

TECHNISCHE UNIVERSITÄT MÜNCHEN

TUM School of Engineering and Design

**Untersuchungen zu Fehlern beim Kalandrieren  
von Lithium-Ionen-Elektroden**

**Till Günther**

Vollständiger Abdruck der von der TUM School of Engineering and Design der Technischen Universität München zur Erlangung des akademischen Grades eines

Doktors der Ingenieurwissenschaften (Dr.-Ing.)

genehmigten Dissertation.

Vorsitz: Prof. Dr.-Ing. Michael F. Zäh

Prüfer der Dissertation:

1. Prof. Dr.-Ing. Gunther Reinhart
2. Prof. Dr.-Ing. Andreas Jossen

Die Dissertation wurde am 25.11.2022 bei der Technischen Universität München eingereicht und durch die TUM School of Engineering and Design am 04.04.2023 angenommen.



## Geleitwort der Herausgeber

Die Produktionstechnik ist in Zeiten globaler Herausforderungen, wie der Klimakrise, dem Mobilitätswandel und der Überalterung der Gesellschaft in westlichen Ländern, für eine nachhaltige Weiterentwicklung unserer Industriegesellschaft von zentraler Bedeutung. Der Einfluss eines Industriebetriebs auf die Umwelt und die Gesellschaft hängt dabei entscheidend von den eingesetzten Produktionsmitteln, den angewandten Produktionsverfahren und der eingeführten Produktionsorganisation ab. Erst das optimale Zusammenspiel von Mensch, Organisation und Technik erlaubt es, alle Potenziale für den Unternehmenserfolg auszuschöpfen. Dabei muss größtes Augenmerk darauf gelegt werden, möglichst ressourcenschonend, effizient und resilient zu werden, um flexibel im volatilen Produktionsumfeld zu agieren.

Um in dem Spannungsfeld Nachhaltigkeit, Komplexität, Kosten, Zeit und Qualität bestehen zu können, müssen Produktionsstrukturen ständig neu überdacht und weiterentwickelt werden. Dabei ist es notwendig, die Komplexität von Produkten, Produktionsabläufen und -systemen einerseits zu verringern und andererseits besser zu beherrschen.

Ziel der Forschungsarbeiten des *iwb* ist die ständige Verbesserung von Produktentwicklungs- und Planungssystemen, von Herstellverfahren sowie von Produktionsanlagen. Betriebsorganisation, Produktions- und Arbeitsstrukturen sowie Systeme zur Auftragsabwicklung werden unter besonderer Berücksichtigung der Anforderungen des Personals sowie von Nachhaltigkeitsaspekten entwickelt. Die dabei eingesetzten rechnergestützten und Künstliche-Intelligenz-basierten Methoden und die notwendige Steigerung des Automatisierungsgrades dürfen jedoch nicht zu einer Verfestigung arbeitsteiliger Strukturen führen. Fragen der optimalen Einbindung ökologischer und sozialer Aspekte in alle Planungs- und Entwicklungsprozesse spielen deshalb eine sehr wichtige Rolle.

Die im Rahmen dieser Buchreihe erscheinenden Bände stammen thematisch aus den Forschungsbereichen des *iwb*. Diese reichen von der Entwicklung von Produktionssystemen über deren Planung bis hin zu den eingesetzten Technologien in den Bereichen Fertigung und Montage. Die Steuerung und der Betrieb von Produktionssystemen, die Qualitätssicherung, die Verfügbarkeit und die Autonomie sind Querschnittsthemen hierfür. In den *iwb*-Forschungsberichten werden neue Ergebnisse und Erkenntnisse aus der praxisnahen Forschung des Institutes veröffentlicht. Diese Buchreihe soll dazu beitragen, den Wissenstransfer zwischen dem Hochschulbereich und den Anwendenden zu verbessern.



# Inhaltsverzeichnis

<b>Geleitwort der Herausgeber</b>	<b>III</b>
<b>Abkürzungsverzeichnis</b>	<b>V</b>
<b>Formelzeichenverzeichnis</b>	<b>VII</b>
<b>1 Einleitung</b>	<b>1</b>
1.1 Ausgangssituation und Problemstellung	1
1.2 Zielsetzung	3
1.3 Wissenschaftstheoretische Einordnung der Arbeit und Vorgehen	3
<b>2 Grundlagen und Stand der Technik</b>	<b>7</b>
2.1 Übergeordnete Terminologie und Methoden	7
2.1.1 Fertigungstechnische Prozessketten	7
2.1.2 Qualität	8
2.1.3 Fertigungsmesstechnik	9
2.2 Lithium-Ionen-Batteriezellen	11
2.2.1 Aufbau und Funktionsweise	12
2.2.2 Lithium-Ionen-Elektroden	13
2.2.3 Batteriezellfertigung	18
2.3 Kalandrieren	19
2.3.1 Begriffserklärung und Aufbau eines Kalanders	20
2.3.2 Kalandrieren von Lithium-Ionen-Elektroden	21
2.3.3 Verhältnisse im Walzspalt	24
<b>3 Stand der Forschung</b>	<b>27</b>
3.1 Prüf- und Messverfahren für Elektroden	27
3.2 Auswirkung des Kalandrierens auf die Elektrodeneigenschaften	33
3.2.1 Elastizität und Plastizität	35
3.2.2 Haftfestigkeit	37
3.2.3 Sonstige Eigenschaften	39
3.3 Prozessparameter zur Einstellung von Elektrodeneigenschaften	41
3.4 Auswirkung des Kalandrierens auf nachfolgende Prozesse	46

3.5	Zusammenfassung und Handlungsbedarf	48
<b>4</b>	<b>Fehlerbilder beim Kalandrieren von Lithium-Ionen-Elektroden</b>	<b>51</b>
4.1	Methodisches Vorgehen	51
4.1.1	Definition eines Fehlerbildes	51
4.1.2	Wissensakquisition und -interpretation	52
4.2	Fehlerbeschreibung und -klassifikation	56
4.2.1	Beschreibung und Klassifikation der Fehlerbilder	57
4.2.2	Einfluss der Fehlerbilder auf nachfolgende Prozesse	69
<b>5</b>	<b>Auswahl und Entwicklung von Messverfahren zur Erfassung der Fehlerbilder</b>	<b>75</b>
5.1	Prüfung der Weiterverarbeitungseigenschaften von Elektroden	75
5.1.1	Allgemeine Anforderungen an die Messverfahren	75
5.1.2	Diskussion und Auswahl der Messverfahren	78
5.2	Abreiß-, Biege- und Scherversuch	82
5.2.1	Prototypische Umsetzung	82
5.2.2	Messdatenauswertung	85
5.3	Planheitsmessung	91
5.3.1	Diskussion der Verfahren aus Stand der Technik und Forschung	91
5.3.2	Aufbau und Funktionsweise des Messsystems	93
5.3.3	Datenverarbeitung und -auswertung	97
<b>6</b>	<b>Einfluss des Kalandrierens auf die Fehlerbilder</b>	<b>101</b>
6.1	Untersuchungsziele und Vorgehen	101
6.2	Versuchsplanung	106
6.3	Versuchsergebnisse	110
6.3.1	Struktureigenschaften von Anoden	111
6.3.2	Geometrische Eigenschaften von Kathoden	118
6.3.3	Struktureigenschaften von Kathoden	126
6.3.4	Mechanische Eigenschaften von Kathoden	133
6.4	Qualitative Validierung der Versuchsergebnisse	145

6.5	Modellgestützte Zusammenfassung der Versuchsergebnisse und Anwendung	151
<b>7</b>	<b>Technische und wirtschaftliche Bewertung</b>	<b>157</b>
7.1	Technische Bewertung	157
7.1.1	Anforderungsbezogene Bewertung	157
7.1.2	Nutzenpotenziale und Einschränkungen	160
7.2	Wirtschaftliche Bewertung	163
<b>8</b>	<b>Schlussbetrachtung</b>	<b>167</b>
8.1	Zusammenfassung	167
8.2	Ausblick	169
<b>9</b>	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>171</b>
<b>10</b>	<b>Abbildungsverzeichnis</b>	<b>207</b>
<b>11</b>	<b>Tabellenverzeichnis</b>	<b>213</b>
<b>12</b>	<b>Anhang</b>	<b>215</b>
A1	Verzeichnis der betreuten, relevanten Studienarbeiten	215
A2	Publikationsliste	216
A3	Versuchsplanung und -auswertung	218
A4	Fragebogen zur Sammlung der Fehlerbilder	223
A5	Fragebogen zur Ermittlung des Einflusses der Fehlerbilder	227
A6	Bogigkeit	228
A7	Universalprüfmaschine für Abreiß-, Biege- und Scherversuche	229
A8	Prototypischer Aufbau des Planheitsmesssystems	230
A9	Messprogramm	231
A10	Elektrodenwelligkeit	232
A11	Experimentelles	232
A12	Versuchspläne	240
A13	Versuchsdokumentation	246
A14	Wirtschaftlichkeitsberechnung	247





## Abkürzungsverzeichnis

Abkürzung	Bedeutung
BLB	Battery LabFactory Braunschweig
C	Kohlenstoff bzw. Grafit
CMC	Carboxymethylcellulose
DMM	Domain Mapping Matrix
DRM	Design Research Methodology
DSM	Design Structure Matrix
e <sup>-</sup>	Elektron
EG	Entgeltgruppen
engl.	englisch
ERA	Entgeltrahmenabkommen
FPL	Forschungsproduktionslinie
IQR	Interquartile Range (dt. Interquartilsabstand)
<i>iwb</i>	Institut für Werkzeugmaschinen und Betriebswissenschaften
Li <sup>+</sup>	Lithium-Ion
LiMO <sub>2</sub>	Lithium-Metalloxid-Elektrode
LIB	Lithium-Ionen-Batteriezelle
MLR	Multiple lineare Regression
MR	Maschinenrichtung
NMP	N-Methyl-2-pyrrolidon
NMC	Lithium-Nickel-Mangan-Cobalt-Oxid
PPR	Product-Process-Resource
LCO	Lithium-Cobalt-Oxid
LMO	Lithium-Mangan-Oxid

<b>Abkürzung</b>	<b>Bedeutung</b>
Q	Kapazität
REM	Rasterelektronenmikroskop
RT	Raumtemperatur
SAICAS	Surface and Interfacial Cutting and Analysis System
SBR	Styrene Butadiene Rubber (dt. Styrol-Butadien-Kautschuk)
SPT	Shear Punch Test
SVM	Statistische Versuchsmethodik
SVP	Statistische Versuchsplanung
TEC	Lehrstuhl für Technische Elektrochemie
TUM	Technische Universität München
UPM	Universalprüfmaschine
UWB	Ursache-Wirkungs-Beziehung
VGCF	Vapor Grown Carbon Fiber
ZfP	Zerstörungsfreie Prüfung
ZPM	Zwischenproduktmerkmal

## Formelzeichenverzeichnis

Variable	Einheit	Bedeutung
$A$	mm	Wert der horizontalen Asymptote für $x \rightarrow -\infty$ (logistische Regression)
$A_B$	cm <sup>2</sup>	Beschichtungsfläche
$A_H$	mm <sup>2</sup>	Probenfläche (Abreiversuch)
$B$	mm	Steigung der Kurve im bergang zwischen den beiden Asymptoten (logistische Regression)
$b_E$	mm	Probenbreite (Biegeversuch)
$C$	mm	Wendepunkt der Kurve (logistische Regression)
$D$	mm	Wert der horizontalen Asymptote fr $x \rightarrow +\infty$ (logistische Regression)
$d_{\text{Matrize}}$	mm	Matrizendurchmesser (Scherversuch)
$d_S$	mm	Scherspalt (Scherversuch)
$d_{\text{Stempel}}$	mm	Stempeldurchmesser (Scherversuch)
$d_W$	mm	Walzendurchmesser
$d_x$	mm	Abstand zwischen zwei Messpunkten (Planheitsmessung)
$E$	mm	Asymmetriefaktor (logistische Regression)
$E_B$	MPa	Biegemodul
$f$	mm	Wellenlnge der Elektrodenwelligkeit bzw. Wellen am Beschichtungsrand
$f_S$	Hz	Abtastrate des Sensors (Planheitsmessung)
$F_B$	N	Biegekraft (Biegeversuch)
$F_{\text{max},B}$	N	Maximalkraft (Biegeversuch)
$F_{\text{max},H}$	N	Maximale Abzugskraft (Abreiversuch)
$F_{\text{max},S}$	N	Maximalkraft (Scherversuch)

<b>Variable</b>	<b>Einheit</b>	<b>Bedeutung</b>
$h_C$	mm	Abstand der Elektrodenkante von der idealen Geraden (Bandsäbel)
$h_S$	$\mu\text{m}$	Walzspalt
$h_W$	mm	Höhe der Falten am Ableiter
$k_{fm}$	Pa	Fließspannung
$I_E$	$10\mu\text{m/m}$	Ebenheitsindex (Planheitsmessung)
$l_B$	mm	Stützweite (Biegeversuch)
$l_{C,0}$	mm	Kreissehne (Bandsäbel)
$l_{C,1}$	mm	Bogenlänge (Bandsäbel)
$l_d$	mm	Gedrückte Länge
$l_{E,0}$	mm	Ursprüngliche Länge (Planheitsmessung)
$l_{E,1}$	mm	Bogenlänge (Planheitsmessung)
$l_W$	mm	Länge der Falten am Ableiter
$m$	N/mm	Steigung der Ausgleichsgeraden (Biegeversuch)
$m_B$	mg	Masse der Beschichtung
$n$	–	Stichprobengröße
$s$	mm	Stempelweg (Scherversuch)
$s_A$	–	Standardabweichung
$s_B$	mm	Durchbiegung (Biegeversuch)
$s_{\text{Bruch}}$	mm	Stempelweg beim Bruch (Scherversuch)
$s_F$	–	Standardfehler des Mittelwertes
$T_W$	$^{\circ}\text{C}$	Walzentemperatur
$v_A$	m/min	Austrittsgeschwindigkeit Walzgut
$v_B$	m/min	Bahngeschwindigkeit

Variable	Einheit	Bedeutung
$v_E$	m/min	Eintrittsgeschwindigkeit Walzgut
$v_{w,1}$	m/min	Umlaufgeschwindigkeit Oberwalze
$v_{w,2}$	m/min	Umlaufgeschwindigkeit Unterwalze
$v_x$	m/min	Walzgutgeschwindigkeit
$W_{\text{Aktivmaterial}}$	%	Anteil in der Formulierung
$W_{\text{Binder}}$		
$W_{\text{Additiv}}$		
$x$	–	Variable Indizes bzw. stöchiometrische Zahl
$x_{i,S}, y_{i,S}$	mm	Koordinaten des Messsignals (Planheitsmessung)
$x_k, y_k, z_k$	mm	Koordinaten Kalandrier
$x_n$	–	Einflussgrößen
$\bar{y}$	–	Arithmetisches Mittel
$y_i$	–	Zielgröße (Einzelbeobachtung)
$y_n$	–	Physikalische Elektroden Eigenschaften
$\alpha_w$	°	Winkel der Falten am Ableiter
$\delta_B$	μm	Beschichtungsdicke
$\delta_E$	μm	Elektroden dicke
$\delta_{E,0}$	μm	Elektroden dicke <u>vor</u> dem Kalandrieren
$\delta_{E,1}$	μm	Elektroden dicke <u>nach</u> dem Kalandrieren
$\varepsilon_E$	%	Dehnung bzw. Längenänderung der Elektrode (Planheitsmessung)
$\varepsilon_B$	%	Dehnung (Biegemodul)
$\theta_S$	°	Scherwinkel (Scherversuch)
$\lambda$	mm	Wellenhöhe der Elektrodenwelligkeit bzw. Wellen am Beschichtungsrand

Variable	Einheit	Bedeutung
$\Pi$	–	Verdichtungsrate
$\rho_{\text{Aktivmaterial}}$	$\text{g/cm}^3$	Reindichte
$\rho_{\text{Binder}}$		
$\rho_{\text{Additiv}}$		
$\sigma_{\text{B}}$	Pa	Biegesteifigkeit (Biegeversuch)
$\sigma_{\text{H}}$	kPa	Haftfestigkeit (Abreiversuch)
$\sigma_z$	Pa	Druckspannung
$\tau_{\text{S}}$	MPa	Scherfestigkeit (Scherversuch)
$\tau_{xz}$	Pa	Schubspannung (Scherversuch)
$\Phi$	%	Porosität

# 1 Einleitung

*„We are sinking, but so is everyone else [...]“*,

sagte Simon Kofe, Außenminister von Tuvalu, knietief im Pazifik stehend in seiner Videoansprache anlässlich der UN-Klimakonferenz in Glasgow 2021, anspielend auf den steigenden Meeresspiegel infolge der Erderwärmung.

## 1.1 Ausgangssituation und Problemstellung

Die vom Menschen verursachten Treibhausgasemissionen sind eindeutig die Ursache für die Erderwärmung und den damit einhergehenden Klimawandel. Zu diesem Schluss kommt der Weltklimarat in seinem sechsten Sachstandsbericht (IPCC 2021). In dem fünf Jahre zuvor ratifizierten Übereinkommen von Paris haben sich die Industrieländer verpflichtet, konkrete Ziele zur Reduzierung des CO<sub>2</sub>-Ausstoßes zu formulieren, um die Erderwärmung zum Ende des Jahrhunderts auf unter zwei Grad Celsius zu begrenzen (EUROPÄISCHE UNION 2016).

Im Jahre 2019 betragen die Emissionen in Deutschland 810 Millionen Tonnen CO<sub>2</sub>-Äquivalent, wobei die Sektoren Energiewirtschaft und Verkehr aufgrund der fossilen Energieerzeugung bzw. der Verbrennungsmotoren ca. die Hälfte der Emissionen verursachen. (UMWELTBUNDESAMT 2021A)

Die fossile Energieerzeugung lässt sich durch erneuerbare Energien wie bspw. Windkraft, Photovoltaik und Wasserkraft ersetzen. In Deutschland lag deren Anteil im Jahre 2020 bei 45,4 % des Bruttostromverbrauchs (UMWELTBUNDESAMT 2021B). Gerade im Verkehrssektor stellt der elektrische Antrieb eine sinnvolle Alternative zum Verbrennungsmotor dar. Zulassungsdaten des Kraftfahrt-Bundesamtes belegen jedoch, dass im Jahre 2020 lediglich 6,7 % elektrisch angetriebene Pkw zugelassen wurden (KRAFTFAHRT-BUNDESAMT 2020).

Erneuerbare Energien und elektrisch betriebene Fahrzeuge erfordern den Einsatz von elektrischen Energiespeichern, um die Energie aufzunehmen und abzugeben (ZUBI ET AL. 2018, S. 293). Diese spielen in der Energiewende eine zentrale Rolle, weil sie die Energie während der Erzeugung puffern und verzögert an die Verbraucher wiedergeben können (ZHANG & ZHANG 2015, S. 1). In der Elektromobilität hat die Kapazität der Energiespeicher einen maßgeblichen Einfluss auf die Reichweite. Folglich sind elektrische Energiespeicher Wegbereiter für Energiewende und Elektromobilität.

Unter den elektrischen Energiespeichern sticht die Lithium-Ionen-Batteriezelle (LIB) mit ihrer hohen Energie- und Leistungsdichte, der hohen Lebensdauer und dem nahezu ausbleibenden Kapazitätsverlust bei mehrfacher Teilentladung heraus (ZUBI ET AL. 2018, S. 294). Nachteilig sind die vergleichsweise hohen Kosten. Diese konnten zwar seit der Markteinführung im Jahre 1991 um ca. 97 % gesenkt werden (ZIEGLER & TRANCIK 2021, S. 1638), stellen aber weiterhin ein Markthindernis dar. Zudem muss die Energiedichte erhöht werden, um die Kundenakzeptanz zu steigern (NATIONALE PLATTFORM ZUKUNFT DER MOBILITÄT 2021). Daraus leiten sich die zwei wesentlichen Ziele für die Entwicklung von LIB ab (MATSUKI & OZAWA 2009, S. 7, STENZEL ET AL. 2015, S. 170):

- Senkung der Kosten in €/kWh und
- Steigerung der Energiedichte in Wh/kg bzw. Wh/l.

Für die Kosten von LIB sind die Herstell- bzw. Materialkosten bestimmend. Eine Möglichkeit zur Kostenreduktion besteht in der Senkung der Ausschussrate (SCHÜNEMANN 2015, S. 122). Die normierten Kosten in €/kWh können auch durch höhere Elektrodendichten gesenkt werden (SCHÜNEMANN 2015, S. 120), die zu höheren volumetrischen Energiedichten führen (KWADE ET AL. 2018, S. 293), was sich wiederum positiv auf die Reichweite auswirkt.

Die Prozesskette der Batterieproduktion teilt sich in Elektrodenherstellung und Zellmontage sowie Formierung und Alterung auf. Die Batterieelektroden werden im Kalandrierprozess verdichtet. Kalandrieren ist der letzte Prozess der Elektrodenherstellung und hat somit einen erheblichen Einfluss auf die Qualität der Elektroden, sowohl beim Endprodukt als auch bei der Weiterverarbeitung in der Zellmontage. Zu hohe Verdichtungsraten können Fehler an der Elektrode verursachen, welche die Weiterverarbeitung erschweren und zu Ausschuss führen können und somit die erreichbare Energiedichte begrenzen (BOLD & FLEISCHER 2018, S. 573). Folglich herrscht ein Zielkonflikt zwischen der Erhöhung der Elektrodendichte zur Steigerung der Energiedichte und der Vermeidung von Ausschuss zur Reduktion der Kosten. Daraus leitet sich das Ziel dieser Arbeit ab, welches im folgenden Abschnitt dargelegt wird.



### 1.2 Zielsetzung

Ziel der vorliegenden Arbeit ist es, das Kalandrieren im Hinblick auf den Ausschuss in den Folgeprozessen zu untersuchen, um die Energiedichte von LIB zu erhöhen, ohne die Ausschussrate in der Produktion negativ zu beeinflussen. Hierfür soll Wissen zur Entstehung, Beeinflussung und Vermeidung von Fehlern geschaffen werden.

Die zu schließende wissenschaftliche Lücke lässt sich mithilfe folgender Forschungsfragen definieren:

- **Forschungsfrage 1:** Was ist ein Fehler<sup>1</sup> und welche Fehler führen in den nachgelagerten Prozessen zu Ausschuss?
- **Forschungsfrage 2:** Wie lassen sich die Fehler erfassen und beschreiben?
- **Forschungsfrage 3:** Was ist der Einfluss des Kalandrierprozesses auf die Fehler?

Das forschungsmethodische Vorgehen zur Beantwortung dieser Fragen und der daraus abgeleitete Aufbau der Arbeit werden im folgenden Abschnitt vorgestellt.

### 1.3 Wissenschaftstheoretische Einordnung der Arbeit und Vorgehen

Es existieren verschiedene Klassifikationen zur Einteilung der Wissenschaften, z. B. nach ihrem Forschungsgegenstand, ihren Erkenntniszielen oder ihren Forschungsmethoden (RÖTZER 2003, S. 164 ff.). Diese Arbeit beschäftigt sich mit der Untersuchung eines Fertigungsprozesses und ist demnach den Ingenieurwissenschaften zuzuordnen. Dabei ist allerdings der Begriff *Technikwissenschaften* zu bevorzugen, da nicht der Ingenieur, sondern die Technik den Forschungsgegenstand bildet (ROPOHL 2009, S. 34). Diese wurden bisher den „angewandten“ Wissenschaften zugeordnet. Somit stehen ihnen die „reinen“ bzw. Grundlagenwissenschaften gegenüber (ULRICH & HILL 1976, S. 305). Diese Einteilung wurde jedoch um die interdisziplinären Wissenschaften erweitert, denen die Technikwissenschaften angehören (KARMASIN & RIBING 2019, S. 29 f.). Sie integrieren Erkenntnisse und Methoden der Naturwissenschaften sowie weiterer Disziplinen.

---

<sup>1</sup> Der Begriff *Fehler* wird in Abschnitt 2.1.2 definiert und im Kontext dieser Arbeit in Abschnitt 4.1.1 diskutiert.

Die Forschungsmethodik bildet den Rahmen für das wissenschaftliche Arbeiten. Sie geht aus einem Wissenschaftsbereich hervor, in dem disziplinübergreifend untersucht wird, wie wissenschaftlich gearbeitet werden muss. Dabei handelt es sich um ein systematisches Vorgehen, das den einzelnen Forschungsmethoden wie z. B. einer Literaturrecherche übergeordnet ist. (KOTHARI 2004, S. 8, THOMAS 2021, S. 29)

Eine Forschungsmethodik wird i.d.R. für ein spezifisches Wissenschaftsgebiet entwickelt. Die von BLESSING & CHAKRABARTI (2009) erarbeitete *Design Research Methodology* (DRM) unterstützt z. B. die Forschung der Produktentwicklung, wird aber durch die weit gefasste Definition eines Produkts und ihren allgemeinen Aufbau auch in anderen Wissenschaften angewandt. Sie bildet die forschungsmethodische Grundlage dieser Arbeit.

<b>Phasen der DRM</b>				
<b>Typologie (Nr. 5)</b>	Review-based	Comprehensive	Comprehensive	Initial
<b>Kapitel</b>	1 & 2	3 & 4	5 & 6	7 & 8
<b>Inhalt</b>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Ausgangssituation &amp; Problemstellung</li> <li>• Zielsetzung</li> <li>• Grundlagen</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Stand der Forschung</li> <li>• Beschreibung Fehlerbilder</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Entwicklung Messverfahren</li> <li>• Einfluss Kalandrieren auf Fehlerbilder</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Technische &amp; wirtschaftliche Bewertung</li> <li>• Schlussbetrachtung</li> </ul>
<b>Zweck</b>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Definition Forschungsthema</li> <li>• Identifikation relevanter Themenfelder</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Abgrenzung zum Stand der Wissenschaft</li> <li>• Eingrenzung Forschungsobjekt</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Beschreibung Kalandrieren</li> <li>• Modellbildung</li> <li>• Validierung Versuchsergebnisse</li> <li>• Funktionalität Messverfahren</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Evaluation der Anwendbarkeit &amp; des Nutzens</li> <li>• Ergebniskontrolle</li> </ul>
<b>Forschungsmethoden</b>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Analytisch-deduktiv</li> <li>• Terminologisch-deskriptiv</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Terminologisch-deskriptiv</li> <li>• Empirisch-induktiv</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Konstruktiv</li> <li>• Empirisch-induktiv</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Empirisch-induktiv</li> </ul>

Abbildung 1-1: Aufbau der Arbeit und forschungsmethodischer Rahmen in Anlehnung an BLESSING & CHAKRABARTI (2009, S. 15)

Die DRM besteht aus vier Phasen, die nicht streng aufeinander folgen müssen, sondern auch iterativ oder parallel ablaufen können (BLESSING &

CHAKRABARTI 2009, S. 17). Diese werden in Abbildung 1-1 gezeigt und mit den Inhalten der vorliegenden Dissertation verknüpft, was im Folgenden erläutert wird.

Die erste Phase der DRM dient der Klärung des Forschungsziels (engl. *Research Clarification*). Dabei werden der Ausgangs- und der Zielzustand beschrieben (Kapitel 1). Zunächst wird das Forschungsproblem deduktiv analysiert. Terminologisch-deskriptiv wird anschließend eine Literaturrecherche durchgeführt, um die relevanten Disziplinen und Themenfelder einzuschließen (Kapitel 2).

Nach der Definition des Themengebiets wird in der zweiten Phase namens Deskriptive Studie I (engl. *Descriptive Study I*) der Stand der Wissenschaft ebenso terminologisch-deskriptiv wiedergegeben, um sich von bestehenden Ansätzen abzugrenzen und den Handlungsbedarf abzuleiten (Kapitel 3). Das identifizierte Forschungsobjekt, also die zu untersuchenden Fehler, wird in einer Studie weiter eingegrenzt, die Forschungsmethoden wie z. B. eine Expertenbefragung einschließt (Kapitel 4).

