF) 53170 Bonn	13. Literaturangaben 5
	14. Tabellen 4
	15. Abbildungen 13
16. Zusätzliche Angaben --	
17. Vorgelegt bei (Titel, Ort, Datum) --	
18. Kurzfassung Das Projekt Sim4Pro betrachtet alle Prozessschritte vom Mischen bis zur Elektrolytbefüllung sowie übergeordnete Themen, wie die Energieeffizienz und elektrochemischen Zelleigenschaften. Die Befüllung von Batteriezellen mit flüssigem Elektrolyten ist aufgrund der langen Prozesszeit ein Fertigungsschritt mit hoher Kapitalbindung. Zusätzlich sind Fehler bei der Benetzung aufgrund der bereits erfolgten Wertschöpfung besonders kostenintensiv. Deshalb liegt der Fokus der Arbeitspakete des <i>iwb</i> auf der Elektrolytbefüllung, für welche im Rahmen des Projektes ein Simulationsmodell aufgebaut wurde. In folgendem Bericht werden die Ergebnisse der Projektarbeit der letzten 3,5 Jahre zusammenfassend dargelegt. Insgesamt trägt das Vorhaben Sim4Pro dazu bei, die Rolle Deutschlands auf dem Forschungsgebiet der Batteriezellproduktion zu stärken und auch im internationalen Vergleich eine führende Rolle einzunehmen.	
19. Schlagwörter --	
20. Verlag --	21. Preis --