In der präskriptiven Phase (engl. *Prescriptive Study*) wird der Lösungsvorschlag zur Problemstellung der Arbeit präsentiert. Zunächst werden dazu konstruktiv Messverfahren erarbeitet, um die Fehler zu beschreiben. Deren Funktionalität wird anschließend in Kapitel 6 nachgewiesen. Die erarbeiteten Messverfahren kommen dann zum Einsatz, um empirisch-induktiv den Einfluss des Kalandrierprozesses auf die Fehler aufzuzeigen. Am Ende des Kapitels wird die Konsistenz<sup>2</sup> der Versuchsergebnisse durch eine qualitative Validierung überprüft und deren Anwendung vorgestellt.

Anschließend werden Anwendbarkeit und Nutzen der prototypisch umgesetzten Messverfahren in der deskriptiven Studie II (engl. *Descriptive Study II*) evaluiert (Kapitel 7). Den Schluss bildet die Durchführung einer Ergebniskontrolle, um die Qualität und Vollständigkeit der Ergebnisse zusammenfassend zu beurteilen (Kapitel 8). Anknüpfende Arbeiten werden im Ausblick aufgeführt.

Die Dissertation entspricht der Typologie fünf nach BLESSING & CHAKRABARTI (2009, S. 18). So wurde die Einführung literaturbasiert durchgeführt (engl. *review-based*), die Lösungsbausteine wurden umfassend bearbeitet (engl. *comprehensive*) und die Evaluation ist initial, d. h. sie bereitet die Ergebnisse für die Verwendung durch andere vor.

---

<sup>2</sup> BLESSING & CHAKRABARTI (2009, S. 33 ff.) unterscheiden zwischen der Evaluation der entwickelten Lösung (engl. *support*) auf ihre Konsistenz, Funktionalität, usw. in der präskriptiven Studie und der Evaluation der Anwendbarkeit (engl. *applicability*) und des Nutzens (engl. *usefulness*) in der deskriptiven Studie II.

Das gewählte Vorgehen und die daraus entstandenen Ergebnisse wurden in vier Publikationen im Rahmen eines Peer-Review-Verfahrens einer kritischen Überprüfung unterzogen (GÜNTHER ET AL. 2016, SCHREINER ET AL. 2019, BILLOT ET AL. 2020, GÜNTHER ET AL. 2020).

## 2 Grundlagen und Stand der Technik

Dieses Kapitel gibt die theoretischen Grundlagen und den Stand der Technik in den Themenbereichen wieder, die für diese Arbeit relevant sind. Das Qualitätsverständnis und die zentrale Rolle des Prüfens, um Qualität festzustellen, werden in Abschnitt 2.1 vermittelt. Abschnitt 2.2 beschreibt die Batterieelektrode als das zu untersuchende Produkt mitsamt seinen spezifischen Qualitätsmerkmalen. Zuletzt wird in Abschnitt 2.3 das Kalandrieren als Prozess zur Herstellung von Batterieelektroden vorgestellt. Dies soll nicht nur dem Leser zum Verständnis der Arbeit dienen, sondern auch das Themengebiet eingrenzen.

### 2.1 Übergeordnete Terminologie und Methoden

Der Kalandrierprozess ist Teil einer fertigungstechnischen Prozesskette. Deren Besonderheiten werden daher in Abschnitt 2.1.1 erläutert. Da das Kalandrieren durch die Einbettung in eine Prozesskette Einfluss auf nachfolgende Prozesse nimmt, werden anschließend in Abschnitt 2.1.2 Begriffe zum Thema Qualität definiert. Abschließend wird in Abschnitt 2.1.3 die Fertigungsmesstechnik als Qualitätssicherungsinstrument vorgestellt.

#### 2.1.1 Fertigungstechnische Prozessketten

EICHGRÜN (2003, S. 8) beschreibt *fertigungstechnische Prozessketten* als „materialflussgekoppelte Abfolge betriebsmittelspezifischer Haupt- und Nebenprozesse<sup>3</sup> einer schrittweisen Zustandsänderung eines gemeinsamen Systemelements von einem Anfangszustand zu einem definierten Endzustand“. Dabei entspricht das gemeinsame Systemelement dem „Werkstück – als Element eines Produktsystems – in seinen jeweiligen material-, energie- und/oder informationsbezogenen Anfangs-, Zwischen- oder Endzuständen“. Zwischenzustände werden mit einem Satz von Zwischenproduktmerkmalen (ZPM) beschrieben, die jedoch von den Qualitätsmerkmalen (vgl. Abschnitt 2.1.2) eines Fertigprodukts zu unterscheiden sind (WENGLER 1996, S. 46 f.). Zustandsänderungen des Werkstücks werden dabei innerhalb der Prozesse durch Stell- und Störgrößen herbeigeführt. Aufgrund der linearen Abfolge in fertigungstechnischen Prozessketten dienen die ZPM der vorangegangenen Prozesse wiederum als Eingangsgrößen für den nachfolgenden Prozess (EICHGRÜN 2003,

---

<sup>3</sup> Hauptprozesse einer Prozesskette können verfahrenstechnische, fertigungstechnische und montagetechnische Prozesse sein (WESTERMEIER 2015, S. 8). Ein Nebenprozess ist in der Fertigungstechnik z. B. das Hochlaufen der Spindel einer Werkzeugmaschine (WESTKÄMPER & WARNECKE 2010, S. 133).

S. 9). Dies führt nicht nur zu einer starken Kopplung benachbarter Prozesse, sondern auch zu komplexen Ursache-Wirkungs-Beziehungen (UWB) über mehrere aufeinanderfolgende Prozessschritte (*Vieldeutigkeit*) hinweg. Ferner wird die Komplexität fertigungstechnischer Prozessketten von WESTERMEIER (2015, S. 12 f.) durch eine große Anzahl von Einzelprozessen sowie Eingangs- und Ausgangsgrößen (*Vielzahl*), die Integration „unterschiedliche[r], multidisziplinäre[r] Prozessarten“ (*Vielfalt*) und die zeitliche Abhängigkeit von „Ursache-Wirkungs-Beziehungen sowie Systemzustände[n] und Produkteigenschaften“ (*Veränderlichkeit*) definiert. Im Hinblick auf die zuvor genannten Eigenschaften fertigungstechnischer Prozessketten wird ein besonderes Augenmerk auf die Qualität gelegt, weshalb einschlägige Begriffe im Folgenden definiert werden.

### 2.1.2 Qualität

*Qualität* ist ein im Alltag viel verwendeter Begriff und beschreibt oftmals die Güte eines Produkts. Allerdings weist der lateinische Wortstamm *qualis* („wie beschaffen“) auf die „wertfreie Beschreibung einer Beschaffenheit“ hin (REINHART ET AL. 1996, S. 6). Qualität wird in der Norm DIN EN ISO 9000 (S. 18) international einheitlich als „Grad, in dem ein Satz inhärenter<sup>4</sup> Merkmale [...] Anforderungen erfüllt“, definiert. Eine Anforderung ist als „Erfordernis oder Erwartung“ zu verstehen, die „festgelegt, [...] vorausgesetzt oder verpflichtend ist“ (Norm DIN EN ISO 9000, S. 39). Die Merkmale bzw. Qualitätsmerkmale sind Eigenschaften, die sich auf eine Anforderung beziehen (Norm DIN EN ISO 9000, S. 53). Die „Gesamtheit der inhärenten Merkmale“ einer Einheit<sup>5</sup> nennt sich Beschaffenheit (Norm DIN 55350, S. 5). Qualität ist also die „realisierte Beschaffenheit einer Einheit bezüglich der Qualitätsforderung“ (BRÜGGEMANN & BREMER 2012, S. 3). Erfüllen die Qualitätsmerkmale nicht die Anforderungen, handelt es sich folglich um einen Fehler (Norm DIN EN ISO 9000, S. 40). Ist ein Produkt fehlerhaft, ist es Ausschuss und wird nach Möglichkeit nachgearbeitet oder gar aussortiert (Norm DIN 55350, S. 7). Fehler können „durch den Einsatz qualitätsorientierter Verfahren und Techniken“ (REINHART ET AL. 1996, S. 130) wie die statistische Versuchsmethodik (SVM) und Fertigungsmesstechnik vermieden werden. Die SVM – „als Methode zur effizienten Planung und Auswertung von Versuchsreihen“ – unterstützt und begleitet die Anwender durch ein standardisiertes Verfahren durch den gesamten Versuch (SIEBERTZ ET AL. 2017, S. 1 f.). Sie besteht grundsätzlich aus den Schritten Versuchsplanung, -durchführung und -auswertung. Hier sei bspw. auf

---

<sup>4</sup> „einer Einheit innewohnend“ (Norm DIN EN ISO 9000, S. 53).

<sup>5</sup> bspw. Produkt, Dienstleistung oder Prozess (Norm DIN EN ISO 9000, S. 38).

GUNDLACH (2004) oder KLEPPMANN (2016) verwiesen, von denen in Anhang A3 ein methodischer Abriss zu finden ist. Im Fehlerfall ist eine frühzeitige Erkennung wichtig, da auch „die fehlerhaften Produkte Herstellungskosten“ verursachen und folglich Fehlerkosten entstehen (HOCHHEIMER 2011, S. 84). Zur Erfassung von Fehlern dient die Fertigungsmesstechnik, die im folgenden Abschnitt definiert wird.

### 2.1.3 Fertigungsmesstechnik

Die Fertigungsmesstechnik beinhaltet „alle im Zusammenhang mit dem Messen und Prüfen verbundene[n] Tätigkeiten industriell hergestellter Produkte“ mit dem Ziel, die Qualität der gefertigten Produkte sicherzustellen (KEFERSTEIN ET AL. 2018, S. 301, TUTSCH 2006, S. 199). Dabei ist Aufgabe der Prüfung das „Feststellen, inwieweit ein Prüfobjekt<sup>6</sup> eine Forderung<sup>7</sup> erfüllt“ (Norm DIN 1319-1:1995-01, S. 6). Bei Nichterfüllung handelt es sich, wie in Abschnitt 2.1.2. beschrieben, um einen Fehler. Die zu prüfenden Merkmale können dabei quantitativ oder qualitativ sein. Anders als qualitative Merkmale besitzen quantitative Prüfmerkmale eine Skala mit definierten Abständen (Norm DIN 55350-12:1989-03, S. 2). So sind qualitative Prüfungen subjektiv, d.h. sie beruhen auf Sinneswahrnehmungen des Prüfers (z. B. kleiner/größer als, gut/schlecht). Hingegen ist die Messung, also der quantitative Vergleich einer Messgröße mit einer Einheit, per se quantitativ (Norm DIN 1319-1:1995-01, S. 4). Ziel ist hier die Gewinnung und Dokumentation von „Informationen über die Ausprägung von gemessenen Merkmalen“. Hierbei werden mehr Informationen über das Prüfmerkmal gewonnen als mit einer qualitativen, subjektiven Prüfung (WECKENMANN & WERNER 2014, S. 630 f.). Die Messung ist nur dann eine Prüfung, wenn festgestellt wird, „inwieweit (oder ob) der Messwert die Forderung erfüllt“ (Norm DIN 1319-1:1995-01, S. 6, REINHART ET AL. 1996, S. 111). Eine Prüfung besteht nach WECKENMANN & WERNER (2014, S. 629) aus:

- der Prüfplanung,
- der Prüfdurchführung, bei der das Prüfmerkmal erfasst wird,
- dem Feststellen des Prüfergebnisses, bei dem das erfasste Prüfmerkmal mit der Qualitätsforderung verglichen wird, und
- der Dokumentation des Prüfergebnisses.

Im Folgenden wird genauer auf die Prüfplanung eingegangen. Ihr kommt nämlich eine wichtige Rolle zu, da sie „in Abstimmung mit der Fertigungsplanung die

---

<sup>6</sup> Prüfobjekte sind in der Fertigungsmesstechnik Werkstücke, Maschinen und Werkzeuge sowie Mess- und Prüfmittel (TUTSCH 2006, S. 210). In der vorliegenden Arbeit liegen die Werkstücke im Fokus.

<sup>7</sup> Der Begriff *Forderung* ist an dieser Stelle als Synonym von *Anforderung* (vgl. Abschnitt 2.1.2) zu verstehen.

Voraussetzungen für die wirtschaftliche und anforderungsgerechte Herstellung und Prüfung von Produkten“ schafft (LINß 2014, S. 525). Für das Prüfobjekt werden zunächst die zu prüfenden Qualitätsmerkmale definiert, die sog. Prüfmerkmale. Voraussetzung dafür ist die Qualitätsplanung, in der die Qualitätsmerkmale ausgewählt, klassifiziert und gewichtet werden. Während bei der Klassierung die „Elemente einer Menge zu festgelegten Klassen von Merkmalswerten“ zugeordnet werden, werden bei der Klassifizierung die Klassengrenzen festgelegt (Norm DIN 1319-1:1995-01, S. 6). Anschließend wird der Prüfumfang, also wie viel geprüft wird, festgelegt. Hierbei ermöglicht oftmals die zerstörungsfreie Prüfung (ZfP) eine vollständige bzw. 100%-Prüfung, während zerstörende Prüfungen nur stichprobenartig durchgeführt werden können (BERGMANN & ZABLER 2006, S. 363). Entsprechend werden auch die Prüfmittel bzw. Prüfverfahren ausgewählt. Die zur Messung eingesetzten Verfahren bestehen aus Messprinzip und -methode. Das Messprinzip beschreibt die zugrundeliegenden physikalischen Wirkprinzipien und die Messmethode das entsprechende Vorgehen (Norm DIN 1319-1:1995-01, S. 7). Messverfahren werden dabei häufig nach ihrem physikalischen Messprinzip klassifiziert und benannt. Eine weitere Unterteilung ist die in direkte und indirekte Messung: Wird das Merkmal nicht in derselben physikalischen Größe sondern „über eine Hilfsgröße bestimmt“, handelt es sich dementsprechend um eine indirekte Messung (KEFERSTEIN ET AL. 2018, S. 303). Zuletzt wird der Prüfort bestimmt. Hier wird zwischen *inline* (in der Maschine), *atline* (neben der Maschine) und *offline* (in einem Messraum oder Labor) unterschieden (KESSLER 2006, S. 15, LINß 2014, S. 530). Für eine detaillierte Beschreibung der Prüfplanung sei auf die einschlägige Literatur verwiesen (KEFERSTEIN ET AL. 2018, S. 290-298, LINß 2014, REINHART ET AL. 1996, S. 100-109).

Typische Prüfaufgaben in der Fertigungstechnik sind nach TUTSCH (2006, S. 211):

- die Werkstoffprüfung (z. B. Härte),
- die Geometrieprüfung (z. B. Rauheit),
- die Sensorische Prüfung (z. B. Glanz) und
- die Funktionsprüfung (z. B. Drehzahl).

In der industriellen Fertigung kommt nach TUTSCH (2006, S. 211) der „Geometrieprüfung die größte Bedeutung zu“, weshalb sie im Folgenden beschrieben wird. Ihre Aufgabe ist die Überprüfung der Gestaltabweichung an Werkstücken. Laut KEFERSTEIN ET AL. (2018, S. 94) beziehen sich diese auf die „begrenzenden Flächen“ eines Werkstücks. Es wird zwischen Grob- und Feingestaltabweichungen sowie Defekten unterschieden (KEFERSTEIN ET AL. 2018, S. 95). Die vorliegende Arbeit



befasst sich mit dem Kalandrieren, einem mit dem Walzen verwandten Verfahren (vgl. Abschnitt 2.3.1). Für das Walzen zur Herstellung von Feinblechen wird eine weitere Einteilung verwendet (DOEGE & BEHRENS 2016, S. 221), da die Abweichungen nicht nur die Oberfläche, sondern das gesamte Werkstück betreffen. Sie teilen sich demnach in Abweichungen von der Ebenheit zum einen und Abweichungen von der Geradheit zum anderen auf (MÜCKE ET AL. 2002, S. 33 f.). Die Ebenheit ist in der Norm DIN EN 10106 (S. 6) als die Eigenschaft eines Bleches oder eines Bandabschnitts beschrieben, „die durch den Welligkeitsfaktor, d. h. durch das Verhältnis von Wellenhöhe zu Wellenlänge gekennzeichnet ist“. Weiter wird in der Norm DIN EN 10131 (S. 9) die Ebenheitstoleranz als „der größte zulässige Abstand zwischen dem Blech und der horizontalen Fläche [sic!] auf der es liegt“, definiert. Letztlich werden weitere produktspezifische Definitionen in Normen zu Formabweichungen an Bändern gegeben (bspw. Norm DIN EN 10202 oder Norm DIN EN 10140). Die Abweichung von der Geradheit (auch Kantenkrümmung) ist definiert als „größter Abstand zwischen einer Längskante des Bleches und einer die beiden Enden der Messstrecke verbindenden Geraden an dieser Kante“ (Norm DIN EN 10251, S. 4).

Die Formabweichungen werden beim Flachwalzen als Planheitsfehler zusammengefasst (LOGES 2009, S. 6 ff.). Aufgrund der großen Relevanz der Bandplanheit wurden zahlreiche Messverfahren entwickelt. LOGES (2009, S. 15-26) teilt die Planheitsmesssysteme in Messrollen, berührungslose Messsysteme und geometrische Planheitsmessung ein. Planheitsmessrollen nehmen Radialkräfte durch direkten Kontakt des Bandes mit in der Rolle eingebauten Kraftsensoren auf. Die berührungslosen Messsysteme sind dagegen meist optische oder radiometrische Messsysteme. Die geometrische Planheitsmessung besteht wiederum darin, das Band im „zuglosen, ausgerollten Zustand“ zu vermessen. So wirken mit Ausnahme der Gravitation keine Kräfte auf das Band.

## 2.2 Lithium-Ionen-Batteriezellen

Nachdem in den vorangegangenen Abschnitten die allgemeinen, themenbezogenen Begrifflichkeiten erläutert wurden, werden nun die Elektrode als Werkstück des Produktsystems LIB, ihre Qualitätsmerkmale und die Zellfertigung als fertigungstechnische Prozesskette vorgestellt. Zunächst werden der Aufbau und die Funktionsweise einer LIB in Abschnitt 2.2.1 erläutert, um die Rolle der Elektrode zu verdeutlichen. Dann werden in Abschnitt 2.2.2 die Elektroden selbst und ihre Bestandteile beschrieben, um ein tieferes Produktverständnis zu erlangen. Schließlich

wird in Abschnitt 2.2.3 die Prozesskette zur Herstellung einer LIB vorgestellt, um die vor- und nachgelagerten Prozesse des Kalandrierens vorzustellen. Somit erhält der Leser ein Verständnis für das Produkt sowie die zu seiner Herstellung verwendeten Prozesse.

### 2.2.1 Aufbau und Funktionsweise

Batterien wandeln chemische in elektrische Energie um (LINDEN ET AL. 2019, S. 6, PINKWART & TÜBKE 2011, S. 3). Elektrochemische Zellen sind galvanische Elemente, die als Stromquellen dienen (KURZWEIL & DIETLMEIER 2015, S. 42). I. Allg. werden mehrere Zellen entweder in Reihe geschaltet, um die Nennspannung zu erhöhen, oder parallel geschaltet, um die Gesamtkapazität zu erhöhen (KOEHLER 2018, S. 91 f.). Während Primärzellen nur einmal entladen werden können, lassen sich Sekundärzellen wiederholt laden und entladen (PINKWART & TÜBKE 2011, S. 3 f.). Abbildung 2-1 zeigt den grundlegenden Aufbau einer LIB. Sie besteht demnach aus den Elektroden Anode und Kathode, einer ionenleitenden Elektrolytflüssigkeit, die den Ladungstransport ermöglicht, und einem Separator (STENZEL ET AL. 2015, S. 157). Der Separator ist als poröse, durchtränkte Membran ausgeführt, welche die Elektroden elektrisch voneinander isoliert, einen Ionenfluss aber erlaubt (STERNER & STADLER 2014, S. 250).

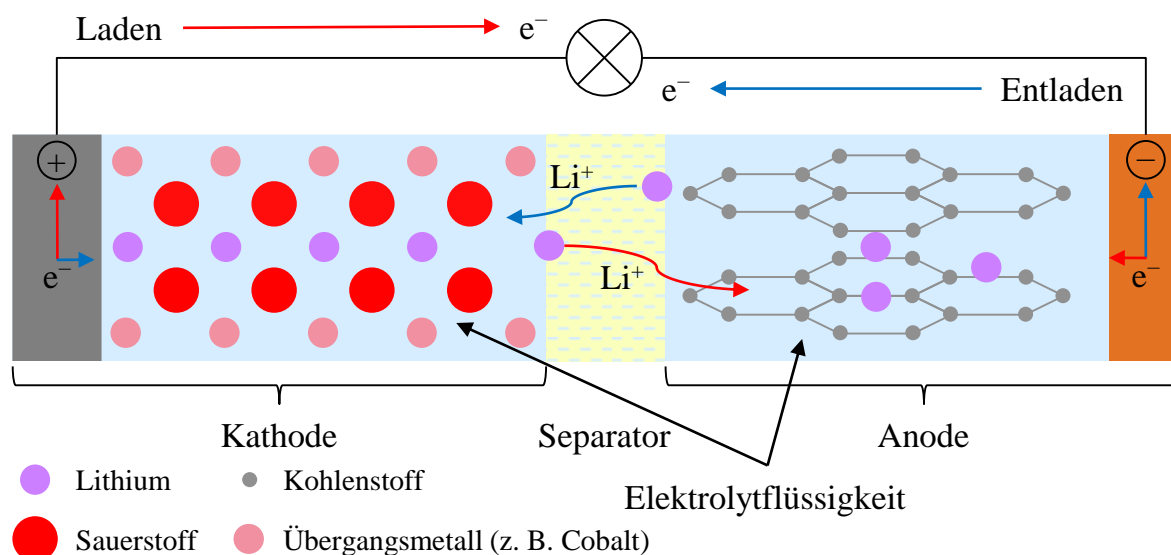
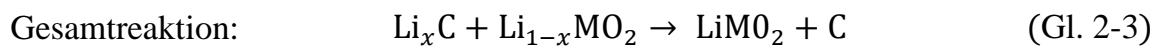
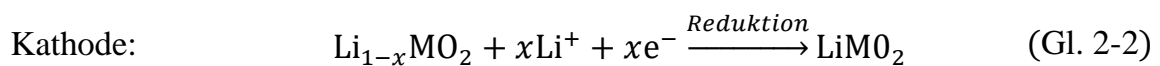
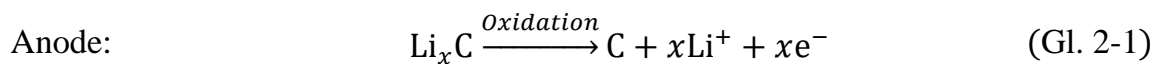


Abbildung 2-1: Aufbau und Funktionsweise einer LIB in Anlehnung an DAHN & EHRlich (2019, S. 762) und STERNER & STADLER (2014, S. 250)

Genauer betrachtet bestehen Anode und Kathode aus einer Beschichtung, die das sog. Aktivmaterial enthält, und einer Substratfolie, die als Stromsammeler und -ableiter

fungiert. Die Aktivmaterialien können reversibel Lithium-Ionen ( $\text{Li}^+$ ) ein- und auslagern. Diese Einlagerung in deren Wirtsgitter wird als Interkalation bezeichnet. Bei der Entladung findet an der negativen Elektrode (Anode) eine Oxidationsreaktion statt, die zur Auslagerung (Deinterkalation) von  $\text{Li}^+$  aus der lithiumreichen Wirtsmatrix führt, die über die Elektrolytflüssigkeit durch den Separator wandern und sich in der lithiumarmen Wirtsstruktur der positiven Elektrode (Kathode) durch eine Reduktionsreaktion einlagern. Dabei werden Elektronen ( $e^-$ ) über einen externen Stromkreis abgegeben. Dieser verbindet die Stromableiter (kurz: Ableiter) beider Elektroden und ermöglicht den Anschluss eines elektrischen Verbrauchers zum Entladen oder einer Stromquelle zum Laden der LIB.

Die stattfindenden chemischen Reaktionen können mit folgenden Gleichungen in vereinfachter Form für eine positive Lithium-Metalloxid-Elektrode ( $\text{LiMO}_2$ ) und eine negative Graphit-Elektrode (C) beschrieben werden (KURZWEIL & DIETLMEIER 2015, S. 158, STENZEL ET AL. 2015, S. 160).



Dabei entspricht  $x$  einem variablen Index bzw. der stöchiometrischen Zahl. Bei der Ladung verläuft der Vorgang in umgekehrter Richtung.

### 2.2.2 Lithium-Ionen-Elektroden

Wie in Abschnitt 2.2.1 erläutert, besteht eine Elektrode also grundsätzlich aus einer Beschichtung und einem Substrat. Die Beschichtung kann dabei ein- oder doppelseitig aufgetragen sein. Neben dem Aktivmaterial enthält sie auch ‚inaktive‘ Materialien, die unterschiedliche Eigenschaften erfüllen. Das Bindemittel (kurz: Binder) sorgt für ausreichende Kohäsion zwischen den Partikeln innerhalb der Beschichtung einerseits und Adhäsion zur Substratfolie andererseits. Zusätzlich werden Leitzusätze verwendet, um die elektrische Leitfähigkeit zu erhöhen. (LI ET AL. 2011B, S. 2453, STERNER & STADLER 2014, S. 259)

Die Elektroden geben maßgeblich die Eigenschaften der LIB wie bspw. Kapazität oder Leistung vor. Die Kapazität wird durch die Menge an Aktivmaterial bestimmt, die auf der Substratfolie aufgetragen wird (BRODD & TAGAWA 2002, S. 269-270). KURZWEIL & DIETLMEIER (2015, S. 27) definieren die Kapazität als „die verfügbare elektrische Ladung  $Q$  in Coulomb oder Amperestunden ( $1 \text{ Ah} = 3600 \text{ C}$ )“. Zum

Vergleich der verfügbaren elektrischen Energie von Energiespeichern bzw. deren Bestandteilen werden die spezifische Energie und die Energiedichte herangezogen. Dabei bezieht sich die spezifische Energie auf die Masse (Wh/kg) und die Energiedichte auf das Volumen (Wh/l) (LINDEN ET AL. 2019, S. 13). Entsprechend lässt sich auch die spezifische Leistung (W/kg) bzw. die Leistungsdichte (W/l) angeben (STERNER & STADLER 2014, S. 38).

Grundsätzlich werden hinsichtlich der Elektrodenformulierung und -struktur zwei Zellkonzepte verfolgt: Hochleistungs- und Hochenergiezelle. Hohe Leistungen werden durch geringe Schichtdicken erreicht, da die Diffusionswege für  $\text{Li}^+$  verkürzt werden. Nachteilig dabei ist die Senkung der spezifischen Energie und Energiedichte durch einen höheren Anteil an inaktiven Materialien wie bspw. die Substratfolie. Hingegen können mit dicken und dichten Beschichtungen der Elektroden hohe Energiedichten erreicht werden. Hochenergiezellen erreichen dadurch eine höhere Kapazität, die sie bei hohen Strömen jedoch nur vermindert abgeben können. (SANTEE ET AL. 2014, S. 65)

Die Dichte einer Elektrode lässt sich auch mithilfe der Porosität beschreiben. Die Porosität der Elektrode gibt den theoretischen Hohlraum der auf der Substratfolie aufgetragenen Beschichtung als Prozentsatz des gesamten beschichteten Volumens an. Die Porosität wird entsprechend des gewünschten Einsatzprofils der Zelle angepasst, sollte aber die Aufnahme der Elektrolytflüssigkeit und den damit einhergehenden Ionenfluss nicht beeinträchtigen. (SANTEE ET AL. 2014, S. 66)

Da die Schichtdicke der Elektrodenbeschichtung aufgrund ihrer Porosität wenig Aufschluss über die tatsächliche Menge an aufgebrachtem Material gibt, wird zur genaueren Bestimmung die Massenbeladung ( $\text{mg}/\text{cm}^2$ ) verwendet. (SANTEE ET AL. 2014, S. 65 f.)

Des Weiteren haben u. a. die Partikelform, -größe und -verteilung des Aktivmaterials einen wesentlichen Einfluss auf die Zelleigenschaften (DAHN & EHRLICH 2019, S. 766, LI ET AL. 2011A, S. 940). Neben einer höheren Porosität sowie geringeren Elektrodenschichtdicke können bspw. bei Hochleistungszellen kleinere Partikelgrößen zum Einsatz kommen. Die Vergrößerung der Kontaktfläche zwischen Elektrolytflüssigkeit und Aktivmaterial begünstigt den Ladungstransfer (STERNER & STADLER 2014, S. 265).

Die Qualität der Elektroden wird aber nicht nur durch die Qualität der Ausgangsmaterialien bestimmt. Die Massenbeladung und die Porosität müssen auch homogen verteilt sein, um eine gleichmäßige Stromdichte über die gesamte Elektrode

zu gewährleisten (KRAYTSBERG & EIN-ELI 2016, S. 16, WANG ET AL. 2004, S. A1490). Außerdem ist der Kontakt zwischen den unterschiedlichen Bestandteilen sowohl elektrisch als auch mechanisch qualitätsbestimmend (KAISER ET AL. 2014, S. 696). Das Aktivmaterial muss über den Leitruß mit der Substratfolie elektrisch vollständig verbunden sein, um dessen volle Nutzung bzw. eine hohe Effizienz bei hohen Leistungen zu ermöglichen (BRODD & TAGAWA 2002, S. 269). Zudem muss die Adhäsion zwischen der Beschichtung und der Substratfolie eine langlebige, stabile mechanische Verbindung gewährleisten (KAMPKER 2014, S. 62). Dabei muss der Binder genug Elastizität aufweisen, um die beim Laden und Entladen auftretenden Volumenänderungen des Aktivmaterials zu kompensieren (BRODD & TAGAWA 2002, S. 269). Aus diesen Gründen werden Elektroden bei den Zellherstellern in Eigenfertigung produziert und nicht, wie bspw. der Separator, zugekauft (PETTINGER ET AL. 2018, S. 213). Die mechanischen Eigenschaften von Elektroden werden in Abschnitt 3.2 weiter ausgeführt.

Im Folgenden wird zunächst näher auf die Zusammensetzung von Anode und Kathode eingegangen, wobei der Fokus auf den in dieser Arbeit eingesetzten Materialien liegt.

Als Kathodenmaterial werden Übergangsmetalle oder Mischungen davon verwendet (KIM ET AL. 2019, S. 2943 ff., ZUBI ET AL. 2018, S. 295). Diese lassen sich anhand ihrer Schichtstruktur unterteilen, die laut KURZWEIL & DIETLMEIER (2015, S. 182) „die Beweglichkeit der eingelagerten Lithiumkationen und damit die ionische Leitfähigkeit“ definiert. Die Struktur kann eindimensional (Olivingitter), zweidimensional (Schichtstrukturen) oder dreidimensional (Spinellgitter) sein (MATSUKI & OZAWA 2009, S. 7). Am häufigsten finden aufgrund ihrer hohen technologischen Reife derzeit Übergangsmetalloxide in Schichtstruktur (engl. *layered oxides*) Anwendung (SCHMUCH ET AL. 2018, S. 269 f.), darunter auch Lithium-Nickel-Mangan-Cobalt-Oxid (NMC), das im Zuge dieser Arbeit untersucht wurde. Die Kombination der Metallionen Nickel, Mangan und Cobalt führt zu einer hohen reversiblen Kapazität und guter Zyklenfestigkeit, was NMC zu einem kommerziell erfolgreichen Kathodenmaterial macht (GRAF 2018, S. 33). Die Partikel sind kugelförmig (vgl. Abbildung 2-2), was sich nicht nur auf die elektrochemischen Eigenschaften, sondern auch auf die Verarbeitung auswirkt (DAHN & EHRlich 2019, S. 766 f.).

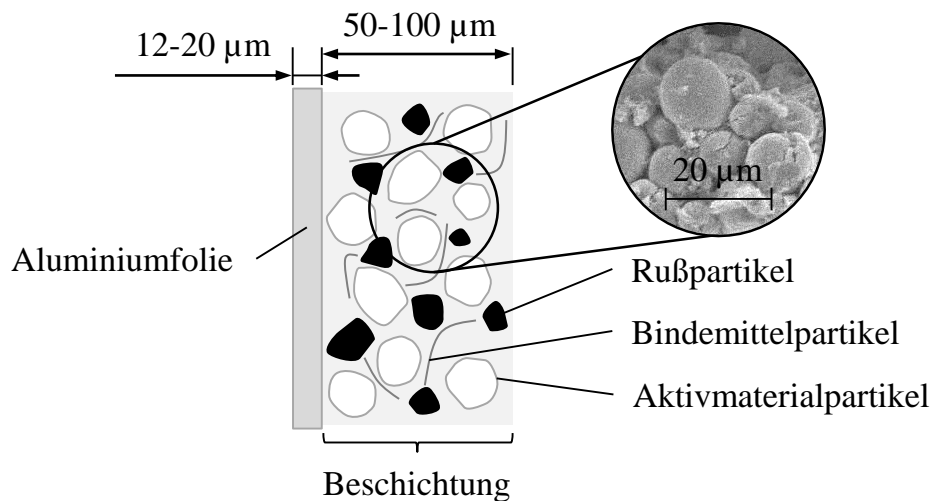


Abbildung 2-2: Schematischer Aufbau einer Kathode mit NMC als Aktivmaterial in Anlehnung an LEUTHNER (2018, S. 18) und VUORILEHTO (2018, S. 22)

Als Anodenmaterial kommt mit ca. 90 % Marktanteil überwiegend Graphit zum Einsatz (SCHMUCH ET AL. 2018, S. 267). Graphit ist ein preiswertes Material und zeichnet sich durch eine hohe kalendarische sowie zyklische Stabilität aus. Abbildung 2-3 zeigt die lamellare Schuppenform (engl. *flakes*) der Graphitpartikel und die Einlagerung der Lithium-Ionen in die inneren Graphitlagen. Dabei tritt eine Volumenänderung von ca. 12 % auf, die aufgrund der vorteilhaften Schichtstruktur ohne Schädigung aufgenommen werden kann (ZHANG 2011, S. 14). Neben Graphit sind viele weitere Kohlenstoffmaterialien kommerziell erhältlich, die aufgrund ihrer Kristallinität, Mikrostruktur und Morphologie unterschiedliche Eigenschaften aufweisen (NOEL & SURYANARAYANAN 2002).

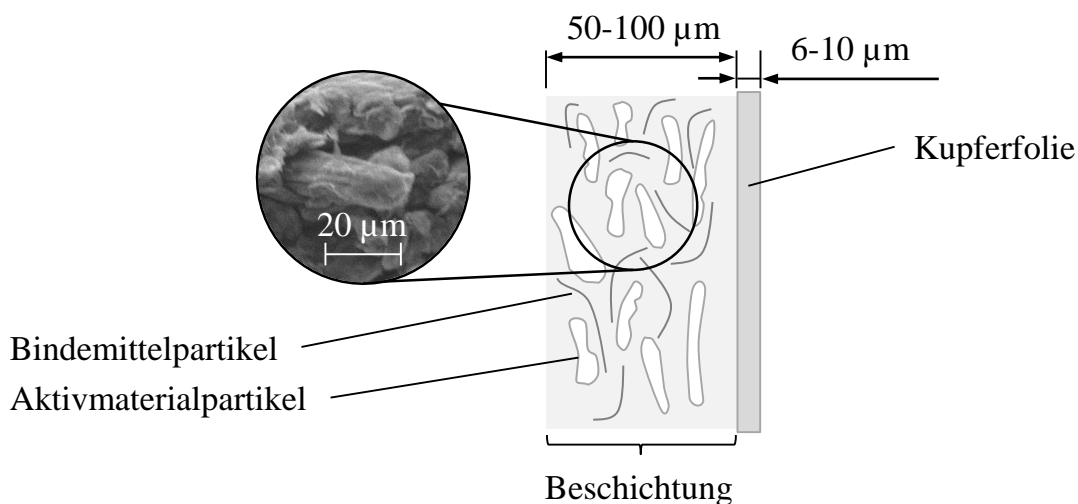


Abbildung 2-3: Schematischer Aufbau einer Anode mit Graphit als Aktivmaterial in Anlehnung an VUORILEHTO (2018, S. 22) und AURBACH (2002, S. 29)

Als Binder kann sowohl für Anoden als auch Kathoden das Bindemittel Polyvinylidenfluorid (PVDF) verwendet werden. Wie in Abbildung 2-3 zu sehen, bildet PVDF Fäden aus, welche die Partikel in der Beschichtung zusammenhalten. PVDF erfordert organische Lösungsmittel wie bspw. N-Methyl-2-pyrrolidon (NMP) zur Beschichtung. Aus ökonomischen und ökologischen Gründen hat ein wasserverträgliches Bindemittelsystem bestehend aus Carboxymethylcellulose (CMC) in Kombination mit Styrol-Butadien-Kautschuk (SBR) bei Graphit-Anoden PVDF weitgehend verdrängt. (VUORILEHTO 2018, S. 23, 27)

Dazu erfüllen Leitzusätze den Zweck, die intrinsisch schlechte Leitfähigkeit des Kathoden-Aktivmaterials zu erhöhen bzw. i. Allg. inaktive Stellen im Material zu vermeiden. Es werden hier Kohlenstoffmaterialien wie Ruß, Graphitpulver oder Kohlefasern (engl. *Vapor Grown Carbon Fibers*, VGCF) in positiven sowie negativen Elektroden eingesetzt. Weit verbreitet ist die Anwendung von Rußpartikeln (engl. *carbon black*), die eine hohe Leitfähigkeit besitzen und zudem vergleichsweise kostengünstig sind. (KURZWEIL & DIETLMEIER 2015, S. 220, SPAHR 2009, S. 117)

Der Binder und die Leitzusätze machen jeweils weniger als 10 % (AURBACH 2002, S. 30, PRIBAT 2015, S. 192) der Masse der Beschichtung aus, wobei je nach Eigenschaftsprofil der LIB 2–8 % bzw. 1–5 % (VUORILEHTO 2018, S. 23) marktüblich sind. In Hochenergiezellen wird der Anteil an Zusätzen so gering wie möglich gehalten, da diese kein Energiespeichervermögen besitzen. In Hochleistungszellen werden außerdem mehr Additive hinzugefügt, um durch einen guten Kontakt die Leitfähigkeit zu erhöhen bzw. den inneren Zellwiderstand zu senken und damit die Leistungsdichte und spezifische Leistung der Zelle zu optimieren. (GULBINSKA 2014, S. 21, VUORILEHTO 2018, S. 23)

Als Substrat für die Beschichtung und Stromsammler für die Elektronen werden dünne Metallfolien oder Netze aus Aluminium für die Kathode und Kupfer für die Anode verwendet. Diese Folien weisen eine Dicke von 6–10 µm für die Anode und 12–20 µm für die Kathode (KWADE ET AL. 2018, S. 291) sowie eine hohe Reinheit auf (> 99,8 %) (PETTINGER ET AL. 2018, S. 214). Die günstigere Aluminiumfolie kann für die Graphit-Anoden nicht verwendet werden, da aufgrund des geringeren Potentials die Lithium-Ionen mit dem Aluminium reagieren und eine Legierung ausbilden würden (STERNER & STADLER 2014, S. 258, WURM ET AL. 2018, S. 57). Zu den Anforderungen gehören neben der elektrochemischen Stabilität und dem bereits erwähnten Adhäsionsvermögen auch eine hohe mechanische Festigkeit, eine geringe Masse, eine hohe Leitfähigkeit und moderate Material- und Herstellungskosten (STERNER & STADLER 2014, S. 258, WHITEHEAD & SCHREIBER 2005, WURM ET

AL. 2018, S. 55 f.). Die Substratfolien werden durch abwechselndes Pressen bzw. Walzen und Erhitzen hergestellt. Kupferfolie kann auch durch elektrolytische Abscheidung hergestellt werden (KURZWEIL & DIETLMEIER 2015, S. 217 f., WURM ET AL. 2018, S. 56).

### 2.2.3 Batteriezellfertigung

Nachdem in den vorangegangenen Abschnitten der Aufbau von LIB dargestellt wurde, wird im Folgenden auf deren Herstellung eingegangen. Diese lässt sich in drei sequentielle Prozessabschnitte unterteilen: Elektrodenherstellung, Zellmontage sowie Formierung und Alterung (KURZWEIL & DIETLMEIER 2015, S. 219 ff., PETTINGER ET AL. 2018, S. 212). Die Prozesskette ist in Abbildung 2-4 dargestellt.

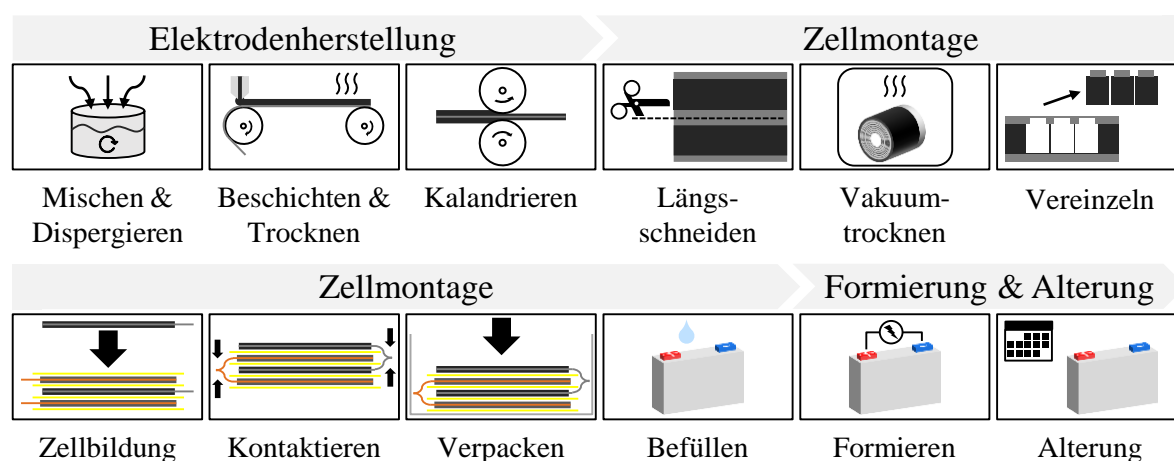


Abbildung 2-4: Schematische Darstellung der Prozesskette der Batteriezellfertigung in Anlehnung an KWADE ET AL. (2018, S. 292)

Die Elektrodenherstellung geht vom Mischen und Dispergieren der Ausgangsmaterialien aus. Aktivmaterialien, Binder und Leitzusätze werden mit einem Lösungsmittel zu einer Suspension, der sog. *Slurry*, gemischt. Die *Slurry* lässt sich nasschemisch mit unterschiedlichen Beschichtungsverfahren auf die metallischen Substratfolien auftragen, wobei die Schlitzdüsen- und Rakelbeschichtung industriell etabliert sind. Die Beschichtung erfolgt meistens mehrstreifig und entweder intermittierend oder kontinuierlich. Bei intermittierenden Beschichtungen befindet sich der Ableiter quer und nicht längs an der Seite. Unmittelbar nachgeschaltet dient die Trocknung der Entfernung des Lösungsmittels, das lediglich zur Beschichtung erforderlich ist. Die getrocknete Elektrode wird im Anschluss einem Walzprozess, dem sog. Kalandrieren, zugeführt und verdichtet. Auf den Kalandrierprozess wird in Abschnitt 2.3.2 näher eingegangen. Abschließend



wird die Elektrode aufgewickelt und in der Zellmontage weiterverarbeitet. (KAMPKER 2014, S. 61-67, PETTINGER ET AL. 2018, S. 213 ff.)

Die Zellmontage beginnt mit dem Längsschneiden (engl. *slitting*) des Elektrodenwickels auf eine für das Zelldesign passende Breite. Im Vakuumtrockenschrank oder im Durchlauf als Bahnenware wird die Elektrodenrolle vor der Einführung in einem Trockenraum (Taupunkt:  $-40\text{ }^{\circ}\text{C}$  bis  $-60\text{ }^{\circ}\text{C}$ ) getrocknet. Dort werden die Elektroden entsprechend des gewünschten Zelldesigns konfektioniert. Für Flachzellen werden die Elektroden durch Stanzen oder Laserzuschnitt vereinzelt. Anschließend werden diese mithilfe eines Vakuumbreifers im Z-Falt- oder Einzelblattstapelprozess mit dem Separator zu einem Verbund zusammengeführt. Gegen das Verrutschen werden Klebestreifen angebracht und/oder die Elektroden mit dem Separator zusammengeklebt bzw. laminiert. Bei prismatischen und Rundzellen hingegen werden die Elektroden und der Separator um einen Dorn gewickelt. Anschließend werden die Elektroden mit den Ableitern verschweißt. Die Kontaktierung erfolgt mittels Ultraschall- oder seltener Laserstrahlschweißen. Dann wird der Zellstapel oder -wickel (engl. *jelly roll*) in das Gehäuse eingeführt. Flachzellen (*Pouch-Technologie*) verwenden hierfür eine tiefgezogene Kunststoff-Aluminium-Kunststoff-Verbundfolie. In diesem Fall wird das Gehäuse zum Verschließen versiegelt. Prismatische und Rundzellen haben ein starres, tiefgezogenes oder fließgepresstes Aluminium- oder Stahlgehäuse (engl. *hardcase*), das mittels Ultraschall- oder Laserstrahlschweißen verschlossen wird.

Zuletzt wird die Zelle mit Elektrolytflüssigkeit befüllt. In der Formierung wird die Zelle erstmals geladen und ‚aktiviert‘. Die anschließende Alterung dient dann der Beurteilung der Qualität und ermöglicht die Einteilung der Zellen in Güteklassen. (KAMPKER 2014, S. 68-80, KURZWEIL & DIETLMEIER 2015, S. 220 ff.)

## 2.3 Kalandrieren

Im vorangegangenen Abschnitt wurde die Prozesskette der Zellfertigung vorgestellt, ohne detailliert auf den Kalandrierprozess einzugehen. Dem Kalandrieren widmet sich dieser Abschnitt nun abschließend dediziert. Es werden die theoretischen Grundlagen und der Stand der Technik zum Prozess dargelegt. Dabei wird das Kalandrieren zunächst allgemein in Abschnitt 2.3.1 als fertigungstechnischer Prozess und anschließend spezifisch in Abschnitt 2.3.2 in der Herstellung von LIB vorgestellt. Abschließend werden in Abschnitt 2.3.3 die Verhältnisse im Walzspalt betrachtet, um dem Leser die theoretischen Grundlagen zum Verständnis des nachfolgenden Stands der Forschung und der Ergebnisse dieser Arbeit zu vermitteln.

### 2.3.1 Begriffserklärung und Aufbau eines Kalanders

Ein *Kalander* ist ein Mehrfach-Walzwerk, das mindestens aus zwei gegenläufig rotierenden, beheizbaren Walzen besteht (BONNET 2009, S. 205, KAISER 2006, S. 157, SPUR 1999, S. 11–35). Als Fertigungsverfahren ist das Kalandrieren in der Norm DIN 8580 dem Urformen, bzw. dem Urformen aus dem plastischen Zustand zugeordnet (Norm DIN 8580, S. 8), da Kalander meist in der Kunststoffindustrie zur Herstellung von „flächigen Halbzeugen (Folien, Platten u. Ä.) aus vorgewärmter und vorplastifizierter Formmasse“ eingesetzt werden (BRECHER ET AL. 2007, S. S16). Diese Einteilung gilt jedoch nicht für alle Anwendungsbereiche, da bspw. das Kalandrieren von Elektroden (vgl. Abschnitt 2.3.2) nicht auf das „Schaffen des Zusammenhaltes“ abzielt, sondern dabei auch eine Formänderung stattfindet, bei welcher der „Zusammenhalt beibehalten“ bleibt. Es ist die Rede von Umformen bzw. Druckumformen (Norm DIN 8580, S. 4 ff.). Das Pendant dazu ist das Walzen, das Ähnlichkeiten mit dem Kalandrieren aufweist (HORNBOGEN ET AL. 2017, S. 513). Beim Kalandrieren durchläuft das Material jedoch nur einmal jeden Walzspalt (KOHLERT 2014, S. 629) und die Walzen sind meist temperiert (FASSE 1997, S. 40), was die Entlehnung des Begriffs erklärt.

Der Aufbau von Kalandern ist je nach Anwendungsbereich und gewünschten Produkteigenschaften unterschiedlich. Hauptunterscheidungsmerkmale sind die Walzenanordnung und -anzahl. Aufgrund der direkten Interaktion zwischen den Walzen und dem zu kalandrierenden Produkt bestimmt deren Beschaffenheit die Qualität des Produkts. Nach SCHÜLE ET AL. (2008, S. 285) sind eine „hohe Rundlauf- und Formgenauigkeit bei Betriebstemperatur, hohe Oberflächengüte und -härte, Biegefestigkeit und Druckbeständigkeit gegenüber den zu verarbeitenden Materialien und Dichtheit gegenüber dem zu verwendeten Temperiermedium“ gefordert.

Im Folgenden werden Anlagenmerkmale zur Realisierung dieser Anforderungen vorgestellt. Die Walzendurchmesser können bis zu 1,2m (SCHÜLE ET AL. 2008, S. 285) und die Walzenballenbreite<sup>8</sup> mehrere Meter betragen (bis zu 4,5m) (KAISER 2006, S. 157). Die Walzenabmessung, d.h. das Verhältnis von Breite zu Durchmesser ist entsprechend der Belastung im Walzspalt und des Einsatzgebiets zu wählen (SCHÜLE ET AL. 2008, S. 285). Ebenso sind Aufbau und Werkstoff der Walzen zu berücksichtigen. Denn aufgrund der hohen Belastungen im Walzspalt tritt eine Walzendurchbiegung auf (KAISER 2006, S. 157). Zur Kompensation wurden

---

<sup>8</sup> Die Walzenballenbreite beschreibt die nutzbare Breite einer Walze.

verschiedene Gegenmaßnahmen wie bspw. die Gegenbiegung (engl. *roll bending*), Schrägstellung oder die Bombage der Walzen entwickelt. Hier sei auf weiterführende Literatur verwiesen (KOPSCH 1978, S. 21 ff., LANGE 1988, S. 189 ff., RIEST 1999, RÖTHEMEYER & SOMMER 2013, S. 620 ff.). Zusätzlich kann eine Walzenabplattung, d.h. „eine elastische Abweichung von der ursprünglichen zylindrischen Querschnittsform“ der Walzen auftreten (HIRT & OLIGSCHLÄGER 2012A, S. 118 f.). Die Verhältnisse im Walzspalt, bezogen auf das Kalandrieren von partikulären Systemen, werden in Abschnitt 2.3.3 erläutert. Die Oberfläche der Walzen wird abhängig vom Anwendungsgebiet geschliffen, poliert oder verchromt (BLECHSCHMIDT 2013, S. 391, SCHÜLE ET AL. 2008, S. 285). Die Temperierung der Walzen wird je nach Temperaturbereich mit Wasser, Thermalöl oder ggf. durch externe Zusatzheizungen realisiert (BLECHSCHMIDT 2013, S. 389, 393, SCHÜLE ET AL. 2008, S. 285). Die Walzen können einzeln angesteuert werden, um die sog. Friktion, d.h. unterschiedliche Rotationsgeschwindigkeiten, zu ermöglichen (BLECHSCHMIDT 2013, S. 386, SCHÜLE ET AL. 2008, S. 283). Für die Walzenanstellung werden Getriebemotoren über Schneckengetriebe und Gewindespindeln oder Hydraulikzylinder verwendet (RÖTHEMEYER & SOMMER 2013, S. 636). Der Kalendarstuhl muss hohe Spreizkräfte aufnehmen und wird in massiver Bauweise realisiert (SCHÜLE ET AL. 2008, S. 283 f.). Kalandrierer sind also trotz ihrer einfachen Grundform komplexe und hoch automatisierte Systeme mit einer Vielzahl von Merkmalen (KOHLERT 2014, S. 629), die Investitionen in Millionenhöhe verursachen (KAISER 2006, S. 157), die sich jedoch wiederum durch den hohen Durchsatz und die hohe Produktivität amortisieren.

### 2.3.2 Kalandrieren von Lithium-Ionen-Elektroden

Lithium-Ionen-Elektroden werden durch das Kalandrieren auf die gewünschte Schichtdicke und Dichte bzw. Porosität verdichtet. Die Elektroden weisen nach dem vorangegangenen Beschichten und Trocknen (vgl. Abschnitt 2.2.3) eine vergleichsweise hohe Porosität (ca. 50–70 %) auf (BAUNACH ET AL. 2016, S. 467, JULIEN ET AL. 2016, S. 597, ZHENG ET AL. 2012A, S. 53). Abhängig vom gewünschten Eigenschaftsprofil der LIB werden diese auf 20 % bis 50 % Porosität kalandriert (JOSSEN & WEYDANZ 2019, S. 117, JULIEN ET AL. 2016, S. 597, KAISER ET AL. 2014, S. 703). Die Porosität  $\Phi$  (vgl. Abschnitt 2.2.2) lässt sich nach ZHENG ET AL. (2012A, S. 53) mit der Gleichung 2-4 berechnen.

$$\Phi = 1 - \frac{m_B \cdot \left( \frac{W_{\text{Aktivmaterial}}}{\rho_{\text{Aktivmaterial}}} + \frac{W_{\text{Binder}}}{\rho_{\text{Binder}}} + \frac{W_{\text{Additiv}}}{\rho_{\text{Additiv}}} \right)}{\delta_B \cdot 10^{-1}} \quad (\text{Gl. 2-4})$$

Dabei entsprechen  $m_B$  der Masse der Beschichtung,  $A_B$  der Fläche der Probe,  $w$  dem Anteil der verschiedenen Stoffe in der Formulierung,  $\rho$  ihrer jeweiligen Reindichte und  $\delta_B$  der Schichtdicke. Die Dickenabnahme ist eine weitere Möglichkeit den Verdichtungsprozess zu beschreiben und wird nach HASELRIEDER ET AL. (2013, S. 61) als Verdichtungsrate  $\Pi$  ausgeben:

$$\Pi = 1 - \frac{\delta_{E,1}}{\delta_{E,0}} \quad (\text{Gl. 2-5})$$

Dabei steht  $\delta_{E,1}$  für die Elektrodendicke<sup>9</sup> nach dem Kalandrieren und  $\delta_{E,0}$  für die Elektrodendicke vor dem Kalandrieren.

Die Elektrode wird beim Kalandrieren auch mit ihrer Dichte bzw. Dichte der aufgetragenen Beschichtung beschrieben (MARKS ET AL. 2011, S. A53). Typische Beschichtungsdichten für leistungs- und energieoptimierte Elektroden sind in Tabelle 2-1 aufgeführt (KWADE ET AL. 2018, S. 293).

*Tabelle 2-1: Dichte für leistungs- und energieoptimierte Elektroden*

Elektrode	Aktivmaterial	Dichte in g/cm <sup>3</sup>	
		vor Kalandrieren	nach Kalandrieren
Anode	Grafit	0,9–1,2	1,4–1,7
Kathode	NMC	2,2–2,6	2,8–3,4

Neben der Absenkung der Porosität bzw. Erhöhung der Dichte können mit dem Kalandrieren folgende Elektrodeneigenschaften erzielt werden:

- Einstellung der Schichtdicke und -ebenheit (KAISER ET AL. 2014, S. 703),
- Erhöhung der interpartikulären Bindung innerhalb der Beschichtung (Kohäsion), sowie Erhöhung der Adhäsion zwischen der Beschichtung und der Substratfolie (SANTEE ET AL. 2014, S. 66, ZHENG ET AL. 2012A, S. 54 f.),
- Erhöhung der volumetrischen Energiedichte bei gleicher Massenbeladung (KAISER ET AL. 2014, S. 703, ZHENG ET AL. 2012A, S. 54),
- Erhöhung der elektrischen Leitfähigkeit (SANTEE ET AL. 2014, S. 66, WANG ET AL. 2004) und
- Homogenisierung der mechanischen Eigenschaften zur Verbesserung der kalendarischen und zyklischen Alterung (HASELRIEDER ET AL. 2013, S. 65).

---

<sup>9</sup> Die Verdichtungsrate kann auch bezogen auf die Schichtdicke berechnet werden, berücksichtigt dann aber nicht die Verformung der Substratfolie (TRAN ET AL. 2012, S. 280).

Kalander werden als Rolle-zu-Rolle-Verfahren betrieben. Die getrocknete Elektrode wird ggf. zunächst von der Rolle abgewickelt und über Leitwalzen als Warenbahn geführt (HASELRIEDER 2016, S. 30). Bevor sie dem Walzprozess zugeführt wird, können eine elektrostatische Entladung und Reinigung (KAMPKER 2014, S. 67) sowie ein Vorheizen (BRÉGER & PERRONCEL 2014, S. 2, JULIEN ET AL. 2016, S. 597) vorgenommen werden. Die Walzen werden im Mikrometerbereich entweder spaltgesteuert oder druckgeregelt verstellt (HASELRIEDER 2016, S. 30, WILKA 2013, S. 29). Bei intermittierenden Beschichtungen kommen aufgrund der Lastwechsel Kalander mit aktiver Spaltregelung zum Einsatz (HASELRIEDER 2016, S. 30). Im kontinuierlichen Betrieb wird die Bahngeschwindigkeit auf 20 m/min (KURZWEIL & DIETLMEIER 2015, S. 220, PETTINGER ET AL. 2018, S. 215) bis 100 m/min eingestellt (KWADE ET AL. 2018, S. 293). Bei intermittierenden Elektroden muss die Bahngeschwindigkeit jedoch aufgrund der Spaltregelung gedrosselt werden ( $< 40$  m/min) (HASELRIEDER 2016, S. 30). Die Dickenabweichung der kalandrierten Elektrode darf nicht mehr als  $\pm 2 \mu\text{m}$  (KWADE ET AL. 2018, S. 293), bei dünnen Beschichtungen sogar  $\pm 1 \mu\text{m}$  (CAO ET AL. 2015, S. 495, HASELRIEDER 2016, S. 30), betragen. Für eine bessere Prozesskontrolle kann die Schichtdicke sukzessive durch den Durchlauf mehrerer Walzenpaare reduziert werden (BRODD & TAGAWA 2002, S. 276, KAMPKER 2014, S. 67). Die Walzen können außerdem temperiert werden (KWADE ET AL. 2018, S. 293, RÖTH ET AL. 2013, S. 309). Beschichtungsbreiten von bis zu 1000 mm sind üblich (KAISER ET AL. 2014, S. 703). Hierzu kommen Walzen mit einem Durchmesser von 600 mm bis 1000 mm zum Einsatz (KWADE ET AL. 2018, S. 293), welche die Elektroden mit Linienlasten von 1500 N/mm bis 6000 N/mm (KAMPKER 2014, S. 67) bzw. 40t bis 60t verdichten (KURZWEIL & DIETLMEIER 2015, S. 220, PETTINGER ET AL. 2018, S. 215, RÖTH ET AL. 2013, S. 309).

Aufgrund der Glättung durch den Kalander ergibt sich so eine glänzende Oberfläche im Vergleich zu der vorher matt und rau erscheinenden Beschichtung (OLADIMEJI ET AL. 2016, S. 2, MEYER 2019, S. 89 ff., ZHENG ET AL. 2010, S. A1061). Die durch frühere Prozesse verursachten Beschichtungsfehler können durch das Kalandrieren zwar in ihrem Ausmaß abgeschwächt, aber nicht vollständig ausgebessert werden (PETTINGER 2013, S. 17). Mit dem Kalandrieren als letztem Prozess der Elektrodenherstellung werden die Elektroden- bzw. Zelleigenschaften beeinflusst (STERNER & STADLER 2014, S. 265).

### 2.3.3 Verhältnisse im Walzspalt

Wie in Abschnitt 2.2.2 beschrieben, entspricht der Aufbau einer Elektrode grundsätzlich einem Komposit bestehend aus einer auf einer metallischen Substratfolie aufgetragenen partikulären Beschichtung. Die Partikel sind i. Allg. zusammengesetzt aus unterschiedlichen Übergangsmetallen, Metallen oder Halb- bzw. Nichtmetallen und Polymeren. Für etablierte Prozesse wie das Flach-Längswalzen<sup>10</sup> in der Walzstahlproduktion (LANGE ET AL. 1988, S. 180-191) oder das Kalandrieren in der Kunststoffproduktion<sup>11</sup> (KOPSCH 1978, S. 4-21, RÖTHEMEYER & SOMMER 2013, S. 605-624) sind die Verhältnisse im Walzspalt inkl. der Formelzusammenhänge ausführlich beschrieben worden. Eine Übertragung auf das Kalandrieren von Elektroden ist aufgrund der anisotropen Materialeigenschaften jedoch nur bedingt möglich (vgl. FASSE 1997, S. 43).

Am Bsp. des Flach-Längswalzens werden zunächst die grundlegenden Verhältnisse im Walzspalt erläutert. Anschließend werden die Verdichtungsmechanismen von partikulären Systemen basierend auf dem metallischen Pulververdichten und v. a. der pharmazeutischen Granulation veranschaulicht, da vergleichbare Vorgänge zu erwarten sind (MILLER 2010, S. 163).

Abbildung 2-5 veranschaulicht die Zusammenhänge im Zuge der Verdichtung mit einem Walzenpaar. Dabei sind die Geometrie des Walzspalts sowie die Verläufe der auftretenden Spannungen und der Relativgeschwindigkeit des Walzgutes dargestellt. Das Walzgut erreicht mit der Eintrittsdicke  $\delta_{E,0}$  und der Einlaufgeschwindigkeit  $v_E$  den Walzspalt. Beim Kontakt zwischen dem Walzgut und der Walzenoberfläche kommt das Walzgut zunächst ins Gleiten. Die Walzgutgeschwindigkeit  $v_x$  ist dabei kleiner als die Umfangsgeschwindigkeit der Walzen  $v_{w,1}$  bzw.  $v_{w,2}$ . An der sog. Fließscheide stimmen diese näherungsweise überein. Falls die Reibung besonders groß ist, weitet sich die Fließscheide zu einer Haftzone aus. Anschließend nimmt  $v_x$  zu, bis das Walzgut wieder ins Gleiten kommt. Die Gebiete vor und nach der Fließscheide werden Rückstau- bzw. Voreilzone genannt. Das Walzgut verlässt abschließend mit der Austrittsdicke  $\delta_{E,1}$  und Auslaufgeschwindigkeit  $v_A$  den Walzspalt. Aufgrund der Walzendeformation und der elastischen Rückdehnung im

---

<sup>10</sup> Das Flach-Längswalzen dient der Herstellung von Flachprodukten wie bspw. Bänder und Bleche (HIRT & OLIGSCHLÄGER 2012B, S. 110).

<sup>11</sup> Obwohl in Elektroden Binder auf Kunststoffbasis eingesetzt werden, wird auf die Betrachtung der Verhältnisse im Walzspalt beim Kalandrieren von Thermoplasten und Elastomeren verzichtet, da deren Anteil zu gering ist um einen Vergleich zuzulassen.

Walzgut ist  $\delta_{E,1}$  größer als die Spalthöhe  $h_s$ . (FASSE 1997, S. 41 f., FRITZ 2018, S. 149 f., HIRT & OLIGSCHLÄGER 2012A, S. 11 ff.)

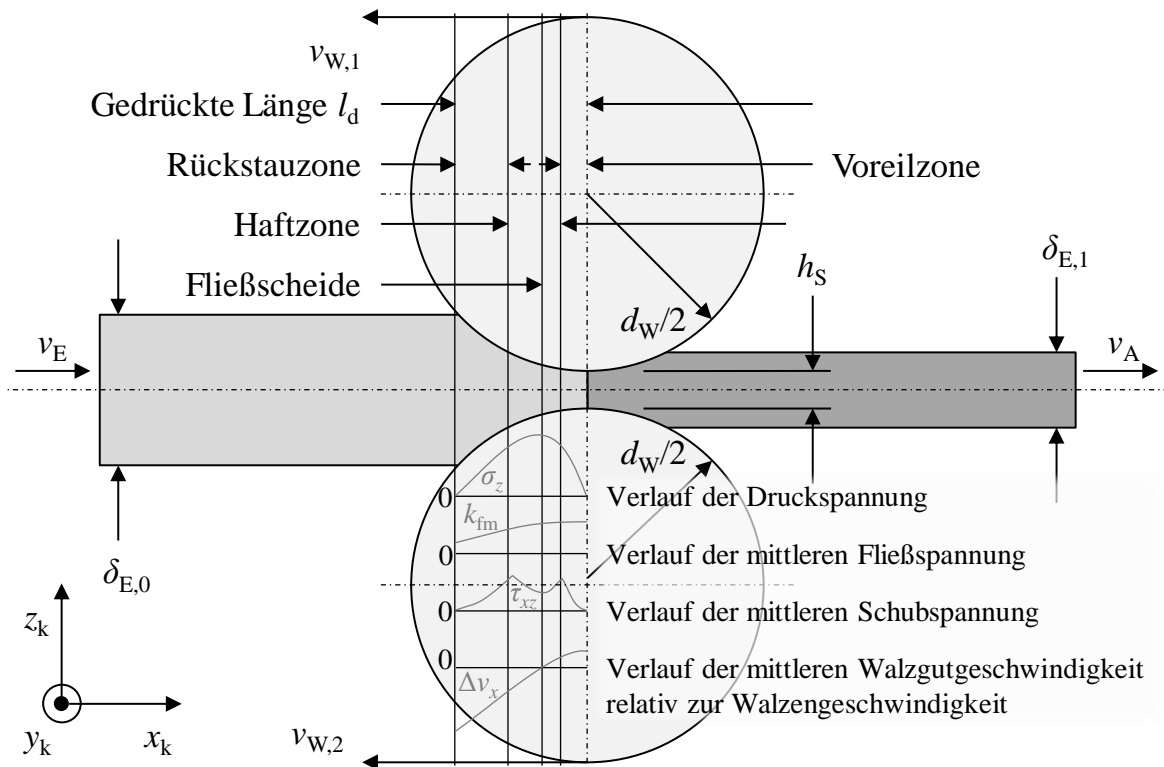


Abbildung 2-5: Verhältnisse im Walzspalt in Anlehnung an FASSE (1997, S. 41) und FRITZ (2018, S. 148 ff.)

Längs des Eingriffsbogens verteilt sich die Druckspannung auf das Walzgut. Die Druckspannung  $\sigma_z$  bewirkt, dass die Walzgutdicke in Walzrichtung bis zum Punkt, an dem der geringste Abstand zwischen den Walzen erreicht wird, abnimmt (FRITZ 2018, S. 148 f.). Im Walzgut treten dabei materialspezifische Schubspannungen  $\tau_{xz}$  auf (FASSE 1997, 42). Die mittlere Fließspannung  $k_{fm}$  (auch Formänderungsfestigkeit) ist die nötige Spannung, um plastisches Fließen zu erreichen (MERKLEIN 2012, S. 67). Die unterschiedlichen Spannungen hängen maßgeblich vom Walzenradius und der Differenz von Ein- und Austrittsdicke der Elektrode ab. Die gedrückte Länge  $l_d$  ist dabei die Projektion des Walzenbogens vom Ein- zum Auslaufpunkt (FRITZ 2018, S. 148). Mit zunehmendem Walzendurchmesser  $d_w$  und höherer Differenz von Ein- und Austrittsdicke wächst  $l_d$ . Als Folge dessen kann eine Zunahme des Umformwiderstandes und der Reibung registriert werden (FRITZ 2018, S. 151). Kleinere Verhältnisse von Walzendurchmesser zu Schichtdicke verschieben das Druckmaximum in Richtung der Walzeneintrittszone (SCHMIDTCHEN & KAWALLA 2017, S. 95).

Die Verdichtung von Pulvern zwischen zwei Walzen bietet Anhaltspunkte zum Vergleich der Verhältnisse im Walzspalt mit dem Kalandrieren von Elektroden. Pulver setzen sich aus einer Vielzahl unterschiedlicher Partikel zusammen. Jedes Partikel hat dabei spezifische physikalische Eigenschaften wie Größe, Dichte und Form (SHINOHARA 1997, S. 96). Beim Walzen werden die Partikel aufgrund der Reibungskraft über den sog. Einzugsbereich in den Walzspalt eingezogen und dann anschließend im Verdichtungsbereich verformt (GUIGON ET AL. 2007, S. 258, HERRMANN 1973, S. 42). Der Verdichtungsprozess lässt sich in die folgenden Stufen unterteilen (MILLER 2010, S. 166):

- Partikelumordnung,
- elastische und plastische Partikeldeformation,
- Partikelfragmentierung und
- ggf. Partikelbindung.

Im Einzugsbereich finden Relativverschiebungen der Partikel untereinander statt (HERRMANN 1973, S. 40). Diese sind von der Partikelform abhängig. Bspw. fallen die Relativverschiebungen bei sphärischen im Vergleich zu andersförmigen Partikeln aufgrund der hohen initialen Packungsdichte eher gering aus (MILLER 2010, S. 166). Im Verdichtungsbereich nimmt der Druck zu und verursacht zunächst elastische Deformationen. Bei weiterem Druckanstieg werden die Partikel dann plastisch verformt (MILLER 2010, S. 166, HERRMANN 1973, S. 40, NYSTRÖM & KAREHILL 1996, S. 17). Im Falle von spröden Partikeln kommt es zur Partikelfragmentierung (HERRMANN 1973). Die Deformation sowie Fragmentierung der Partikel vergrößern die Kontaktfläche bzw. schaffen neue Kontaktflächen, welche die anschließende Partikelbindung fördern (MILLER 2010, S. 166, NYSTRÖM & KAREHILL 1996, S. 17 f.).

Die Literatur liefert zahlreiche Modelle zur Beschreibung der Pulververdichtung (COUBE ET AL. 2008). Bei deren Anwendung müssen jedoch die Partikeleigenschaften berücksichtigt werden. So lassen sich bspw. metallische Partikel oft gleichmäßig umordnen und verformen sich plastisch, während pharmazeutische Partikel u. a. viskoelastischen Verformungen unterliegen (LUM 2011, S. 22). Prozessbezogen sind zusammenfassend beim Pulververdichten Fließfähigkeit, Verdichtbarkeit sowie chemische Beständigkeit<sup>12</sup> wichtige Partikeleigenschaften (MILLER 2010, S. 164).

---

<sup>12</sup> Kathodenmaterialien mit einem hohen Nickelanteil reagieren, wenn sie Feuchtigkeit ausgesetzt werden (BUSÀ ET AL. 2021).



### 3 Stand der Forschung

Das Kalandrieren von Elektroden wird in der Literatur hauptsächlich anwendungsbezogen hinsichtlich der Fertigprodukteigenschaften betrachtet (HASELRIEDER 2016, S. 29). Der Schwerpunkt der vorliegenden Arbeit liegt auf kalandrierbedingten Fehlern, welche die Weiterverarbeitung<sup>13</sup> beeinträchtigen, und dem Aufbau von Prozesswissen zu deren Vermeidung. Daher wird in Abschnitt 3.2 der Stand der Erkenntnisse zum Einfluss des Kalandrierens auf mechanische Eigenschaften beschrieben. Zum besseren Verständnis wird vorher in Abschnitt 3.1 erklärt, wie diese Eigenschaften geprüft bzw. gemessen werden. Anschließend folgt in Abschnitt 3.3 eine Vorstellung der Arbeiten, in denen die Eigenschaften durch die Prozessführung gezielt beeinflusst wurden. Schließlich wird in Abschnitt 3.4 erläutert, wie bestimmte Elektrodeneigenschaften sich auf nachfolgende Prozesse auswirken. Das Kapitel endet mit der Zusammenfassung des Stands der Forschung und der Ableitung des Handlungsbedarfs in Abschnitt 3.5.

#### 3.1 Prüf- und Messverfahren für Elektroden

Zur Prüfung der mechanischen Eigenschaften von Werkstoffen bzw. Bauteilen sind zahlreiche zerstörende (WEIBBACH ET AL. 2018, S. 503-570) oder zerstörungsfreie (SCHIEBOLD 2015) Verfahren in der Literatur beschrieben und normiert. Auch zur Prüfung von Haftungseigenschaften sind sowohl qualitative als auch quantitative Prüfverfahren bekannt (BISCHOF & POSSART 1983, S. 242-266, HABENICHT 2009, S. 780-807). Darüber hinaus sind viele Abwandlungen und Sonderaufbauten für spezifische Tests üblich, wie bspw. in der Textilindustrie (REUMANN 2000, SEN 2008, S. 211-226). Im Folgenden sollen ausschließlich Prüf- und Messverfahren vorgestellt werden, die zur Prüfung der Eigenschaften von Lithium-Ionen-Elektroden eingesetzt, etabliert oder eigens dafür entwickelt wurden. Für weitere Verfahren sei auf die zuvor zitierte Literatur verwiesen.

Zur Beschreibung der Porenstruktur von Elektroden gelten Aufnahmen mit Rasterelektronenmikroskopie (REM) und Quecksilberporosimetrie als etablierte Analyseverfahren. Auf makroskopischer Ebene werden Dickenmessgeräte bzw. Mikrometerschrauben und Mikrowaagen zur Messung und Berechnung von Dicke, Dichte und Porosität eingesetzt (MARKS ET AL. 2011, S. A53). *Inline* wird als Messprinzip die  $\beta$ -Strahlenabsorption für Anoden bzw. Röntgenabsorption für Kathoden (BRODD & TAGAWA 2002, S. 276) oder die Ultraschallabsorption

---

<sup>13</sup> Das Kalandrieren wirkt sich auf die elektrische Leitfähigkeit von Elektroden aus (vgl. Abschnitt 2.3.2). Der diesbezügliche Stand der Forschung wird nicht dargelegt, da die Weiterverarbeitung nicht beeinflusst wird.

(MEYER 2019, S. 42 f., Schutzrecht DE4236436A1) zur Bestimmung der Massenbeladung verwendet. Seltener wurde die Thermografie<sup>14</sup> als Alternative untersucht (JUST ET AL. 2016).

Die mechanischen Eigenschaften von Elektrodenbeschichtungen werden in der Literatur üblicherweise in Zugversuchen bestimmt. Dazu wird die Beschichtung entweder von der Substratfolie abgeschält oder es werden Presslinge speziell für diesen Zweck hergestellt, um Messungen ohne Einfluss der Substratfolie zu ermöglichen. Dabei wurden meistens kommerzielle Universalprüfmaschinen (UPM) verwendet (ANTONOVA 2009, S. 419, BABINEC ET AL. 2006, S. 234, BABINEC ET AL. 2007, S. 509, WANG ET AL. 2013, S. 15024, ZHENG ET AL. 2012A, S. 53, ZHENG ET AL. 2012B, S. 531). Seltener kamen selbstgebaute Prüfstände zum Einsatz (CHEN ET AL. 2013, S. A1054). Teilweise wurden Beschichtungen oder Presslinge hergestellt, die nur aus Binder oder Binder und Leitzusätzen bestanden, um deren Eigenschaften isoliert zu untersuchen (CHEN ET AL. 2003A, S. A1074, MOHAMED 2012, S. 208). Diese stehen aber nicht im Fokus dieser Arbeit. ANTARTIS ET AL. (2015, S. 3 f.) setzten zur Analyse der mechanischen Eigenschaften von Graphit- und Silizium-Anoden das Messverfahren nach JONNALAGADDA ET AL. (2010) ein, das auf der Zugprüfung gepaart mit digitaler Bildkorrelationsanalyse basiert und eine Auflösung in der Größenordnung von 25 nm ermöglicht.

ZHENG ET AL. (2012B, S. 536) sahen jedoch Schwachpunkte in der Messung ohne Substrat. Sie maßen maximal 1,5% Bruchdehnung, was weit unter der üblichen zehnpromzentigen Ausdehnung von Graphit-Anoden während der Interkalation liegt (vgl. QI & HARRIS 2010). HASELRIEDER (2016, S. 43) kritisierte die Untersuchung sowohl von Beschichtungen ohne Substratfolie wegen der möglichen Beschädigung beim Abschälen als auch von Presslingen wegen der unterschiedlichen Verarbeitungswege und der daraus resultierenden mangelnden Vergleichbarkeit. Diese Defizite nahm HASELRIEDER (2016, S. 95-108) zum Anlass, die Nanoindentierung für die Charakterisierung der Beschichtungsmechanik zu untersuchen.

Die Nanoindentierung ist eine instrumentierte<sup>15</sup> Eindringprüfung zur Bestimmung der Härte sowie anderer Materialparameter (Norm DIN EN ISO 14577-1). Dabei dringt ein Prüfkörper, der Indenter, mit bekannter Form weg- oder kraftgesteuert in das Prüfmaterial ein. Durch Wegnahme der Kraft kann die elastische Rückdehnung

---

<sup>14</sup> Die Thermografie wird zur Erkennung von Ungänzen bzw. Inhomogenitäten verwendet (MOHANTY ET AL. 2014, SHARP ET AL. 2014).

<sup>15</sup> Instrumentierte Prüfgeräte unterscheiden sich von nicht-instrumentierten Geräten dadurch, dass sie mit Kraft- und Wegmesstechnik ausgestattet sind (BERGER & KLOOS 2011, S. E27).

aufgenommen und nicht nur das plastische, sondern auch das elastische Verhalten beschrieben werden (FISCHER-CRIPPS 2011, S. XXI f.).

QU ET AL. (2012) untersuchten die Eigenschaften einzelner Lithium-Cobalt-Oxid-Partikel (LCO-Partikel) und BABINEC ET AL. (2006, 2007) von LCO-Elektroden (ohne Substratfolie) mit einem sog. Berkovich-Indenter (dreiseitige Pyramide). Zur Auswertung wählten sie jeweils die Methode nach OLIVER & PHARR (1992), die laut HASELRIEDER (2016, S. 42) jedoch für rein elastische Materialien entwickelt wurde und daher das plastische Verhalten unterschätzt. Außerdem sei der Berkovich-Indenter, der für lokale Belastungen ausgelegt ist, für die Untersuchung von Elektrodenbeschichtungen ungeeignet. Zur Charakterisierung der mechanischen Eigenschaften von Grafit-Anoden setzten CHEN ET AL. (2013) hingegen einen kugelförmigen Indenter ein. Dabei wurde jedoch die Kraft-Weg-Kurve im elastischen Bereich mit dem rein elastischen Kontaktmodell nach HERTZ (1882) approximiert. HASELRIEDER (2016, S. 95-108) etablierte also die Nanoindentierung mit einem sog. *flat punch* (dt. Flachstempel) unter Berücksichtigung von sowohl elastischer als auch plastischer Verformungsarbeit. Für weiterführende Literatur sei auf FISCHER-CRIPPS (2011) und die Norm DIN EN ISO 14577-1 verwiesen.

Aus fertigungstechnischer Sicht sind nicht nur die Eigenschaften der Beschichtung, sondern v. a. die der gesamten Elektrode von Interesse. Zur Ermittlung der Reißdehnung und Ableitung des Elastizitätsmoduls (kurz: E-Modul) für die Abschätzung der Verdichtungsspannung an einseitig beschichteten Elektroden entwickelte HASELRIEDER (2016, S. 91 ff.) einen Zugversuch bestehend aus einer klassischen UPM zur Krafteinleitung und -messung und einem optischen 3-D-Messsystem zur Dehnungsmessung. Die Wegmessung erfolgte so gleichzeitig von beiden Seiten, um eine getrennte Betrachtung des Dehnungsverhaltens auf der Substrat- und der Beschichtungsseite zu ermöglichen. Bei einer doppelseitigen Beschichtung wie bei WANG ET AL. (2018, S. 267) kann die separate Wegmessung nicht verwendet werden. Hingegen wurden die Proben längs und quer gemessen, um den Effekt der Materialanisotropie zu untersuchen.

Für die Weiterverarbeitung der Elektrode ist die Biegesteifigkeit relevant. YAMAMOTO & MORI (2009, S. 176 f.) präsentierten hierzu den sog. *loop stiffness tester* (dt. Schlaufensteifigkeits-Tester): Eine Elektrodenwicklung mit 25 mm Durchmesser wird mit doppelseitigem Klebeband fixiert und mit einer Platte auf Druck beansprucht. Dabei werden Weg und Kraft gemessen. Steife Elektroden neigen nach einem steilen Kraftanstieg zum Reißen. Weiterhin untersuchten NOELLE ET AL. (2018, S. 127) die Scher- und Biegefestigkeit von Elektroden mit einem

selbstgebauten Prüfstand. Als Maß für die Scherfestigkeit wurde die für den Durchstoß der Elektrode mit einem Kolben notwendige Kraft gemessen. Die Biegefestigkeit wurde mit einem Drei-Punkt-Biegeversuch ermittelt (vgl. Norm DIN EN ISO 7438). Beide Versuche wurden in einer UPM umgesetzt. Schließlich untersuchten GUPTA ET AL. (2020) die Biegeeigenschaften von NMC-622-Kathoden hinsichtlich der mechanischen Spannungen während der Ein- und Auslagerung in einem sog. U-Biegeversuch. Dabei wurde ebenfalls eine UPM eingesetzt, wobei der Elektrodenstreifen U-förmig zwischen beiden Prüfstempeln fixiert wurde. Durch Wenden des Streifens lassen sich Dehnung oder Stauchung messen – vorausgesetzt die Elektrode ist einseitig beschichtet – und der E-Modul ermitteln.

MARKS ET AL. (2011, S. A52) verwendeten einen Biegeversuch, um die Haftfestigkeit zu beschreiben. Der entwickelte Prüfstand besteht aus einzelnen Biegedornen mit abnehmendem Durchmesser von 6,3 mm bis 1,5 mm. Die Elektroden werden über die fünf Biegedorne geführt. Die Biegespannung soll die Belastung während des Wickelns der Zelle nachbilden und einen Hinweis auf die erforderliche Haftfestigkeit geben. Wenn die Elektrode allen Durchmessern standhält, ohne dass die Beschichtung reißt oder sich von der Substratfolie ablöst, war der Test erfolgreich.

Um die Reproduzierbarkeit zu erhöhen, wurde in Anlehnung an die Norm DIN EN ISO 1519 (S. 6 ff.) am Institut für Werkzeugmaschinen und Betriebswissenschaften (*iwb*) der Technischen Universität München (TUM) ein sog. *mandrel bend tester* (dt. Dornbiegeprüfer) entwickelt: Die Probe wird auf einer Seite mit Spannbacken fixiert. Mit einem Hebel wird die Probe mit Führungsrollen über den Dorn auf 180° gebogen. Es können Dorne mit unterschiedlichen Durchmessern eingesetzt werden. Die Führungsrolle ist verstellbar, um den Abstand bei unterschiedlichen Elektrodendicken anzupassen. Der Prüfstand wurde bspw. genutzt, um die Flexibilität von Festelektrolyten zu bewerten (RIPHAUS ET AL. 2018, S. A3996 f.).

SCHMITT (2015, S. 99-110) automatisierte die Prüfung mit einem Prüfstand bestehend aus einer Linearachse zur Kraftereinleitung, einer Probeneinspannung, einem gefederten Gegenhalter und einem Biegedornhalter. Letzterer ermöglicht im Vergleich zu MARKS ET AL. (2011) die Aufnahme deutlich kleinerer Dorne mit Biegeradien von 0,1 mm, 0,3 mm, 0,7 mm und 1 mm. Die Proben wurden anschließend einer Sichtprüfung unterzogen. Waren keine Fehlstellen zu erkennen, wurde die Probe zusätzlich mit einem Digital- sowie Konfokalmikroskop untersucht, um jeweils die Oberfläche zu analysieren und eine Topografie zu erstellen (vgl. auch SCHILLING ET AL. 2016, S. 1505 ff.).

Eine weitere Möglichkeit zur Messung der Haftfestigkeit besteht darin, die Beschichtung mit einem Klebstoff bzw. Klebeband abzuschälen oder abzureißen. TRAN (2011, S. 74 f.) verwendete hierfür den sog. *tape test*: Klebeband wird auf die Beschichtung aufgebracht und wieder abgezogen. Die Rückstände werden analysiert, um einen Hinweis auf die Haftfestigkeit zu geben, wobei nur eine qualitative Aussage geliefert wird. Wird der *tape test* mit einer Kraftmessdose kombiniert, ergibt sich der Schälversuch (engl. *peel test*), der eine Quantifizierung ermöglicht. CHEN ET AL. (2003B, S. 921) schälten die Beschichtung direkt vom Substrat ab, ohne ein Klebeband zu verwenden, wobei die Beschichtungen nur aus Binder bestanden und eine Siliziumscheibe als Substrat fungierte. LIU ET AL. (2005, S. A101) setzten zum Schälen erstmals Klebeband ein. Außerdem nannten sie Abzugsfläche und -geschwindigkeit sowie verwendetes Klebeband und Kraftmessdose. Als Wert für die Haftfestigkeit wurde die maximale Kraft ausgegeben. Der Abzugswinkel wurde nicht genannt. Bei dem sog.  $180^\circ$  *peel test* (dt.  $180^\circ$ -Schälversuch) ist der Abzugswinkel festgelegt. Als Messergebnis wird das arithmetische Mittel der Durchschnitts-Schälkraftwerte angegeben. Ggf. wird dieser Wert auf die Breite der Abzugsfläche bezogen. Der  $180^\circ$ -Schälversuch ist normiert (Norm DIN EN ISO 8510-2) und wurde in zahlreichen Publikationen verwendet (CHEN ET AL. 2006, S. 1100, JEONG & LEE 2014, S. 528 f., PARK ET AL. 2011, S. 1052, RYOU ET AL. 2013, S. 1573). Vereinzelt werden auch  $90^\circ$ -Schälversuche durchgeführt (BAUNACH ET AL. 2016, S. 466 f.).

HASELRIEDER ET AL. (2015, S. 2-4) entwickelten ein Prüfverfahren zur Bestimmung der Haftfestigkeit, das dem Abreißversuch aus der Norm DIN EN ISO 4624 entspricht. Die Elektrode wird mit doppelseitigem Klebeband mit Polyacrylat-Klebstoff zwischen einem zueinander parallelen Prüfstempelpaar aus Polypropylen befestigt. Um eine reproduzierbare Klebeverbindung herzustellen, wird das Stempelpaar mit einer bestimmten Kraft und eine bestimmte Zeit lang zusammengedrückt. Danach bewegt sich der obere Stempel mit definierter Geschwindigkeit nach oben, während die Zugkraft über eine Kraftmessdose gemessen wird. Das Ergebnis entspricht der maximal gemessenen Kraft bezogen auf die Abzugsfläche (vgl. Abschnitt 5.2.2). HASELRIEDER ET AL. (2015) stanzen runde Proben aus, wobei auch quadratische Proben möglich sind (WILKA 2013, S. 38). Um zwischen Adhäsions- und Kohäsionsversagen zu unterscheiden, wird ein Foto der Reißfläche aufgenommen und eine rechnergestützte Zählung von hellen und dunklen Pixeln durchgeführt, welche die Substratoberfläche oder Reste der Beschichtung darstellen. IVANOV ET AL. (2005, S. 130) verwendeten zur Befestigung der Probe

flüssigen Klebstoff, wovon HASELRIEDER ET AL. jedoch abraten, da dieser die Elektrode benetzen könnte und so das Messergebnis verfälschen würde.

YOO ET AL. (2003, S. 4198) ermittelten die Haftfestigkeit von Elektroden mit dem sog. *scratch test* (dt. Ritztest, Norm DIN EN ISO 20502). Dabei wird ein Taststift mit zunehmender Belastung über die Beschichtung gezogen, bis dieser die Substratfolie erreicht. Als Maß für die Haftfestigkeit wurde die kritische Last zur Abplatzung der Beschichtung gemessen. CHEN ET AL. (2013, S. A1504) drückten die Haftfestigkeit innerhalb der Schicht mit dem Reibungskoeffizienten aus. Dieser Koeffizient kann berechnet werden, indem zusätzlich die Tangentialkraft gemessen und durch die Normalkraft geteilt wird. YOO ET AL. führten an, dass das Ergebnis von vielen Parametern (Geometrie der Tastspitze, Schichtdicke, usw.) abhängt, was eine Vergleichbarkeit erschwert. SON ET AL. (2014) prüften die Verwendung des sog. *Surface and Interfacial Cutting and Analysis System* (SAICAS, DAIPLA WINTES CO., LTD.), um diese Einschränkungen zu überwinden. Das SAICAS verwendet eine Klinge, um die Beschichtung zu ritzen. Dabei werden horizontale und vertikale Kräfte gleichzeitig gemessen. Dies ermöglicht die Bestimmung der Haftfestigkeit in jeder Tiefe. SON ET AL. führten mit dem vielerorts verwendeten 180°-Schältest eine Vergleichsstudie durch und untersuchten dafür die Haftfestigkeit von Graphit-Anoden mit unterschiedlichen Formulierungen, Dichten und Bindern. Sie kamen zum Schluss, dass SAICAS im Vergleich zum Schältest durch die orts aufgelöste Messung Informationen über unterschiedliche Adhäsionsmechanismen liefert, wie bspw. an der Grenzfläche zur Substratfolie infolge des Kalandrierens, und tieferegehende Analysen ermöglicht.

Schließlich stellten MAYER ET AL. (2021) ein Verfahren zur Beschreibung der Verformung und Dehnung von Elektroden infolge des Kalandrierens vor. Bei diesem Verfahren wird ein zufälliges Farbmuster auf die Elektrodenoberfläche gesprüht, das mit einem optischen 3-D-Scanner erfasst wird. Ein Bild wird vor und ein zweites unmittelbar nach dem Kalandrieren aufgenommen, sodass die Abweichungen zwischen den Farbpunkten gemessen werden können. Die integrierte Software errechnet auf dieser Basis die Dehnung. Diese wurde separat einmal in Maschinenrichtung (MR) und einmal quer zu dieser ausgewertet. Außerdem können anhand der 3-D-Bilder die maximalen absoluten Verformungen in Höhe der Elektrode jeweils längs und quer angegeben werden.

### **3.2 Auswirkung des Kalandrierens auf die Elektrodeneigenschaften**

Nachdem im vorangegangenen Abschnitt Prüf- und Messverfahren zur Beschreibung der Elektrodeneigenschaften vorgestellt wurden, wird im folgenden Abschnitt beschrieben, wie das Kalandrieren diese Eigenschaften beeinflusst. Elektrodeneigenschaften (vgl. Abschnitt 2.2.2) werden maßgeblich von der Mikrostruktur der Beschichtung vorgegeben (HASELRIEDER ET AL. 2015, S. 1). Daher wird zunächst aufgezeigt, wie sich die Mikrostruktur im Zuge des Kalandrierens verändert. Darauf aufbauend werden Arbeiten zu den resultierenden Eigenschaften in Abschnitt 3.2 vorgestellt. Die Beiträge sind nach untersuchtem Aktivmaterial sortiert.

Vor der Verdichtung nehmen die weniger dichten Inaktivmaterialpartikel ein verhältnismäßig großes Volumen ein. Es herrscht eine lockere Packung der Partikel. In REM-Aufnahmen der Beschichtungsoberfläche beobachteten ZHENG ET AL. größere Poren, Risse sowie ein loses Binder-Leitruß-Netzwerk. Daraus resultiert eine vergleichsweise niedrige volumetrische Energiedichte. (ZHENG ET AL. 2008, S. 3, ZHENG ET AL. 2010, S. A1061, ZHENG ET AL. 2012A, S. 54)

Die Verdichtung verändert die Elektrodenmorphologie. Durch Verschieben bzw. Umordnen der Aktivmaterialpartikel werden deren Abstand reduziert und der Porendurchmesser und das Porenvolumen verringert. Die Elektrodendicke und -porosität nimmt ab, während ihre Dichte zunimmt (RAUSCHER 2014, S. 102 ff., WENNIG 2015, S. 113, ZHENG ET AL. 2012A, S. 54). Die Binder- und Leitrußpartikel werden weder deformiert noch fragmentiert und neigen dazu, die Hohlräume zu füllen und die Aktivmaterialpartikel zu kontaktieren (BOCKHOLT ET AL. 2016, S. 144, CHEN ET AL. 2010, S. 2856 f., ZHENG ET AL. 2012A, S. 54). MEYER (2019, S. 57) spricht von einem für Aktivmaterialpartikel aufgrund deren Form und Größe „unbesetzbare[n] Raum“. Der Autor fügt hinzu, dass Inaktivmaterialpartikel sich auch zwischen den Kontaktflächen der Aktivmaterialpartikel befinden können. Es ist die Rede vom „interstitielle[n] Raum“ (MEYER 2019, S. 57).

Häufig wird die Verdichtung in der Literatur an uniaxialen Pressen untersucht. Die Vorgänge im Walzspalt eines Kalanders unterscheiden sich jedoch. Zusätzlich zu der zur Verdichtung erforderlichen Normalspannung wird die Elektrode mit Scherspannung beaufschlagt (HASELRIEDER 2016, S. 214, SCHILCHER ET AL. 2016, S. 1606). AURBACH (2002, S. 31) und GNANARAJ ET AL. (2001, S. 95) beobachten eine Umorientierung der schuppenförmigen Graphitpartikel in Walzrichtung als Folge des Kalandrierens.

Bei hoher Verdichtung, nahe der maximal erreichbaren Dichte, werden die restlichen Hohlräume durch die Inaktivmaterialpartikel gefüllt und die Oberflächenporen geschlossen (HASELRIEDER ET AL. 2013, S. 65). Die Aktivmaterialpartikel werden plastisch verformt und teilweise in die Substratfolie eingedrückt (RAUSCHER 2014, S. 102, TRAN ET AL. 2012, S. 280). Weiter kann es zu Partikelrissen kommen (BOCKHOLT ET AL. 2016, S. 144, CHU ET AL. 2012, S. 204, HUTTNER ET AL. 2021, KANG ET AL. 2017, S. 6, SCHILCHER ET AL. 2016, S. 1607, ZHENG ET AL. 2010, S. A1061). Große Partikel im Verhältnis zur Schichtdicke neigen dabei leichter zu Rissen (RAUSCHER 2014, S. 101 f.). Abbildung 3-1 zeigt die zuvor genannten Phänomene am Bsp. der in dieser Arbeit untersuchten Materialsysteme bei einer Verdichtung von 50 % auf 20 % Porosität.

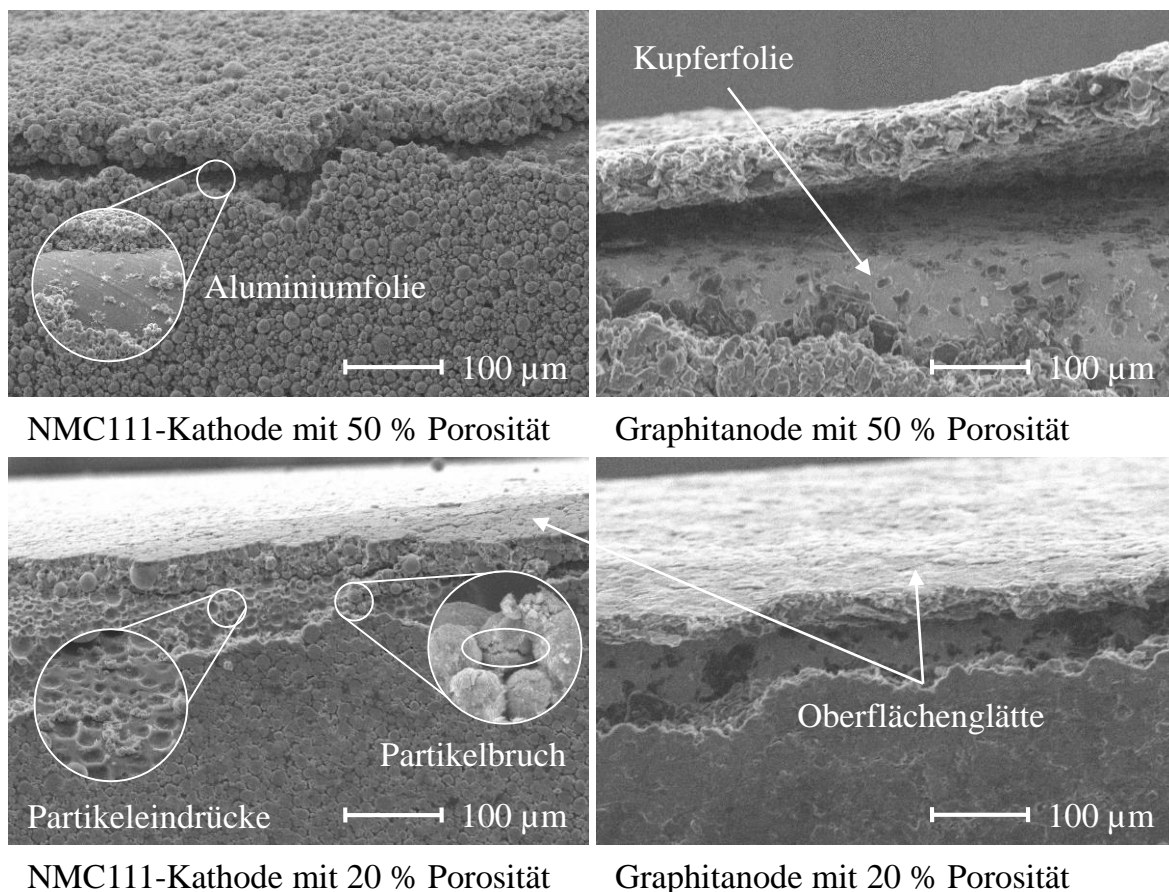


Abbildung 3-1: REM-Aufnahmen von Rissen<sup>16</sup> in der Beschichtung von NMC-111-Kathoden (links) und Grafit-Anoden (rechts) mit 50 % bzw. 20 % Porosität, 200-fach vergrößert

Der Verlauf des zur Verdichtung notwendigen Drucks ist nicht linear. Bei geringer Porosität muss hoher Druck aufgebracht werden, um die Elektrode weiter zu

---

<sup>16</sup> Die Risse wurden bei der Probenvorbereitung zur Veranschaulichung gebildet und veranschaulichen sowohl die Oberfläche als auch den Querschnitt der Beschichtung.



verdichten (TRAN ET AL. 2012, S. 280). Elektrodenformulierungen mit höherem Aktivmaterialanteil benötigen mehr Druck zur Verdichtung als jene mit geringerem (PRIMO ET AL. 2021B). Des Weiteren unterscheiden sich die Verdichtung von Anoden und Kathoden aufgrund der unterschiedlichen Partikeleigenschaften stark (vgl. Abschnitt 2.2.2, MEYER ET AL. 2017). An Graphit-Anoden wurde bspw. bereits ab 10% Verdichtungsrate eine Deformation der Oberflächenpartikel beobachtet (HASELRIEDER ET AL. 2013, S. 64 f.).

Die durch die Verdichtung herbeigeführte Porenstruktur macht sich besonders an der Veränderung der Elastizität und Plastizität sowie der Haftfestigkeit von Elektroden bemerkbar (vgl. Abschnitt 2.3.2). Zudem finden sonstige Eigenschaften Erwähnung in der Literatur. Einschlägige Arbeiten zu diesen Elektrodeneigenschaften werden im Folgenden vorgestellt.

### 3.2.1 Elastizität und Plastizität

HASELRIEDER ET AL. (2013) untersuchten den Einfluss des Kalandrierens auf die Eigenschaften von Graphit-Anoden. Die Elektroden wurden mit Technikumsanlagen<sup>17</sup> hergestellt. Der Kalander (SAUERESSIG GMBH & CO. KG) ist jeweils mit Walzen mit einem Walzendurchmesser und einer Ballenbreite von 400 mm ausgestattet. Die maximale Linienlast entspricht 1500 N/mm bei einer Beschichtungsbreite von 300 mm, wobei als Proben Einzelblattelektroden mit 260 mm Breite und 450 mm Länge verwendet wurden. Die Walzgeschwindigkeit wurde auf 2 m/min eingestellt und die Walztemperatur bei Raumtemperatur (RT) belassen. Die untersuchten Verdichtungsraten betragen 5 %, 10 %, 15 %, 20 % und 26 %. Mit Nanoindentierung wurden die Deformationsenergien gemessen und als Verhältnis von plastischer zu elastischer Deformationsenergie angegeben. Dieser Wert nahm mit zunehmender Verdichtungsrate ab, was auf eine Minimierung der plastischen Deformation zurückgeführt wurde. Es wurde angenommen, dass die elastische Deformation in erster Linie durch die Bindereigenschaften bestimmt wird. Ab 20 % Verdichtungsrate konnte keine weitere Verringerung der plastischen Deformation festgestellt werden. In REM-Aufnahmen konnte ebenso keine stärkere Deformation der Partikel beobachtet werden, was auf ein mögliches Maximum der plastischen Deformation zurückgeführt wurde.

ANTARTIS ET AL. (2015, S. 8 ff.) untersuchten die mechanischen Eigenschaften von Graphit- und Silizium-Anoden sowie Vergleichselektroden bestehend aus Binder und

---

<sup>17</sup> Eine Technikumsanlage ist „das maßstäblich verkleinerte Funktionsmodell der Produktionsanlage“ (HEMMING & WAGNER 2017, S. 9).

Leitruß. Die Elektroden wurden nicht nasschemisch beschichtet, sondern in einer Heißpresse hergestellt, mit der auch die Porosität eingestellt wurde. Die trockene Partikelmischung wurde hierfür in eine Form mit einer 20 µm dicken Kupferfolie als Unterlage gegeben. Mit diesem Herstellungsverfahren konnte die Porosität zwischen 70 % und 30 % eingestellt werden. Die Autoren beobachteten eine Steigerung der Festigkeit und Dehnung mit sinkender Porosität. Der E-Modul zeigte hingegen ein anderes Verhalten. Es stellte sich ein Maximum um ca. 45 % Porosität ein. Die Autoren hätten eine Abnahme des E-Moduls der Elektrode unter 45 % Porosität nicht erwartet, außer eine Kristallisation von PVDF während des Heißpressens wäre eingetreten.

ZHENG ET AL. (2012A, S. 53 ff.) untersuchten den Einfluss des Kalandrierens auf die physikalischen Eigenschaften von NMC-111-Kathoden. Um die Effekte zu verdeutlichen, wurde mit ca. 30 mg/cm<sup>2</sup> eine vergleichsweise hohe Massenbeladung gewählt. Die Porosität stellte sich nach der Trocknung auf ca. 50 % ein. Die Elektroden wurden anschließend auf eine Porosität von 40 %, 30 %, 20 %, 10 % und 0 % kalandriert. Um ausschließlich die Eigenschaften der Beschichtung zu untersuchen, wurde diese von der Substratfolie entfernt. Das Vorgehen des Entfernens ist jedoch nicht näher beschrieben. Die Zugfestigkeit und der E-Modul der Beschichtungen wurden in Zugversuchen gemessen. Die Werte nahmen mit Verringerung der Porosität von 50 % auf 0 % ca. um das Siebenfache bzw. 30-fache zu. Die Zunahme der Festigkeit wurde der verbesserten Kohäsion der Partikel zugeschrieben.

BOCKHOLT ET AL. (2016) untersuchten an NMC-111-Kathoden, wie die einzelnen Prozessschritte der Elektrodenherstellung die Elektrodeneigenschaften beeinflussen. Hierzu wurden Beschichtungen mit verschiedenen Formulierungen hergestellt und auf eine 20 µm dicke Aluminiumfolie aufgetragen. Die Elektroden werden, ausgehend von 45 % Porosität nach dem Trocknen, auf 35 % und 25 % Porosität bei RT und einer Walzgeschwindigkeit von 0,5 m/min verdichtet. Wie auch in den Arbeiten von HASELRIEDER (2016), MEYER (2017, 2018, 2019, 2020) und SCHILCHER ET AL. (2016) kam der Kalandrierer GKL 400 (SAUERESSIG GMBH & CO. KG) im Pilotmaßstab mit 430 mm Walzendurchmesser und 465 mm Ballenbreite zum Einsatz (vgl. Abschnitt 3.2.2 und 3.3). Die maximale Linienlast beträgt 1500 N/mm. Zur Bestimmung der mechanischen Eigenschaften wurden die Elektroden einem Biegeversuch unterzogen und die Elektrodenoberfläche wurde anschließend im REM analysiert. Bei unkalandrierten Beschichtungen wurden bei 5 % der Beschichtungsfläche Risse festgestellt. Bei leicht kalandrierten Elektroden kamen Risse in 3 % und bei stärker kalandrierten Elektroden in ca. 1 % der

Beschichtungsfläche vor. Die verminderte Rissbildung wurde dabei auf eine Verbesserung der mechanischen Stabilität der Elektrode zurückgeführt.

TRAN ET AL. (2012, S. 279 ff.) untersuchten das Verdichtungsverhalten von Lithium-Nickel-Cobalt-Aluminium-Oxid-Kathoden (NCA-Kathoden). Die Kathoden wiesen eine Nassschichtdicke von 250  $\mu\text{m}$  auf und wurden, bezogen auf die Schichtdicke der getrockneten Elektroden um 10% mit einer uniaxialen Presse, verdichtet. Zur Beschreibung der mechanischen Eigenschaften wurden Messungen mit Nanoindentierung (vgl. Abschnitt 3.1) durchgeführt. Es wurde beobachtet, dass die Streuung der Messergebnisse bei verdichteten Elektroden im Vergleich zu den unverdichteten geringer ausfiel, was auf eine Homogenisierung der mechanischen Eigenschaften zurückgeführt wurde. Zudem sank das Verhältnis von plastischer zu gesamter Deformationsenergie von 84% bei nicht verdichteten Elektroden auf 38% bei verdichteten Elektroden. Die elastischen Deformationsenergien blieben hingegen in einer vergleichbaren Größenordnung. Damit wurde die Veränderung der gesamten Verformungsenergie der Minimierung der plastischen Verformungen zugeschrieben. Die Elektrodeneigenschaften wurden homogenisiert, ohne deren Elastizität zu beeinträchtigen. (vgl. auch TRAN 2011, S. 72-78)

Die erzielten Ergebnisse stehen teilweise im Widerspruch zu den Arbeiten von ZHENG ET AL. (2012A, S. 54). Dort nahm die Standardabweichung mit zunehmender Verdichtung zu.

Die elastische Rückdehnung nach Verlassen des Walzspalts, die in weiteren Bereichen wie dem Kalandrieren zur Herstellung von Halbzeugen aus Kautschuk (RÖTHEMEYER & SOMMER 2013, S. 618) oder Pulvermaterialien (PIETSCH 1987, S. 11 ff.) bekannt ist, wird auch bei Elektroden beobachtet und als *Springback*-Effekt bezeichnet (NAGAI 2009, S. 156). Die Auswahl des Binders ist hier ausschlaggebend, da dieser, wie bereits von HASELRIEDER ET AL. (2013) beschrieben, die elastischen Eigenschaften der Elektrode bestimmt.

### 3.2.2 Haftfestigkeit

BRÉGER & PERRONCEL (2014, S. 3 f.) untersuchten die Haftfestigkeit von Anoden und Kathoden. Die eingesetzten Materialien sowie Messverfahren wurden dabei nicht genannt. Die Porosität der kalandrierten Elektroden wurde jeweils in drei Stufen variiert, wobei die Werte für die Porosität sowie die Haftfestigkeit ausgehend von der ersten Stufe auf 100% normiert wurden. Bezogen auf die erste Stufe wurden für die zwei nächsten Stufen die Anoden auf 82,5% und 65% und die Kathoden auf 89%

und 78% verdichtet. Bei den Anoden konnte kein eindeutiger Einfluss der Verdichtung auf die Haftfestigkeit festgestellt werden. Hingegen stieg diese bei der Kathode der höchsten Verdichtungsstufe um ca. 80% stark an. Erwähnenswert ist, dass der Kalandrierer mit einer zusätzlichen Vorheizstrecke ausgestattet wurde, um länger zu heizen, als dies normalerweise durch den Kontakt im Walzspalt der Fall ist. Die eingestellte Temperatur ist jedoch nicht bekannt.

DREGER ET AL. (2019) untersuchten die Einflüsse des Dispergierens durch Extrusion und des Kalandrierens auf die Eigenschaften von NMC-111-Kathoden und Graphit-Anoden. Generell lässt sich feststellen, dass die Haftfestigkeit bei mäßigem Kalandrieren der Elektroden deutlich reduziert wird. Dieser Effekt war sowohl bei den Anoden als auch bei den Kathoden zu beobachten, wenn auch deutlich stärker bei den Ersteren.

BAUNACH ET AL. (2016, S. 467 f.) untersuchten die Haftfestigkeit von unterschiedlich getrockneten Graphit-Anoden vor und nach dem Kalandrieren. Zur Prüfung der Haftfestigkeit wurde ein Schältest angewandt. Die Elektroden wurden auf 70% der Trockenschichtdicke bei 60°C Walzentemperatur verdichtet. Das Kalandrieren führte zu einer Verbesserung der Haftfestigkeit, wobei der Einfluss bei den Elektroden, die mit niedriger Temperatur getrocknet wurden, größer war.

MARKS ET AL. (2011, S. A55) untersuchten den Einfluss der Massenbeladung auf die Haftfestigkeit von NMC-111-Kathoden für verschiedene Elektrodenformulierungen. Zur Beschreibung der Haftfestigkeit wurden die Kathoden über zylindrische Stäbe mit unterschiedlichen Biegeradien geführt, um die Beanspruchung des Wickelverfahrens in der Zellmontage nachzubilden (vgl. Abschnitt 3.1). Bis zu einer Massenbeladung von 16 mg/cm<sup>2</sup> konnten für alle Massenanteile an Aktivmaterial (86% bis 96%) keine Risse oder Ablösungen der Beschichtung beobachtet werden, oberhalb von 16 mg/cm<sup>2</sup> jedoch schon. Nach der Verdichtung mit einer hydraulischen Presse konnte für Kathoden mit einer Massenbeladung von bis zu 24 mg/cm<sup>2</sup> kein Adhäsionsversagen festgestellt werden, was auf eine Verbesserung der Haftung durch Verdichtung für dickere Elektroden zurückgeführt wurde.

TRAN ET AL. (2012, S. 279 f.) untersuchten den Einfluss der Verdichtung auf die Haftfestigkeit von NCA-Kathoden. Diese wurden mit Drücken bis 867 MPa in vier Stufen verdichtet. Im *tape test* konnte qualitativ gezeigt werden, dass die Verdichtung die Haftfestigkeit verbessert. Bei einem Druck von mehr als 694 MPa wurden die Partikel an der Grenzfläche in die Substratfolie eingedrückt. (vgl. auch TRAN 2011, S. 72-78)

SCHILLING ET AL. (2016) entwickelten ein Prüfverfahren zur gezielten Beanspruchung und Ermittlung der Haftfestigkeit von Elektroden unter definierter Biegespannung. Die Untersuchungen wurden am Bsp. von Lithium-Mangan-Oxid-Kathoden (LMO-Kathoden), die auf einer 20  $\mu\text{m}$  dicken Substratfolie aus Aluminium beschichtet wurden, durchgeführt. Die Elektroden wurden mit Verdichtungsraten von 15,2%, 25,0% und 34,2% auf 73  $\mu\text{m}$ , 64  $\mu\text{m}$  und 57  $\mu\text{m}$  kalandriert, wobei die Ausgangsdicke 86  $\mu\text{m}$  betrug. Die Proben wurden mit einer Feder und Klemmbacken gespannt und mithilfe einer Linearachse über definierte Biegeradien geführt. Bis zu einem Biegeradius von 0,7 mm konnte bei keiner Elektrode eine Delamination festgestellt werden. Bei einem Biegeradius von 0,3 mm versagten die unkalandrierten Elektroden und bei 0,1 mm schließlich alle Proben. Die Analyse der Oberflächentopologie der Versuche mit dem Biegeradius von 0,3 mm offenbarten eine sinkende Oberflächenrauheit mit steigender Verdichtungsrate, wobei bei allen Proben eine Zunahme der Rauheit mit zunehmendem Weg zu verzeichnen war. (vgl. auch SCHMITT 2015, S. 99-110)

SCHILCHER ET AL. (2016, S. 1606 f.) untersuchten den Einfluss des Kalandrierens auf die Eigenschaften von LMO-Kathoden. Die durch Verdichtung variierenden Beschichtungsdichten bewegten sich in einem Bereich zwischen 1,54  $\text{g}/\text{cm}^3$  und 2,39  $\text{g}/\text{cm}^3$ . Die Beschichtung erfolgte auf einer 20  $\mu\text{m}$  dicken Aluminiumfolie. Die Haftfestigkeit wurde bei niedrigen Verdichtungsraten ausgehend von der unkalandrierten Elektrode von ca. 730 kPa auf ca. 540 kPa bei einer Verdichtungsrate von 15,17% abgesenkt. Bei den Abreißversuchen wurden Kohäsionsbrüche festgestellt, was auf eine Schädigung des Aktivmaterialpartikel-Binder-Netzwerks aufgrund der auftretenden Scherspannungen beim Kalandrieren zurückgeführt wurde. Mit höheren Verdichtungsraten konnte die Haftfestigkeit bis 925 kPa wieder verbessert werden.

### 3.2.3 Sonstige Eigenschaften

Das Kalandrieren führt bei zu hohem Druck bzw. zu hoher Linienlast zur Versprödung der Elektrode, was die Flexibilität der Elektrode verringert und zu Folienrissen führen kann (KAMPKER 2014, S. 67, KURZWEIL & DIETLMEIER 2015, S. 220, PETTINGER ET AL. 2018, S. 215, YAMAMOTO & MORI 2009, S. 176). Letztere haben Ausfallzeiten der Produktionslinie zur Folge, die zu vermeiden sind (BRÉGER & PERRONCEL 2014, S. 2).

Hoher Druck kann lokal durch Agglomerate, die ihren Ursprung beim Mischen aufgrund eines unzureichenden Desagglomerierens haben, entstehen. Die

Agglomerate verhindern eine gleichmäßige Verdichtung und können im Extremfall zu Schäden am Kalandrierer führen (BITSCH ET AL. 2015, S. 467, BITSCH 2017, S. 56). Auch Fremdpartikel können eingearbeitet werden, weshalb Walzen und Elektrode sauber zu halten sind (KAMPKER 2014, S. 67). Agglomerate, Fehlstellen in der Beschichtung oder Anrisse am Folienrand können auch einen vollständigen Folienriss verursachen (BOLD & FLEISCHER 2018, S. 573).

Wie einleitend in Abschnitt 3.2 beschrieben, kann hoher Druck Partikelrisse herbeiführen. HUTTNER ET AL. (2021) untersuchten die Feuchtigkeitsaufnahme von NMC-622-Kathoden nach dem Kalandrieren mit einer Massenbeladung von  $30 \text{ mg/cm}^2$ . Die Elektroden wurden ausgehend von  $2,6 \text{ g/cm}^3$  auf  $2,8 \text{ g/cm}^3$ ,  $3,0 \text{ g/cm}^3$  und  $3,2 \text{ g/cm}^3$  kalandriert. Es wurde festgestellt, dass die Feuchtigkeitsaufnahme mit steigender Dichte zunimmt. Dies wurde hauptsächlich auf eine größere Oberfläche durch Risse und Brüche der Partikel zurückgeführt.

Während des Kalandrierens wird die Elektrode gedehnt. Dadurch kann es am Übergang zwischen den beschichteten und unbeschichteten Bereichen zu unerwünschten Falten (engl. *wrinkles*) kommen (KEPPELER ET AL. 2020, S. 2 f.). Diese werden durch Überhöhungen am Beschichtungsrand (engl. *heavy edges*), die beim Beschichten der Elektroden – v. a. mit der Schlitzdüse – entstehen, verstärkt (SCHMITT ET AL. 2015, S. 928). Die *heavy edges* führen zudem beim Kalandrieren zu einer ungleichmäßigen Druckverteilung (SCHMITT ET AL. 2014, S. 58).

BOLD & FLEISCHER (2018, S. 572 f.) nennen als Fehlerbilder zusätzlich zu den zuvor genannten Beobachtungen die Bogenform und Verwerfungen der Elektrode im beschichteten Bereich. Die Bogenform der Elektrode kann sich bei asymmetrischen Beschichtungstreifen aufgrund von beim Kalandrieren eingebrachten Eigenspannungen ergeben. Die Ursache für die Verwerfungen im beschichteten Bereich sind durch das Kalandrieren eingebrachte plastische Deformationen in Längs- und Querrichtung (BOLD & FLEISCHER 2018, S. 572). MICHAELIS ET AL. (2018, S. 48) berichteten von „Schüsselung“ und führten diese auf „mechanisch induzierte Eigenspannungen an der Grenzfläche zum Substrat“ zurück. Ein Fließen der Beschichtung zur Seite ist auch möglich, wird aber seltener beobachtet (PETTINGER 2013, S. 225).

### 3.3 Prozessparameter zur Einstellung von Elektrodeneigenschaften

Nachdem in den vorangegangenen Abschnitten gezeigt wurde, wie sich die Verdichtung auf die Elektrodeneigenschaften auswirkt, werden im folgenden Abschnitt Arbeiten vorgestellt, bei denen diese aktiv durch die Prozessgestaltung beeinflusst wurden.

JEONG & LEE (2014) untersuchten Methoden zur Designoptimierung von Elektroden hinsichtlich ihrer Haftungs- und Verformungseigenschaften. Der Optimierungsprozess wurde mittels eines Entscheidungsbaums, eines künstlichen neuronalen Netzes und eines genetischen Algorithmus durchgeführt, der sich auf experimentelle Daten stützt. Zielsetzung war die Maximierung der Haftfestigkeit, Minimierung der Verformung und Einstellung des *Springback*-Effekts in einem vorteilhaften Wertebereich, wobei keine Unterscheidung zwischen Kathode und Anode vorgenommen wurde. Aus anfänglich 18 Eingangsparametern wurden zwölf als Einflussgrößen identifiziert, die im Folgenden genannt werden. Das sog. *adhesion change ratio*, die Massenbeladung, Restfeuchte und die Adhäsion nach dem Kalandrieren beeinflussen die Haftfestigkeit. Die Elektrodenverformung wird von dem *adhesion change ratio*, dem eingesetzten Binder, der Dichte vor und nach dem Kalandrieren, der Massenbeladung, der Dicke nach abgeschlossener Rückdehnung, der Verdichtungsrate und der sog. *slit deformation* bestimmt. Für die elastische Rückdehnung wurden die Parameter Massenbeladung, Adhäsion nach dem Kalandrieren, Dicke vor und nach dem Kalandrieren sowie nach abgeschlossener Rückdehnung, Dichte nach dem Kalandrieren und Verdichtungsrate identifiziert. Die Elektroden wurden bei RT kalandriert (JEONG & LEE 2014). In Bezug auf die elastische Rückdehnung soll sich zusätzlich eine erhöhte Walzentemperatur positiv auswirken (CAO ET AL. 2015, S. 485).

HASELRIEDER (2016) untersuchte in seiner Dissertation den Einfluss des Kalandrierens auf mechanische, strukturbedingte, elektrische und elektrochemische Elektrodeneigenschaften. Es wurden unterschiedliche Materialien und Formulierungen unter Einbezug des Mischprozesses zur Einstellung der Leitrußstrukturen identifiziert. Außerdem wurden die im Abschnitt 3.1 beschriebenen Messverfahren entwickelt. Hinsichtlich der mechanischen Eigenschaften wurden zudem Untersuchungen zur Elektrode im Verbund (inkl. Substratfolie), zur Beschichtung und zur Grenzfläche durchgeführt. An Grafit-Anoden, die mit drei Verdichtungsraten kalandriert wurden, zeigte sich, dass die Verdichtung zu höheren E-Moduln führte, während Dehnung und Reißfestigkeit

minimiert wurden. Auf Zug beanspruchte Elektrodenbahnen wurden aufgrund des ausgeprägten linear-elastischen Bereichs nicht irreversibel plastisch verformt, rissen aber bei geringeren Zugspannungen im Vergleich zu nicht kalandrierten Elektroden.

HASELRIEDER (2016) berechnete die im Walzspalt auftretenden Verdichtungsspannungen auf Basis der Hertz'schen Pressung und verwendete einen zweiten Kalandrierer mit einem Walzendurchmesser von 600 mm zur Validierung seiner Ergebnisse. Die Berechnungsmethode ist trotz Annahmen und Vereinfachungen für eine Näherung valide. Dabei wurde auch gezeigt, dass bei einem größeren Walzendurchmesser höhere Kräfte bzw. Linienlasten erforderlich sind, um die gleiche Verdichtungsrate bzw. Verdichtungsspannung zu erzielen, da die gedrückte Länge zunimmt.

Untersuchungen zur Schichthaftung von Elektroden zeigten, dass die Haftfestigkeit i. Allg. abnimmt und für Kathoden bei ca. 15% Verdichtungsrate ihr Minimum erreicht. Dies wurde mit im Walzspalt entstehenden Schubspannungen an der Grenzfläche aufgrund der unterschiedlichen Materialausdehnungseigenschaften von Beschichtung und Substratfolie erklärt. Eine Ausnahme bilden Kathoden, bei denen bei höheren Verdichtungsraten eine Zunahme der Haftfestigkeit zu verzeichnen war, die auf die Einbettung von harten Partikeln in die Substratfolie zurückgeführt wurde. Basierend auf theoretischen Überlegungen wurden die Bahngeschwindigkeit und der Walzendurchmesser als Einflussgrößen genannt, die zu höheren Schubspannungen führen. Kleinere gedrückte Längen führen aufgrund kleiner Walzendurchmesser bei gleicher Kraft bzw. Linienlast zu höheren Verdichtungsspannungen bzw. Schubspannungen und Materialverformungen. (HASELRIEDER 2016)

MEYER ET AL. (2017) untersuchten die Verdichtung von NMC-111-Kathoden und Graphit-Anoden in einem Kalandrierer. Die Elektroden besaßen eine Beschichtungsbreite von 200 mm und wurden bei RT verdichtet. Der Kalandrierer ist mit einem *Roll-Bending*-System ausgestattet (vgl. Abschnitt 2.3.1), was eine Messung der Linienlast ermöglichte. In Anlehnung an HECKEL (1961) wurde zur Berechnung der Elektrodenporosität der sog. Verdichtungswiderstand eingeführt, der die Konvergenz gegen die Maximaldichte bestimmt. Es zeigte sich, dass der Verdichtungswiderstand bei NMC-111-Kathoden fast doppelt so hoch ist wie bei den Graphit-Anoden, d. h. für eine vergleichbare Verdichtungsrate erfordern Kathoden höhere Linienlasten als Anoden. Dieser Unterschied wurde mit dem Einfluss der Partikeleigenschaften, Elektrodenzusammensetzung sowie Porenstruktur auf die Umordnung während des Verdichtungsprozesses erklärt.



MEYER ET AL. (2018) untersuchten in einer weiteren Studie den Einfluss von unterschiedlichen Aktivmaterialien und der Massenbeladung auf den Verdichtungswiderstand. Die untersuchten NMC-111-, NMC-622- und NCA-Kathoden wiesen ein ähnliches Verdichtungsverhalten auf. Hingegen fiel der Verdichtungswiderstand bei einer Kathode, bestehend aus zwei unterschiedlichen NCA-Pulvermaterialien mit einem Massenverhältnis von 80 % zu 20 %, und bei den NMC-811-Elektroden geringer aus. Bei dem Blendmaterial wurde der geringere Verdichtungswiderstand mit der Zugabe von kleineren Partikeln erklärt, die sich besser in die vorhandenen Hohlräume umordnen lassen. Die NMC-811-Partikel besaßen eine geringere spezifische Oberfläche. Die entsprechend kleinere Reibungsfläche beim Umordnen der Partikel erklärte den geringeren Verdichtungswiderstand. Die Erhöhung der Massenbeladung hatte hingegen eine lineare Erhöhung des Verdichtungswiderstandes zur Folge. Die in MEYER ET AL. (2017) aufgestellte Formel zur Berechnung der Porosität wurde entsprechend der gewonnenen Erkenntnisse angepasst. Zusätzlich zum Verdichtungswiderstand wurde der sog. Porositätsfaktor eingeführt, der das Verhältnis von der minimal erreichbaren Porosität zur Ausgangsporosität beschreibt.

MEYER ET AL. (2020) variierten die Zusammensetzung von NMC-111-Elektroden und stellten fest, dass der zuvor eingeführte Porositätsfaktor abhängig vom Massenanteil der Inaktivmaterialien ist. Tatsächlich nähert sich der Porositätsfaktor mit abnehmendem Gehalt an Additiven dem theoretischen Quotienten einer kubisch primitiven Packung geteilt durch die Porosität einer kubisch dichten Packung gleicher Kugeln ( $26,95\%/47,64\% \cong 0,57$ ). Weiter wurde eine lineare Abnahme des Verdichtungswiderstandes und -faktors mit steigenden Walztemperaturen verzeichnet, die mit der Erhöhung der elastischen Verformbarkeit des thermoplastischen Bindemittels PVDF erklärt wurde. Zur Beschreibung der Weiterverarbeitungseigenschaften wurde die Schichthaftung der kalandrierten Elektroden untersucht. Die Haftfestigkeit nahm in Einklang mit den Beobachtungen von HASELRIEDER (2016) mit steigender Verdichtungsrate zunächst ab und erreichte bei 30–35 % Porosität ein Minimum, bevor sie dann wieder anstieg. Dieses Grundverhalten konnte bei allen untersuchten Massenbeladung beobachtet werden, wobei generell höhere Massenbeladungen zu einer Abnahme der Haftfestigkeit führten. Durch die Erhöhung der Walztemperatur konnte die Haftfestigkeit verbessert werden, was mit Untersuchungen von LI ET AL. (2008, S. A238) übereinstimmt. Dort führte eine Wärmebehandlung von Silizium-Anoden mit PVDF als Binder bei 300 °C zu einer deutlichen Verbesserung der Haftfestigkeit. MEYER ET

AL. (2020) beobachteten zudem, dass der Effekt bei höheren Massenbeladung ausgeprägter war.

MEYER (2019) führt die vorangegangenen Ergebnisse in seiner Dissertation an. Darüber hinaus wurde eine Abschätzung zu den mechanischen Spannungen im Walzspalt getroffen. Mittels Nanoindentierung wurde die elastische Rückdehnung des Materials gemessen, um den realen Spalt zu approximieren und damit die gedrückte Fläche<sup>18</sup> zu berechnen. Die Formel zur Berechnung der minimal erzielbaren Porosität wurde mithilfe eines spannungsbezogenen Verdichtungswiderstandes an die Verdichtungsspannung angepasst und mit der ursprünglichen Formel, welche die Linienlast beinhaltet, verglichen. Mit der angepassten Formel kann also auch der Einfluss des Walzendurchmessers berücksichtigt werden. (MEYER 2019, S. 79-87)

PRIMO ET AL. (2021A) untersuchten mit statistischen Methoden den Einfluss des Kalandrierdrucks, der Walzentemperatur und der Bahngeschwindigkeit auf die Porosität und die mechanischen Eigenschaften von NMC-111-Kathoden. Die Versuche wurden an einem Kalandrierer mit 250mm Walzendurchmesser (BPN250, PEOPLE & TECHNOLOGY INC.) durchgeführt. Die Walzentemperaturen betragen 25°C, 60°C, 75°C und 90°C und die Bahngeschwindigkeit wurde zwischen 0,54m/min und 1,82m/min variiert. Es wurde beobachtet, dass zusätzlich zur Erhöhung des Kalandrierdrucks eine geringere Porosität mit einer Erhöhung der Walzentemperatur erreicht werden kann, da die Verformbarkeit des thermoplastischen Binders PVDF erhöht wird. Die mittels Nanoindentierung ermittelte Härte der Beschichtung nahm mit steigendem Kalandrierdruck und steigender Walzentemperatur zu, da sie mit der Porosität korreliert bzw. sich invers verhält. Das Verhältnis von plastischer zu elastischer Deformationsenergie der Beschichtung wurde ebenso angegeben. Bei geringerem bis mittlerem Kalandrierdruck war ein Anstieg zu verzeichnen. Darüber hinaus konnte kein eindeutiger Zusammenhang beobachtet werden. Die Bahngeschwindigkeit hatte statistisch keinen signifikanten Einfluss auf alle untersuchten Zielgrößen.

BOLD & FLEISCHER (2018, S. 573 f.) untersuchten den Einfluss von Prozessparametern auf die Elektrodendicke nach dem Kalandrieren sowie die in Abschnitt 3.2.3 genannten Fehlerbilder ohne zwischen Anoden und Kathoden zu unterscheiden. Dabei wurden keine experimentellen Versuchsergebnisse präsentiert. Mit steigender Bahngeschwindigkeit wurde eine Erhöhung der Elektrodendicke um

---

<sup>18</sup> Die gedrückte Fläche ist die Walzgutfläche, die sich im Eingriff der Walzen befindet. Sie wurde über die gedrückte Sehne im Ein- und Auslauf approximiert (MEYER 2019, S. 16 f.).

bis zu 3 % verzeichnet. Die Abweichung wurde zum einen mit der durch die Bombage verursachten statischen Unwucht an der Kalandrierwalze erklärt, die zu einem größeren Walzspalt führt. Zum anderen könnte die kürzere Verweilzeit im Walzspalt bei höheren Geschwindigkeiten eine stärkere Rückdehnung der Beschichtung zur Folge haben (BOLD & FLEISCHER 2018, S. 573 f.). MANEV ET AL. (1995, S. 134) beobachteten beim Verdichten von Graphit-Anoden in einer Presse ebenso, dass mit zunehmender Pressdauer die Porosität sank.

Weiter berichten BOLD & FLEISCHER (2018, S. 573 f.), dass durch Erhöhung der Walzentemperaturen die zur Verdichtung notwendige Linienlast abgesenkt werden konnte. Dies wurde mit der erleichterten Partikelumordnung aufgrund der erhöhten Fließfähigkeit des Binders bei erhöhten Temperaturen erklärt, was später von MEYER ET AL. (2020, S. 5 f.) nachgewiesen wurde.

Die Walzentemperatur soll zudem einen Einfluss auf die Faltenbildung haben (BOLD & FLEISCHER 2018, S. 573 f., KWADE ET AL. 2018, S. 293). BOLD & FLEISCHER beobachteten, dass die Verwerfungen im beschichteten Bereich ab 50 °C Walzentemperatur länger wurden. Dies wurde damit erklärt, dass die verbesserte Fließfähigkeit des Binders zu einer stärkeren Längsdehnung führt. Laut CAO ET AL. (2015, S. 485) wird die Dehnung der Elektrode in MR beim Warmkalandrieren hingegen auf unter 0,5 % reduziert. Beim Kalandrieren bei RT soll sie etwa 0,75 % betragen. MICHAELIS ET AL. (2018, S. 48) nennen die reduzierte Linienlast als Grund für die Minimierung der Elektrodenverformung. Diesen Effekt konnten sich SCHREINER ET AL. (2021, S. 9 f.) zunutze machen, um die Faltenbildung an einer überlithiierten, manganreichen NMC-Kathode zu reduzieren.

BOLD & FLEISCHER (2018, S. 573 f.) berichten, dass die Ausprägung der Verwerfungen mit steigendem Bahnzug reduziert wurde, was mit der Streckung des Materials erklärt wurde. Zudem nahmen mit steigenden Verdichtungsraten die Verwerfungen zu und das Material wurde steifer (BOLD & FLEISCHER 2018, S. 573 f.). MAYER ET AL. (2021) untersuchten die Verformung von Elektroden in Form von Verwerfungen und Dehnungen an NMC-811-Kathoden und einseitig beschichteten Hartkohlenstoff-Elektroden längs und quer zur MR mit dem in Abschnitt 3.1 vorgestellten Verfahren. Anders als BOLD & FLEISCHER (2018) konnten sie aber keinen Einfluss des Bahnzugs feststellen. Dieser wurde in zwei Schritten zwischen 1 N und 50 N variiert, wobei die Elektrode 215 mm breit war. Hingegen wurde ein Einfluss der Verdichtungsrate festgestellt. Die Dehnung und Ausprägung der Verwerfungen nahmen mit steigender Verdichtungsrate zu. Der

Anstieg war in MR deutlich ausgeprägter und betrug etwa das Vierfache des Anstiegs in Querrichtung.

#### **3.4 Auswirkung des Kalandrierens auf nachfolgende Prozesse**

Wie in Abschnitt 2.2.3 beschrieben, schließt das Kalandrieren zwar die Elektrodenherstellung ab, ihm folgen aber zahlreiche weitere Prozessschritte. Obwohl es sich bei den Elektroden um ein filigranes Zwischenprodukt handelt, sind sie, beginnend mit dem wiederholten Ab- und Aufwickeln der Rolle, unterschiedlichsten Beanspruchungen ausgesetzt (KEPPELER ET AL. 2020, S. 2). Im Folgenden wird entlang der Prozesskette beschrieben, wie sich die zuvor genannten Elektrodeneigenschaften in Form von Weiterverarbeitungseigenschaften auf die nachfolgenden Prozesse auswirken.

Bei der Bahnführung doppelseitig beschichteter Elektroden entstehen aufgrund des Höhenunterschieds zwischen den beschichteten und den unbeschichteten Bereichen ungleichmäßige Bahnspannungen, welche die Elektrode belasten und Längsfalten am Ableiter fördern (WEINMANN ET AL. 2018, S. 523). Diese können aufgrund von Verwerfungen in der Elektrode verstärkt werden und einer Weiterverarbeitung im Wege stehen (BOLD & FLEISCHER 2018, S. 574).

Die durch *heavy edges* begünstigten *wrinkles* (vgl. Abschnitt 3.2.3) können ein Abschälen der Beschichtung verursachen und ein präzises Schneiden der Elektroden in der Zellmontage verhindern. Intermittierende Beschichtungen schaffen Abhilfe, da die betroffenen Stellen entfernt werden. (SCHMITT ET AL. 2015, S. 928)

Die Grenzfläche zwischen der Beschichtung und der Substratfolie wird während des Wickelns aufgrund der kleinen Biegeradien stark belastet, was ebenso zu Delaminationen führen kann (SCHILLING ET AL. 2016, S. 1503, SCHMITT 2015). Schließlich sind beim Wickeln Folienrisse möglich, wenn die Elektrode nicht flexibel genug ist (YAMAMOTO & MORI 2009, S. 176). So hat das Kalandrieren einen großen Einfluss auf die Ausbeute des Wickelprozesses (TAGAWA & BRODD 2009, S. 185).

Auch der Alternativprozess Einzelblattstapeln wird vom Kalandrieren beeinflusst. BOLD & FLEISCHER (2018, S. 574) führen an, dass die induzierte Verformung und Versteifung der Elektroden die Handhabung erschwert. Nach dem Vereinzeln bilden sich die Verwerfungen in Form einer Ausbeulung nur noch in eine Richtung aus (MAYER ET AL. 2021, S. 13 f.). Diese erschweren die Bahnzugregelung vor der Vereinzlung und können Verletzungen der Maßhaltigkeit der Elektrode herbeiführen (WEINMANN ET AL. 2018, S. 523). Die Verformungen behindern

aufgrund ihres weichen Gehäuses v. a. den Aufbau von Flachzellen (RAUSCHER 2014, S. 103).

Die *wrinkles* haben ebenso eine unebene Schweißfläche beim Kontaktieren zur Folge, was den Ultraschall-Schweißprozess beeinträchtigen kann (BOLD & FLEISCHER 2018, S. 574).

Die meisten wissenschaftlichen Arbeiten beschäftigen sich mit den Interaktionen zwischen dem Kalandrieren und der Befüllung bzw. Benetzung von Elektroden, weil dabei die Zelleigenschaften direkt beeinflusst werden. Eine geringere Porosität verschlechtert die Benetzbarkeit der Elektroden mit der Elektrolytflüssigkeit, was zu einer schlechteren Ionenleitfähigkeit führt (CHU ET AL. 2012, S. 205, DU PASQUIER ET AL. 2001, S. 760). Der Trend zu höheren volumetrischen Energiedichten führt zu dichteren Porenstrukturen. Hohe Verdichtungsraten führen zu einer Verformung der Oberflächenpartikel und damit zur Versiegelung der Oberfläche (HASELRIEDER ET AL. 2013, S. 65).

LEE & JEON (2014) untersuchten in einer numerischen Strömungssimulation die Elektrolytaufnahme unterschiedlich stark kalandrierter Elektroden. Die Simulation zeigte einen eindeutigen Einfluss der Verdichtungsrate auf die Benetzbarkeit. Dabei war die Partikelform ausschlaggebend, wobei angenommen wurde, dass sich Anodenpartikel plastisch verformen und Kathodenpartikel ihre runde Form beibehalten.

SHENG ET AL. (2014) kalandrierten Grafit-Anoden auf vier unterschiedliche Porositätsstufen und bewerteten gravimetrisch die Elektrolytaufnahme. Es konnte gezeigt werden, dass ein moderates Kalandrieren bis zu einer Porosität von 45 % die Benetzbarkeit verbessert, was auf die Ausrichtung der Partikel zurückgeführt wurde. Über dieses Optimum der Porosität hinaus wurde aufgrund der Verringerung der Porosität und des durchschnittlichen Porendurchmessers eine Abnahme der Benetzbarkeit verzeichnet.

DAVOODABADI ET AL. (2019) untersuchten die Benetzungsgeschwindigkeit in Abhängigkeit von der Elektrodenporosität an NMC-532-Kathoden und Grafit-Anoden. Die Ausgangsporosität betrug für alle Elektroden ca. 55 %. Die Kathoden wurden auf 42 % und 30 % und die Anoden auf 44 % Porosität kalandriert. Es wurde beobachtet, dass alle untersuchten Proben über die Dicke sofort und gleichmäßig benetzt wurden. Dies wurde dadurch erklärt, dass die Benetzung der Elektrode isotrop ist und die Dicke aller Elektroden mit maximal 120 µm deutlich geringer war als die Länge und Breite. In der Ebene zeigte sich ein anderes Bild. Die

Benetzungsgeschwindigkeit nahm für alle untersuchten Elektroden mit sinkender Porosität ab.

Die schlechtere Benetzbarkeit mit geringerer Porosität wurde mittels Neutronenradiografie-Aufnahmen von HABEDANK ET AL. (2019, S. 2774 ff.) an NMC-111-Kathoden und Grafit-Anoden mit jeweils 30 % und 40 % Porosität eindeutig nachgewiesen. BRÉGER & PERRONCEL (2014, S. 3) schlussfolgern, dass die Veränderung der Porenstruktur durch Kalandrieren eine Anpassung der Befüllparameter mit sich bringt.

Schließlich können Abweichungen in der Schichtdicke nicht nur zu einer Verringerung des verfügbaren Zellvolumens führen (SCHMITT ET AL. 2014, S. 58), sondern auch dazu, dass sich der Zellstapel oder -wickel nicht in das Gehäuse einführen lässt (TAGAWA & BRODD 2009, S. 185, ZHANG & RAMADASS 2013, S. 335).

### **3.5 Zusammenfassung und Handlungsbedarf**

Kalandrieren ist ein komplexer Prozess (BRÉGER & PERRONCEL 2014, S. 1), eingebettet in eine komplexe Prozesskette (WESTERMEIER ET AL. 2014, S. 13). Die Komplexität geht auf die hohe Anzahl an UWB zurück, die in den Ausführungen zum Stand der Forschung zum Ausdruck gebracht wurden. Der Stand der Forschung wird im Folgenden mit Bezug auf die Zielsetzung dieser Arbeit zusammengefasst, um daraus den Handlungsbedarf abzuleiten.

Die vorgestellten Forschungsergebnisse zu Qualitätsmerkmalen von Elektroden wurden hauptsächlich in elektrochemischen Studien zur Qualifizierung neuer Materialien erarbeitet (vgl. Abschnitt 3.2.1 und 3.2.2). Dabei wurden in erster Linie die Beschichtungs- und Grenzflächenmechanik im Zuge des Kalandrierens untersucht. Dies ist darauf zurückzuführen, dass der Haftfestigkeit und Elastizität der Beschichtung eine wichtige Rolle bei der Alterung der Zelle zugeschrieben wird (HASELRIEDER 2016, S. 88, 95). Der Einfluss des Kalandrierens auf nachfolgende Prozesse wurde dagegen nur spärlich beschrieben. Der Fokus lag zumeist auf der Elektrolytbenetzung, da diese wiederum die Zelleigenschaften beeinflusst.

Die Weiterverarbeitungseigenschaften von kalandrierten Elektroden wurden in der Literatur folglich nicht umfassend untersucht. MEYER (2019, S. 124) beschränkte diese bspw. auf ihre Haftfestigkeit. Vereinzelt wurden in der Literatur weitere Qualitätsmerkmale erwähnt, jedoch ohne detailliert auf diese einzugehen. BOLD & FLEISCHER (2018) lieferten eine erste Sammlung von Fehlerbildern, aber lediglich

MAYER ET AL. (2021) untersuchten den Einfluss des Kalandrierens auf die Vereinzelung von Elektroden.

Zur Feststellung der mechanischen Eigenschaften und v. a. der Haftfestigkeit von Elektroden wurden zahlreiche Prüf- und Messverfahren entwickelt und eingesetzt. Allein über diese Verfahren lassen sich die Weiterverarbeitungseigenschaften jedoch nur begrenzt beschreiben, da sie vorwiegend auf die Untersuchung der Struktur der Beschichtung ausgerichtet wurden. Der Stand der Forschung liefert kaum Verfahren zur Beschreibung der Formabweichungen an Elektroden. JEONG & LEE (2014, S. 528 ff.) entwickelten hierzu zwar eine Methode, ohne diese jedoch ausführlich und nachvollziehbar zu beschreiben.<sup>19</sup> Lediglich MAYER ET AL. (2021) stellten ein Verfahren zur Beschreibung der Formabweichungen detailliert vor.

Folglich wurden experimentelle Untersuchungen hauptsächlich zur Beschichtungs- und Grenzflächenmechanik aufgrund ihrer Relevanz und der verfügbaren Messverfahren durchgeführt. Die Ergebnisse sind jedoch teils widersprüchlich. ANTARTIS ET AL. (2015, S. 9 ff.) beobachteten z.B. an Anoden (inkl. Substratfolie) eine Abnahme des E-Moduls bei höheren Verdichtungsraten, HASELRIEDER (2016, S. 166) dagegen eine kontinuierliche Zunahme. Weiter verzeichneten TRAN ET AL. (2012, S. 279 f.) für alle untersuchten Parameter an Kathoden eine geringere Standardabweichung mit steigender Verdichtungsrate, hingegen stieg diese bei ZHENG ET AL. (2012A, S. 54) an. Der Grund für diese Diskrepanz könnte in den unterschiedlichen Verarbeitungs- und Messverfahren liegen. Aus diesem Grund untersuchte HASELRIEDER (2016) Elektroden, die in Technikumsanlagen gefertigt wurden, und entwickelte Messmethoden mit beschädigungsfreier Probenpräparation, um die Übertragbarkeit der Ergebnisse zu steigern. Seine Experimente umfassten zu Analysezwecken einseitig beschichtete Elektroden mit Schwerpunkt auf Anoden. Industriestandard ist jedoch die doppelseitige Beschichtung von Elektroden (TAGAWA & BRODD 2009, S. 185).

Die Untersuchungen zur Grenzflächenmechanik zeigen, dass das Kalandrieren die Haftfestigkeit bei Kathoden und Anoden bei moderater Verdichtungsrate zunächst absenkt. Höhere Verdichtungsraten führen zu einem Anstieg der Haftfestigkeit bei Kathoden. Bei Anoden wird i.Allg. keine Verbesserung verzeichnet. Allein BAUNACH ET AL. (2016, S. 467 f.) beobachteten in ihren Untersuchungen einen Anstieg der Haftfestigkeit bei Graphit-Anoden im Zusammenhang mit hohen Verdichtungsraten.

---

<sup>19</sup> Fragen an JEONG & LEE (2014) blieben unbeantwortet (E-Mail vom 17.02.2020).

I.Allg. wurde zur Einstellung von Elektrodeneigenschaften der Einfluss der Verdichtungsrate untersucht. MEYER (2019) entwickelte darüber hinaus ein analytisches Prozessmodell des Kalandrierens von Kathoden zur Berechnung der Porosität unter Berücksichtigung der Linienlast, Massenbeladung, Walzentemperatur und der Zusammensetzung der Beschichtung. Der Einfluss dieser Parameter auf das Kalandrieren von Anoden wurde aber nicht betrachtet. MEYER ET AL. (2020, S. 9) weisen darauf hin, dass das Prozessmodell sowohl um die Bahngeschwindigkeit als auch um Maschinenparameter, wie bspw. den Walzendurchmesser, erweitert werden müsse. BOLD & FLEISCHER (2018) beschreiben nur qualitativ den Einfluss von Bahngeschwindigkeit, Walzentemperatur und Verdichtungsrate auf die untersuchten Fehlerbilder. Versuchsdaten werden nicht vorgestellt. MAYER ET AL. (2021) untersuchten den Einfluss der Verdichtungsrate und Bahnspannung, empfehlen aber umfangreichere Versuche unter Einbeziehung weiterer Einflussgrößen.

Aus dem Stand der Technik und Forschung und den zuvor genannten Defiziten leitet sich der Handlungsbedarf ab: Zunächst müssen die Fehler eindeutig beschrieben werden. Dazu gehören eine Definition und Klassifikation. Die in der Literatur beschriebenen Messverfahren sind zu bewerten, ggf. zu erweitern und in ein ganzheitliches Messvorgehen zu integrieren. In einer experimentellen Analyse soll der Einfluss des Kalandrierprozesses auf die Fehler unter Einbezug von Prozessparametern und Anlagenmerkmalen (v. a. Walzentemperatur und -durchmesser) untersucht werden. Ein besonderes Augenmerk liegt dabei auf der Betrachtung von doppelseitig beschichteten Elektroden, der Haftfestigkeit von Anoden und der Untersuchung von Formabweichungen.

Der Handlungsbedarf lässt sich also folgendermaßen zusammenfassen:

- Definition, Beschreibung und Klassifikation der Fehler,
- Auswahl und Entwicklung von Messverfahren zur Beschreibung der Weiterverarbeitungseigenschaften und
- Untersuchung des Einflusses des Kalandrierens auf Weiterverarbeitungseigenschaften.



## 4 Fehlerbilder beim Kalandrieren von Lithium-Ionen-Elektroden

Kapitel 4 definiert die identifizierten Fehler und stellt deren Klassifikation vor. Zunächst wird das methodische Vorgehen zur Erarbeitung der Ergebnisse erläutert.

### 4.1 Methodisches Vorgehen

In Anlehnung an WESTERMEIER (2015) wird die Erarbeitung der Wissensbasis in die Schritte Wissensakquisition und -interpretation unterteilt. Dem geht eine Definition des Begriffs *Fehlerbild* voraus, um das Untersuchungsobjekt zu bestimmen.

#### 4.1.1 Definition eines Fehlerbildes

Das übergeordnete Ziel der Arbeit ist die Erhöhung der volumetrischen Energiedichte von LIB. Nach dem Stand der Technik und Forschung kann aber eine Erhöhung der Elektrodendichte zu fehlerhaften Elektroden führen. Um einen tatsächlichen Fehler festzustellen, müssen zunächst die nicht ausreichend erfüllten Qualitätsmerkmale beschrieben werden. Dafür ist eine Beschreibung der geforderten Beschaffenheit einer Elektrode notwendig (vgl. Begriffsdefinition *Fehler* in Abschnitt 2.1.2).

Die Qualitätsmerkmale beziehen sich i. d. R. auf das Fertigprodukt ‚Zelle‘ mit Fokus auf Funktionseigenschaften wie Kapazität, Energie- und Leistungsdichte (engl. *performance*) (WESTERMEIER ET AL. 2013, S. 6, WESTERMEIER 2015, S. 118). REINHART ET AL. (2014, S. 372) entwickelten ein Produktmodell, um die sog. *top-level* Qualitätsmerkmale der Zelle mit den *low-level* ZPM zu verknüpfen, welche die Schnittstelle zu den Prozessparametern bilden. Die Elektrode wird hierbei in Beschichtung und Substratfolie aufgeteilt. Ein Bsp. für die Produktstruktur einer Anodenbeschichtung geben WESTERMEIER ET AL. (2013, S. 6).

Die ZPM beeinflussen jedoch nicht nur die Qualität des Fertigprodukts, sondern bestimmen auch die Weiterverarbeitungseigenschaften. Hierbei wird häufig die Haftfestigkeit von Elektroden genannt (vgl. Kapitel 3). Zudem ist eine hohe Reißfestigkeit der Elektrode ohne irreversible plastische Dehnung erwünscht (HASELRIEDER 2016, S. 166, ZHENG ET AL. 2012A, S. 55). Des Weiteren fordert der Standard IEEE 1725:2011 Maßnahmen zur Verhinderung von Faltenbildung, Rissbildung und Verformung der Elektroden.

Jedoch sind quantitative Informationen zu den Qualitätsmerkmalen weder in der Literatur noch in den einschlägigen Standards verfügbar. Die Spezifikation der ZPM

ist bisher Produktions-Know-how und bleibt dem Zellhersteller überlassen. Es ist also nicht bekannt, ab welchem Merkmalswert ein Fehler vorliegt und die Elektrode Ausschuss ist (MAYER ET AL. 2021, S. 15).

Zur Beschreibung von Fehlern wird in der Literatur z.T. der Begriff *Fehlerbild* gewählt, auch in Bezug auf das Kalandrieren von Lithium-Ionen-Elektroden (BOLD & FLEISCHER 2018). Eine Begriffserklärung liefert die Literatur jedoch nicht. In der ZfP werden Unregelmäßigkeiten in einem Prüfobjekt als *Ungänzen* bezeichnet (STEEB 1997, S. 224). Im Kontext der Fertigung von LIB untersuchte HUBER (2017) Verfahren zur Klassifikation von Ungänzen bei der optischen Prüfung von Separatoren. Nach STEEB (1997, S. 224) entscheidet eine Prüfvorschrift darüber, „ob eine Ungänze tatsächlich ein Fehler ist [...]“. Ein wesentlicher Faktor bei dieser Entscheidung ist das geometrische Ausmaß der Unregelmäßigkeit (HUBER 2017, S. 16). Eine Ungänze ist also nicht zwingend ein Fehler, der zu Ausschuss führt.

In dieser Arbeit wird der Begriff *Ungänze* nicht genutzt, da er eine Unvollständigkeit (z.B. Lunker) impliziert und damit suggeriert, dass nur die Fehler berücksichtigt werden, die eine Unvollständigkeit beschreiben. Der Begriff *Fehlerbild* kann jedoch weiter gefasst werden. Folglich wird ausgehend von dem Zusammenhang zwischen den Begriffen *Ungänze* und *Fehler* folgende Definition für ein *Fehlerbild* gewählt:

- Ein Fehlerbild beschreibt eine Abweichung von der erwarteten Beschaffenheit eines Zwischenprodukts, ohne dass eine geforderte Beschaffenheit bekannt ist oder verletzt wird.
- Ein Fehlerbild kann sich aus einer Vielzahl von ZPM zusammensetzen.
- Das Vorliegen eines Fehlerbildes führt nicht zwingend zu Ausschuss. Je nach Ausprägung des Fehlerbildes ist dies aber möglich.

Im Rahmen dieser Arbeit werden ausschließlich Fehlerbilder berücksichtigt, die während des Kalandrierens auftreten, durch das Kalandrieren verstärkt werden oder ihren Ursprung im Kalandrieren haben. Sie können sich sowohl auf die *top-level* Qualitätsmerkmale als auch auf die Verarbeitung in den nachfolgenden Prozessen auswirken. Der Fokus liegt auf der Weiterverarbeitbarkeit, die ab Verlassen des Walzspalts beginnt.

### 4.1.2 Wissensakquisition und -interpretation

Nachdem der Begriff *Fehlerbild* im Rahmen dieser Arbeit definiert wurde, soll das methodische Vorgehen zur Sammlung der Fehlerbilder erläutert werden. Nach WESTERMEIER (2015, S. 42) wird „Wissen [...] häufig mit Hilfe von

Literaturrecherchen oder Experten[befragung] akquiriert“. In der vorliegenden Arbeit wurde die **Wissensakquisition** um die im Technikum gesammelte Praxiserfahrung erweitert. Sie ermöglichte die aus der Literaturrecherche und der Expertenbefragung gewonnenen Fehlerbilder zu bestätigen und weitere hinzuzufügen. Die Ergebnisse der verschiedenen Quellen wurden verglichen und zu einzelnen Fehlerbildern aggregiert.

Um Wissen aus der **Literatur** zu erwerben, wurde eine systematische Recherche durchgeführt. Die Ergebnisse sind in Kapitel 3 zusammengefasst.

Wie in Abschnitt 3.5 zusammengefasst, sind Fehlerbilder beim Kalandrieren von Elektroden und deren Einfluss auf die Folgeprozesse in der Literatur spärlich beschrieben. Daher wurde als weitere Methode zum Wissenserwerb die **Expertenbefragung** gewählt. HETTESHEIMER ET AL. (2013, S. 1-2) befragen ebenso Experten<sup>20</sup>, da „detaillierte Informationen zu den produktionstechnischen Herausforderungen bei den einzelnen Fertigungsschritten derzeit noch nicht umfassend in der Literatur ausgeführt sind“. Bezogen auf die Kautschukindustrie fügen RÖTHEMEYER & SOMMER (2013, S. 647-651) hinzu, dass der Prozess aufgrund der hohen Investitionskosten für Kalenderlinien selten in öffentlich geförderten Forschungs- und Entwicklungsprojekten untersucht wird, was z.T. auf das Kalandrieren von Elektroden übertragen werden kann.

Für jede Befragung musste zunächst das Ziel bzw. die Fragestellung festgelegt werden. Ziel war es, die Fehlerbilder beim Kalandrieren zu ermitteln, die aus produktionstechnischer Sicht einen Einfluss auf die Weiterverarbeitung der Elektroden haben. Dazu wurde ein halbstrukturierter Fragebogen entwickelt, der sowohl die Ergebnisse der Literaturrecherche bestätigen als auch neue Erkenntnisse liefern sollte. Die einzelnen Fragen sind in Anhang A4 wiedergegeben. Aus organisatorischen Gründen wurde eine schriftliche Befragung gewählt. Dieses Format gab den Experten auch Zeit, sich bei Bedarf innerhalb ihrer Organisation mit weiteren Experten abzustimmen.<sup>21</sup>

Bei der Auswahl der Experten lag der Schwerpunkt v. a. auf Zellherstellern, die aus der industriellen Praxis berichten können. Da ihre Anzahl begrenzt ist, wurden Experten von Forschungsinstituten, Anlagenherstellern und aus der Automobilbranche hinzugezogen. Die Institute mussten sich mit der

---

<sup>20</sup> Aus Gründen der Lesbarkeit wird im Text verallgemeinernd das generische Maskulinum verwendet. Diese Formulierungen umfassen gleichermaßen Personen aller Geschlechter; alle sind damit selbstverständlich gleichberechtigt angesprochen.

<sup>21</sup> Zur Theorie der Datenerhebung, die bei der Erstellung des Fragebogens berücksichtigt wurde, sei auf einschlägige Literatur verwiesen (BLEHER 2014, BOGNER 2020, MAYER 2013).

Batteriezellenforschung beschäftigen und vorzugsweise ein Technikum zur Zellproduktion betreiben. Bei den Anlagenherstellern wurden primär Hersteller von Kalandrierlinien kontaktiert. Geografisch wurden die Anfragen auf Europa beschränkt, wobei ein Experte in Europa Vertreter für japanische Unternehmen war. Insgesamt wurden 42 Experten angeschrieben, von denen acht bzw. neun<sup>22</sup> ausgefüllte Fragebögen zurückgeschickt haben. Die Antwortrate betrug somit ca. 21,43 %.

Die **Praxiserfahrung** wurde an der *iwb*-Forschungsproduktionslinie (REINHART ET AL. 2013) gesammelt. Durch theoretische Überlegungen zu den Ursachen der Fehlerbilder, die Auswertung der Literatur und der Expertenbefragung wurden Prozessparameter abgeleitet, die das Auftreten der Fehlerbilder begünstigen. So konnten diese dokumentiert werden. Die untersuchten Elektroden waren hauptsächlich NMC-111-Kathoden und Graphit-Anoden.<sup>23</sup>

Nachdem eine Wissensbasis für Fehlerbilder beim Kalandrieren geschaffen wurde (vgl. Abschnitt 4.2.1), erfolgte im zweiten Schritt die **Wissensinterpretation**. Dabei sollte entsprechend der Zielsetzung dieser Arbeit ermittelt werden, ob die Fehlerbilder die nachfolgenden Prozessschritte beeinflussen. Um deren Auswirkungen aufzuzeigen, wurde ein matrizenbasierter Ansatz in Kombination mit einer zweiten Expertenbefragung gewählt.

Die Design Structure Matrix (DSM, dt. Einflussmatrix, LINDEMANN 2009), ursprünglich entwickelt von STEWARD (1981), ermöglicht voneinander abhängige Variablen eines Systems miteinander in Verbindung zu setzen. Ihr Aufbau ist quadratisch mit symmetrischen Zeilen- und Spalteninhalten und zeigt die Beziehung zwischen gleichartigen Elementen auf (BROWNING 2001, S. 293). Um Elemente unterschiedlicher Domänen zuzuordnen, wurde die DSM um die Domain Mapping Matrix (DMM, dt. Verknüpfungsmatrix, LINDEMANN 2009) erweitert (DANILOVIC & BROWNING 2007). Entsprechend sind der Inhalt und ggf. die Anzahl der Zeilen- und Spalten unterschiedlich. In diesem Fall nimmt die Matrix eine rechteckige Gestalt an. Für beide Matrizen wird die Abhängigkeit über einen binären Eintrag angegeben. Numerische DSM und DMM können die Einflussstärke mit Hilfe von Zahlen darstellen (BROWNING 2001, S. 299).

Um die Auswirkungen der Fehlerbilder auf die nachfolgenden Prozesse zu ermitteln, wurde eine DMM ausgewählt. Nach LINDEMANN (2009, S. 203) eignet sich diese, um Ursachen, Fehler und Wirkungen in Beziehung zu setzen. Eine Literaturübersicht

---

<sup>22</sup> Eine Datenerhebung erfolgte telefonisch und wurde transkribiert.

<sup>23</sup> Die Bestandteile der Elektroden sowie der zu deren Verdichtung eingesetzte Kalandrierer werden in Anhang A11 beschrieben.

von BROWNING (2016, S. 12) zeigt darüber hinaus, dass Verknüpfungsmatrizen eine bewährte Methode sind, um Produkt-Prozess-Beziehungen aufzuzeigen. Um die Intensität der Beziehung zum Ausdruck zu bringen, empfiehlt sich anstelle der binären Bewertung eine schrittweise Unterteilung in Punkten (VESTER 2000, S. 197). Die Eintragungen in den Zeilen der DMM enthalten die Fehlerbilder; die Spalten geben Auskunft über deren Auswirkung auf den jeweiligen Prozess. Die Richtung der Abhängigkeit zwischen den Elementen folgt der Regel *Zeile beeinflusst Spalte* (LINDEMANN 2009, S. 75).

Die zweite Expertenbefragung fand auf Basis der DMM statt, um den Einfluss bzw. die Einflussstärke der Fehlerbilder auf die nachfolgenden Prozesse zu bestimmen. Die herangezogenen Experten waren wissenschaftliche Mitarbeitende des *iwb*, die jeweils für einen Fertigungsprozess verantwortlich waren und daher ausgewiesene Praxiserfahrung besaßen. Insgesamt waren fünf Experten beteiligt, wobei ein Experte teils mehrere Prozesse betreute. Die Interviews wurden alle persönlich durchgeführt.

Als Grundlage für die Expertenbefragung diente ein Fragebogen. Dieser entsprach der DMM, wobei die Spalteneinträge auf den entsprechenden Prozess reduziert wurden. Hinzu kam eine Spalte zur Begründung des Einflusses der Fehlerbilder. Die nachfolgenden Prozesse wurden auf Basis der von WESTERMEIER (2015, S. 113) vorgeschlagenen Prozesskette zur Herstellung von LIB ausgewählt, an der jedoch folgende Anpassungen vorgenommen wurden. Da die Beschreibung der Auswirkungen der Fehlerbilder nicht auf ein Verfahren beschränkt sein sollte, wurde der Prozessschritt *Laserstrahlschneiden lösungsneutral Konfektionieren* genannt. Außerdem wurden Annahmen getroffen und Vereinfachungen vorgenommen. Die Prozesse *Fixieren, Isolieren und Einführen, Versiegeln, Laserstrahlschweißen* und *Versiegeln von drei Seiten* wurden als *Verpacken* zusammengefasst, da die Einzelschritte größtenteils gleichartig sind.

Für die Bestimmung der Einflussstärke wurde die folgende dreistufige Bewertungsskala ausgearbeitet: Wenn durch das Fehlerbild die Elektrode für den Prozess unbrauchbar ist, wird davon ausgegangen, dass die Elektrode Ausschuss ist. Für diesen Fall wird dem Fehlerbild eine 2 zugeordnet. Wenn das Fehlerbild den Prozess beeinflussen und während oder nach dem Prozessschritt zu Ausschuss führen kann, wird eine 1 vergeben. Ein für die Weiterverarbeitungseigenschaften in den Folgeprozessen unbedenkliches Fehlerbild wird mit einer 0 bewertet. Die Bewertungsskala gibt keine Auskunft über den Einfluss auf die Qualität der Zelle, d. h. ein Fehlerbild kann keinen Einfluss auf die weitere Verarbeitung haben, aber die Qualität der Zelle beeinflussen und umgekehrt. Durch das Bilden von Aktivsummen,

was einer Addition der Zeileneinträge entspricht (LINDEMANN 2009, S. 75), werden Fehlerbilder, die einen Einfluss auf die Prozesskette haben (Aktivsumme größer 0), identifiziert. Die Passivsumme, d. h. die Spaltensumme, zeigt hingegen, wie stark ein Prozess von den Fehlerbildern beeinflusst wird.

Die DMM, die die Ergebnisse aus den Fragebögen zusammenfasst, ist in Tabelle 4-1 dargestellt. Der Einfluss der Fehlerbilder auf die Folgeprozesse wird in Abschnitt 4.2.2 beschrieben. Der Fragebogen für das Stapeln ist als Bsp. in Anhang A5 zu finden.

### 4.2 Fehlerbeschreibung und -klassifikation

Die vorliegende Arbeit zeigt Ergebnisse der angewandten Produktionsforschung. Die Ergebnisse sollen dementsprechend auch Anwendern zugänglich sein. Bei den Anwendern handelt es sich hauptsächlich, aber nicht ausschließlich, um Hersteller von LIB. Die Beschreibung und Klassifikation der Fehlerbilder sollen die Fehlersuche erleichtern und Problemlösungsstrategien anbieten.

Für die Fehlerbeschreibung wurde eine einheitliche Struktur in Anlehnung an das Nachschlagewerk *Roll and web defect terminology* von SMITH (2007) gewählt, das Fehlerbilder bei der Rollen- und Bahnführung terminologisch einordnet. Das Fehlerbild wird zuerst anhand seines charakteristischen Erscheinungsbildes (z. B. Dimension, Form) beschrieben (engl. *defect description*). Anschließend wird die Ursache des Fehlerbildes anhand von physikalischen Überlegungen, unterstützt durch Literaturnachweise, erläutert. Schließlich werden theoretische Überlegungen zur Fehlervermeidung dargelegt. Die Fehlerbilder werden jeweils in einer Abbildung in ihrer charakteristischen Ausprägung dargestellt und eine beigefügte Skizze grenzt den Bereich der Elektrode ein, in dem sie auftreten. Für die Weiterverarbeitung irrelevante Fehlerbilder werden nicht dargestellt (vgl. Tabelle 4-1). Für Fehlerbilder, die die *Performance* der LIB beeinflussen, sei auf Abschnitt 3.2 verwiesen.

Fehlerklassifikation und -beschreibung folgen derselben Logik. Die Kriterien zur Klassifizierung der Fehlerbilder sind, neben ihrer Ursache, die Wahrnehmung des Betrachters bzw. Anwenders in Bezug auf das Fehlerbild. Dementsprechend werden bspw. Verformungen, die das Ergebnis von Eigenspannungen sind, nicht in Bezug auf die zugrundeliegenden mechanischen Eigenschaften klassifiziert, sondern in Bezug auf die resultierenden Formabweichungen. Letztere beeinflussen die weitere Verarbeitung und sind für den Beobachter sichtbar.

### 4.2.1 Beschreibung und Klassifikation der Fehlerbilder

Im Folgenden wird die Klassifikation der Fehlerbilder vorgestellt, die in GÜNTHER ET AL. (2020) publiziert wurde. Anschließend werden die Fehlerbilder selbst beschrieben. Die Fehlerbilder wurden in drei Klassen eingeteilt: *geometrisch*, *strukturbedingt* und *mechanisch*. Diese sind in Abbildung 4-1 zu sehen.

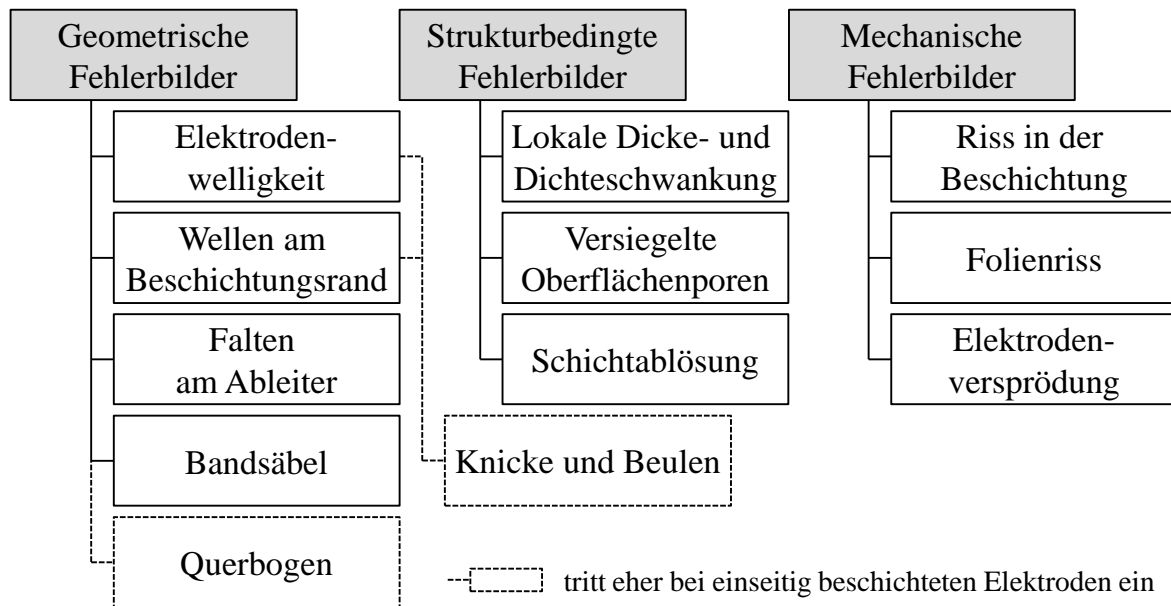


Abbildung 4-1: Klassifikation der Fehlerbilder beim Kalandrieren

**Geometrische Fehlerbilder** sind durch Formabweichungen der Elektrode gekennzeichnet. Diese können Abweichungen von der Ebenheit oder Abweichungen von der Geradheit sein. Plastische Verformungen und Eigenspannungen infolge des Kalandrierens liegen ihnen zugrunde.

**Strukturbedingte Fehlerbilder** basieren auf einer in der Literatur üblichen Einteilung für Struktureigenschaften (BOCKHOLT ET AL. 2013, 2016, HASELRIEDER ET AL. 2013). Strukturbedingte Fehlerbilder beeinflussen die elektrischen und elektrochemischen Eigenschaften, werden in dieser Arbeit aber aufgrund ihres Einflusses auf nachfolgende Prozesse aufgeführt. Sie haben ihren Ursprung meistens in der Porenstruktur der Elektrode.

**Mechanische Fehlerbilder** sind durch das Verhalten der Elektrode infolge plastischer Verformung gekennzeichnet. E-Modul sowie Reißfestigkeit und -dehnung sind relevante Größen. Die mechanischen Fehlerbilder unterscheiden sich von den geometrischen dadurch, dass die mechanischen Eigenschaften selbst und nicht die daraus resultierende Formabweichung beschrieben werden.

### Geometrische Fehlerbilder

Abbildung 4-2 fasst die geometrischen Fehlerbilder zusammen. Diese werden im Folgenden beschrieben.

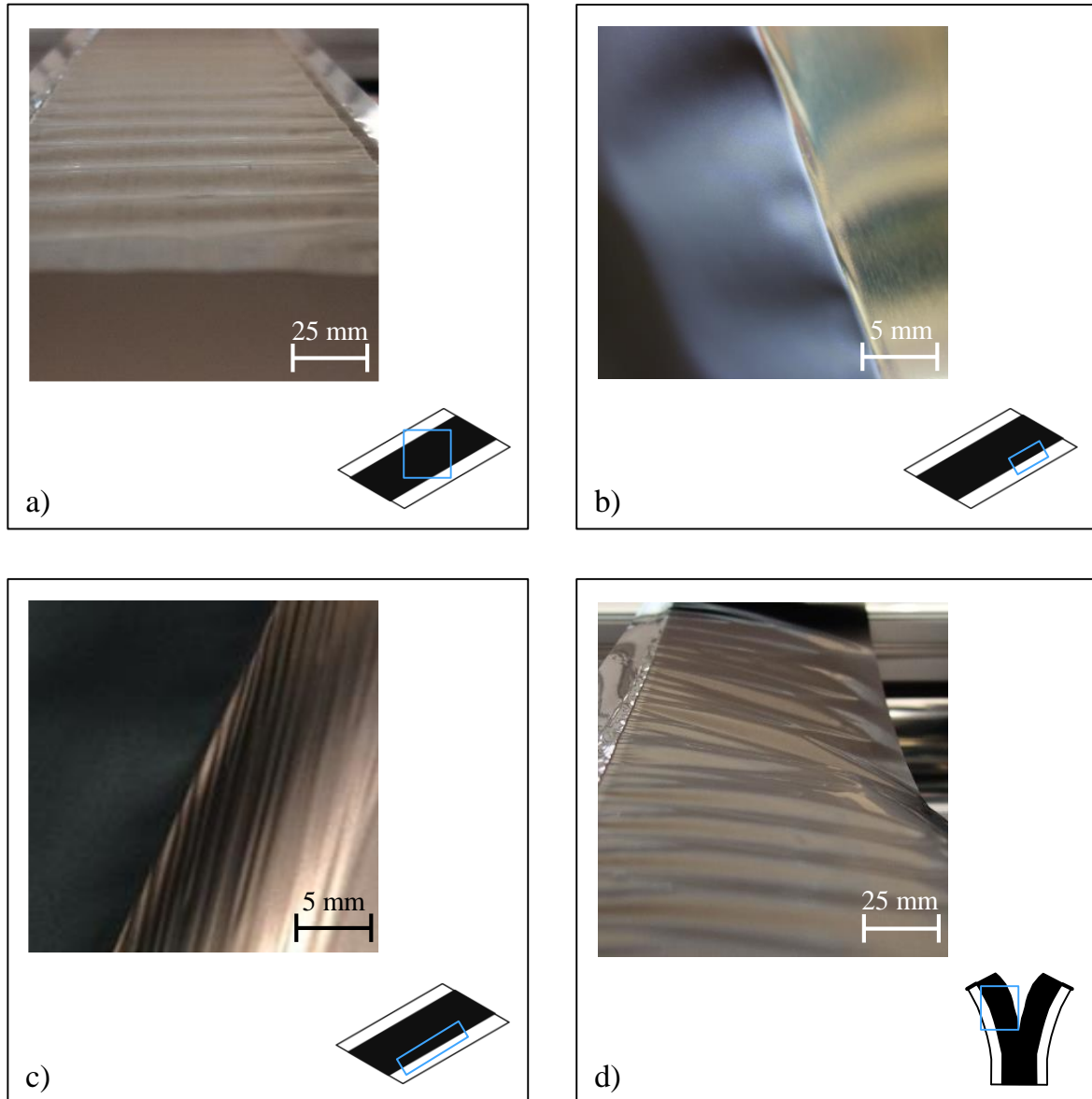


Abbildung 4-2: Geometrische Fehlerbilder – a) Elektrodenwelligkeit, b) Wellen am Beschichtungsrand, c) Falten am Ableiter und d) Bandsäbel.

Die **Elektrodenwelligkeit** (vgl. Abbildung 4-2 a), auch bekannt als Verwerfungen, ist eine Abweichung von der Ebenheit. Nach dem Kalandrieren formen sich periodische Wellen, die sich in MR ausbilden. In Anlehnung an MÜCKE ET AL. (2002, S. 34) lassen sich diese anhand ihrer Wellenhöhe  $f$  und Wellenlänge  $\lambda$  beschreiben. Die Wellen, deren Höhe im Millimeterbereich und Länge im Zentimeterbereich liegt, bilden sich über die gesamte Breite eines Beschichtungsstreifens aus.



Der Elektrodenwelligkeit liegen in Anlehnung an das Flachwalzen unterschiedlich ausgeprägte plastische Verformungen über die Breite und/oder Dicke der Elektrode zugrunde (LOGES 2009, S. 6). Tatsächlich könnte beim Kalandrieren von Elektroden beides zutreffen. Es ist *per se* von unterschiedlichen Längungen entlang der Bandbreite auszugehen, da lediglich der beschichtete Bereich der Elektrode im Walzeneingriff liegt. Die beschichteten Bereiche sowie die dazwischenliegende Substratfolie werden gelängt, die unbeschichteten Ableiter jedoch nicht. Es entstehen Eigenspannungen, da die verschiedenen Bereiche verbunden sind. Vereinfacht ausgedrückt entspricht der Spannungszustand einer vorgespannten Platte, die mit zwei anderen, nicht vorgespannten Platten verbunden ist. Bei Wegnahme der Vorspannung entstehen Zugeigenspannungen, die ab einer kritischen Spannung zum Ausbeulen der Platte führen (vgl. BÜHLER & BUCHHOLTZ 1973). Die Dehnung der beschichteten Bereiche erfolgt nicht nur in MR, sondern auch quer zu dieser, wenn auch in geringerem Maße (MAYER ET AL. 2021, S. 9 ff.). Unterschiedliche plastische Verformungen über die Elektrodendicke sind auch möglich. Tatsächlich besitzen Beschichtung und Substratfolie unterschiedliche Materialausdehnungseigenschaften. Zudem könnte die Beschichtung ein anisotropes Verhalten aufweisen (HASELRIEDER 2016, S. 88, 214). In der Beschichtung und v. a. an der Grenzfläche zur Substratfolie würden Schubeigenspannungen entstehen, da das Fließen der Beschichtung in MR und quer dazu aufgrund der Adhäsion zur Substratfolie behindert würde. Untersuchungen von MAYER ET AL. (2021, S. 8 f.) deuten darauf hin, dass der Längenunterschied zwischen den beschichteten Bereichen und den Ableitern der dominierende Effekt ist. Bei moderater Verdichtung konnte keine Welligkeit an Elektroden beobachtet werden, bei denen die Ableiter entfernt wurden. Generell führt der ungleichmäßige Spannungszustand dazu, dass die einzelnen Wellen, in der Draufsicht betrachtet, eine ballige Form aufweisen, d.h., dass der Abstand von einem Wellengipfel zum nächsten von der Mitte des Beschichtungsstreifens hin zum Rand abnimmt.

Aufgrund der vorangegangenen Ausführungen ist zu vermuten, dass die Partikel bei der Umordnung nicht nur senkrecht zur MR, sondern zusätzlich in Querrichtung verschoben werden. Dadurch wird die Beschichtung gedehnt und aufgrund der Haftung auf der Substratfolie Letztere auch selbst. Folglich könnte prozessseitig eine vereinfachte Partikelumordnung diesen Effekt abschwächen. Diese drückt sich durch eine geringere Linienlast aus, die durch Warmkalandrieren erreicht werden kann (vgl. Abschnitt 3.2.3 und 3.3). Ebenso würde eine geringere Verdichtungsrate den Effekt abmildern, da eine geringere Volumenänderung und damit Partikelumordnung die Folge wäre. Produktseitig sind nicht nur Veränderungen an der Formulierung

denkbar, wie bspw. das Hinzufügen von Binder und Leitruß, sondern auch die Anpassung der Substratfolie. Dicke und Härtegrad könnten hier einen wesentlichen Einfluss haben. Bei den Maßnahmen ist jedoch darauf zu achten, dass die Energiedichte der Elektrode gesenkt wird. Weiter könnte die Dimensionierung der Ableiter im Verhältnis zur Beschichtungsbreite einen Einfluss haben. Vorteilhaft sind intermittierende Beschichtungen, die seitlich keine Ableiter<sup>24</sup> aufweisen, da die Spannungen in den quer gelegenen, unbeschichteten Bereichen abgebaut werden können.

Die **Wellen am Beschichtungsrand** (vgl. Abbildung 4-2b), auch bekannt als Randwellen, sind eine Abweichung von der Ebenheit. Sie treten am Rand des beschichteten Bereichs auf und verlaufen in MR. Es handelt sich um quasi-periodische Wellen mit einer Amplitude  $f$  und Wellenlänge  $\lambda$  jeweils im Millimeterbereich.

Für die Entstehung dieses Fehlerbildes werden verschiedene Ursachen vermutet. Wie zuvor erläutert, ist die Elektrodenwelligkeit auch am Beschichtungsrand vorzufinden, da sie sich von der Mitte zum Beschichtungsrand hin ausbreitet. Bei näherer Betrachtung ist die Wellenlänge dort aber kürzer. Was wie eine Wellenüberlagerung aussieht, ist wahrscheinlich der Ausdruck von Randeffekten, da sich die Bedingungen abrupt ändern. Der beschichtete Bereich ist von allen Seiten geklemmt, außer am Rand, wo die Beschichtung zum Ableiter hin freiliegt. MAYER ET AL. (2021, S 9. f.) beobachten quer zur MR die stärkste Dehnung am Beschichtungsrand. Das Messverfahren erfasst jedoch nur die Dehnung an der Elektrodenoberfläche; es ist nicht bekannt, ob sich die Beschichtung gleichmäßig über die gesamte Schichtdicke dehnt. An der Grenzfläche zur Substratfolie haftet die Beschichtung, was Schubspannungen induzieren und das Ausbeulen verursachen könnte. Auch Vorprozesse können Wellen am Beschichtungsrand verursachen. Erhöhte Beschichtungskanten, die beim Beschichten entstehen, bedeuten eine höhere Massenbeladung der Ränder. Diese werden über die herkömmliche Längung hinaus gedehnt, da an dieser Stelle mehr Beschichtung vorhanden ist. Das Ergebnis ist eine höhere Dichte und die Ausbildung einer ‚lokalen‘ Elektrodenwelligkeit.

Zur Fehlervermeidung sei auf die Beschreibung der Elektrodenwelligkeit verwiesen, da die Ursachen und daher auch die Abhilfemaßnahmen vergleichbar sind. Bei erhöhten Beschichtungskanten sind beim Beschichten Maßnahmen zu ergreifen. Hier

---

<sup>24</sup> Die Voraussetzung wäre ein Längsschnitt vor dem Kalandrieren, da nicht randlos beschichtet werden kann.

sei auf weiterführende Literatur verwiesen (GUTOFF ET AL. 2006, S. 133 ff., SCHMITT 2015, SPIEGEL ET AL. 2021).

Die **Falten am Ableiter** (vgl. Abbildung 4-2c), auch bekannt als *wrinkles*, Folienverzug oder Folienverprägung, sind eine Abweichung von der Ebenheit. Es handelt sich um eine plastische Verformung der Substratfolie am unbeschichteten Rand der Elektrode. Die Falten werden nach BOLD & FLEISCHER (2018, S. 573 f.) durch ihre Höhe  $h_w$  und Länge  $l_w$  sowie durch ihren Winkel zum Beschichtungsrand  $\alpha_w$  beschrieben, da sie meist gerichtet sind. Höhe und Länge variieren im Millimeterbereich. Hier beschreibt die Länge nicht den Abstand zwischen den Falten, also die Wellenlänge, sondern die Länge einer einzelnen Falte. Der Ursprung ist meist der Beschichtungsrand.

Der Grund für die Falten am Ableiter kann die Ausdehnung der Wellen am Beschichtungsrand über die Beschichtungskante hinaus in den unbeschichteten Bereich sein, wodurch die plastische Verformung auf den Ableiter in Form einer Ausbeulung ausgedehnt wird. Erhöhte Beschichtungskanten verstärken diesen Effekt, da die Randüberhöhung durch das Kalandrieren ausgeglichen wird und das Material teilweise zur Seite gedehnt wird. Eine weitere Ursache für die Falten am Ableiter ist die Streckung der beschichteten Bereiche (vgl. Elektrodenwelligkeit). Es entsteht ein Verzug, der zu einer plastischen Deformation des Ableiters in Form von Falten führt (BOLD & FLEISCHER 2018, S. 573). Die Falten sind quer zur MR angewinkelt, da nur die Beschichtung im Spalt geklemmt ist bzw. auf den Umlenkrollen und v. a. auf dem Aufwickler aufliegt und nicht auch der Ableiter, obwohl der Bahnzug die gesamte Breite der Elektrode spannt.

Auch hier sei auf die Maßnahmen zur Fehlervermeidung bei der Elektrodenwelligkeit verwiesen, da den Falten am Ableiter vergleichbare Ursachen zugrunde liegen. Zusätzlich spielt der Bahnzug eine wesentliche Rolle, da bei doppelseitigen Beschichtungen die unbeschichteten Bereiche nicht aufliegen. Um die Zugspannung gleichmäßiger zu verteilen und der Faltenbildung entgegenzuwirken, kann der Höhenunterschied auf den Leitwalzen auf Höhe der unbeschichteten Bereiche mit abgesetzten Leitwalzen o. Ä. ausgeglichen werden.

Der **Bandsäbel** (vgl. Abbildung 4-2d), auch bekannt als Bogenform oder engl. *banana* bzw. *camber effect*, beschreibt die Abweichung von der Geradheit von Elektroden in MR. Bei Elektroden beträgt die Abweichung der Kante von ihrer ideal geraden Form  $h_c$  wenige Millimeter pro Meter Elektrodenlänge (vgl. Abbildung 5-1).

Die Ursache für die Ausbildung eines Bandsäbels ist ein ungleichmäßiger Spannungszustand in der Elektrode über die Breite. Hierfür gibt es zwei Gründe. Zum einen krümmt sich die Elektrode beim Kalandrieren im Falle einer asymmetrischen Beschichtung, d.h. ihre unbeschichteten Bereiche sind unterschiedlich breit. Zum anderen kann die Elektrode nach dem Längsschneiden eine Bogenform annehmen, da die Eigenspannungen nicht mehr symmetrisch über die Breite sind. Die gelängten beschichteten Bereiche können sich ausdehnen, da sie nicht mehr ‚zurückgehalten‘ werden, was zur Krümmung des Bandes führt.

Durch die Wahl einer geeigneten Elektrodengeometrie (d.h. Dimensionierung und Anordnung der beschichteten Bereiche) kann ein asymmetrisches Eigenspannungsprofil über die Elektrodenbreite und damit die Ausbildung des Bandsäbels verhindert werden. Außerdem gelten die gleichen Abhilfemaßnahmen wie für die Wellen und Falten. Um den Längenunterschied zu reduzieren, kann durch hohen Bahnzug versucht werden, den Ableiter ebenso zu strecken. Um die Zugspannung gezielter einzubringen, ist ein Höhenausgleich auf den Leitwalzen notwendig. Weiter wird in einem Patent induktive Erwärmung vorgeschlagen, um die Ableiter weich zu glühen (Schutzrecht US8461496B2). Die Ableiter lassen sich so einfacher dehnen, was den Längenunterschied zu den beschichteten Bereichen reduziert und Spannungen abbaut.

Bildet sich eine Krümmung um die Längsachse der Elektrode, also um die MR, handelt es sich um einen sog. **Querbogen**. Dieses Fehlerbild kommt v.a. bei einseitigen Beschichtungen vor, da sich beim Kalandrieren die Eigenspannungen nur in einer Schicht und damit asymmetrisch über die Dicke ausbilden. Die Bogigkeit nimmt mit zunehmendem Verhältnis von Beschichtungs- zu Foliendicke zu. Anhang A6 zeigt das Fehlerbild an NMC-111-Kathoden mit steigender Verdichtungsrate.

Allgemein verhalten sich einseitig beschichtete Elektroden im Zuge des Kalandrierens anders als doppelseitige. Bei hohen Verdichtungsraten können die Elektrodenwelligkeit und Wellen am Beschichtungsrand in undefinierte **Knicke und Beulen** übergehen. Dies ist in Abbildung 4-5 a) auf Seite 67 zu sehen. Die Elektrode nimmt eine Schüsselform ein, die mit einer hohen Biegesteifigkeit einhergeht. Dies ist teilweise auch beim Zuschnitt von doppelseitigen Elektrodenblättern zu beobachten, da der homogene Spannungszustand aufgehoben wird. In der Praxis ist oft von *Schüsselung* die Rede, wobei dieser Begriff nicht eindeutig ist, da die Schüsselung (engl. *curl*) auch den Querbogen beschreibt, den die Elektrode nach dem

Trocknen der ersten Seite beim Beschichten ausbildet (GUTOFF ET AL. 2006, S. 201 ff.).

Die geometrischen Fehlerbilder sind grundsätzlich sowohl an Anoden als auch an Kathoden zu beobachten, wobei sie bei Kathoden ausgeprägter sind. Zum einen ist Graphit verglichen zu den harten Kathodenpartikeln ein weiches Material, zum anderen hat Kupfer intrinsisch eine höhere Dehngrenze.

Zusammengefasst sind die geometrischen Fehlerbilder Formabweichungen, die sich in Abweichungen von der Ebenheit und Geradheit unterteilen lassen. Bei Ersteren treten Welligkeiten hauptsächlich an beidseitig beschichteten Elektroden auf. Die Bogigkeit wie auch Knicke und Beulen sind eher bei einseitig beschichteten Elektroden üblich. Der Bandsäbel ist das charakteristische Fehlerbild für die Abweichung von der Geradheit. Die Formabweichungen sind auf plastische Verformungen und Eigenspannungen zurückzuführen.

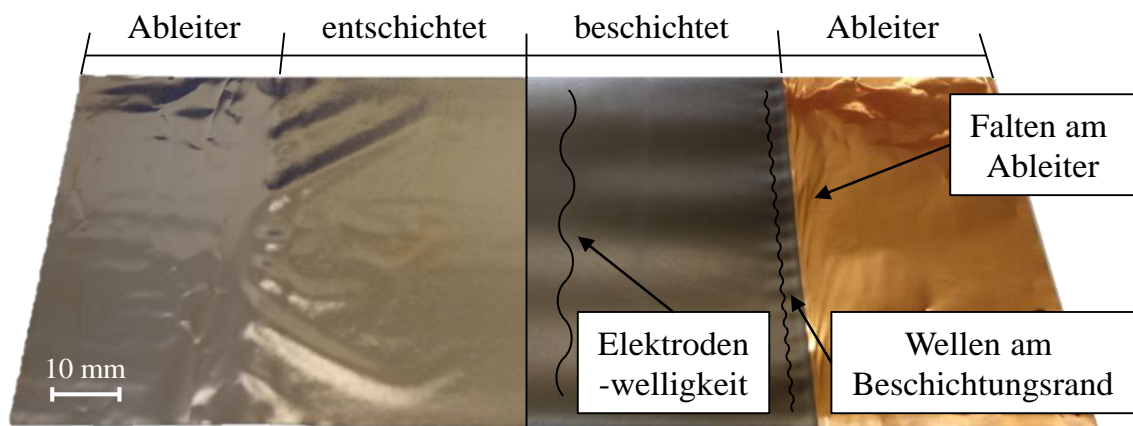


Abbildung 4-3: Welligkeiten an einer Graphit-Anode vor (rechts) und nach (links) dem Entfernen der Beschichtung

Abbildung 4-3 fasst die Effekte bildlich zusammen. An einer Graphit-Anode wurde mit Lösungsmittel (hier Aceton) die Beschichtung entfernt. So können der Einfluss von Beschichtung und Substratfolie differenziert betrachtet werden. In der rechten Bildhälfte sind die verschiedenen Welligkeiten gekennzeichnet. Die Periodizität der Elektrodenwelligkeit und der Wellen am Beschichtungsrand ist deutlich zu erkennen. In der linken Bildhälfte wurde nach der Entschichtung die Welligkeit größtenteils aufgelöst.<sup>25</sup> Weiterhin sichtbar ist die Längung der Kupferfolie. Dies lässt vermuten, dass die Beschichtung formgebend für die Welligkeit ist und diese auf Spannungen in bzw. an der Grenzfläche zwischen der Beschichtung und der Substratfolie beruht.

<sup>25</sup> Ähnliches konnte an einseitig beschichteten Elektroden beobachtet werden. An ihnen war nach der Entschichtung keine Bogigkeit mehr sichtbar.

### Strukturbedingte Fehlerbilder

Abbildung 4-4 veranschaulicht die strukturbedingten Fehlerbilder. Diese werden im Folgenden beschrieben.

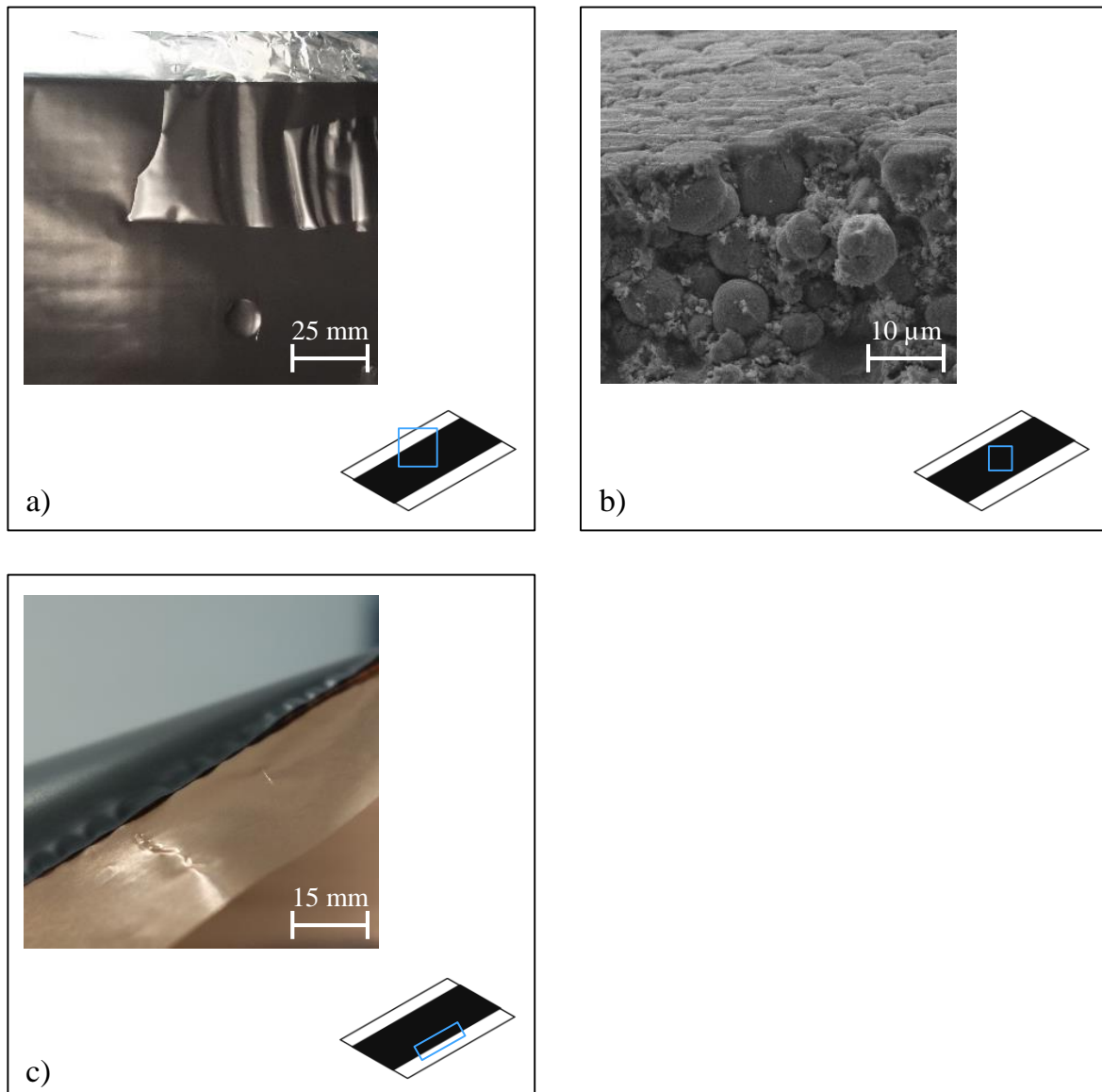


Abbildung 4-4: Strukturbedingte Fehlerbilder – a) Lokale Dicke- und Dichteschwankungen, b) Versiegelte Oberflächenporen und c) Schichtablösung.

**Lokale Dicke- und Dichteschwankungen** (vgl. Abbildung 4-4 a), auch bekannt als inhomogene Beschichtungsdicke, beschreiben Abweichungen in der Dicke und/oder Dichte der Elektrode um wenige Mikrometer oder hundertstel bis zehntel Gramm pro Kubikzentimeter. Nach dem Kalandrieren sind sie teilweise bereits am abweichenden Oberflächenglanz der Beschichtung erkennbar, was in Abbildung 4-4 a) zu sehen ist.

Das Fehlerbild hat meistens seinen Ursprung in den vorangegangenen Prozessschritten, v. a. im Mischen, Dispergieren und Beschichten. Die *Slurry* muss homogen und agglomeratfrei sein, um eine fehlerfreie Beschichtung zu ermöglichen. Das Kalandrieren kann Fehler in der Beschichtung nicht mehr ausgleichen (vgl. Abschnitt 3.2.3). Wird die maximale Dichte der Beschichtung überschritten, kann die Bahn reißen. Weiter kann es zur Beschädigung der Walzen kommen. Im Falle eines verbleibenden Eindrucks auf der Walzenoberfläche würde der Fehler beim Kalandrieren selbst entstehen. Zuletzt verursacht die Walzendurchbiegung einen Belastungsgradienten im Spalt, der auch eine ungleichmäßige Verdichtung zur Folge hat.

Zur Fehlerbehebung müssen aufgrund der komplexen UWB die vorigen Prozesse genau bzgl. ihres Einflusses auf das Kalandrieren untersucht werden. Am Kalandrieren sind Vorkehrungen zu treffen, um Beschädigungen an der Walzenoberfläche zu vermeiden, denn Reparaturen sind zeit- und kostenaufwendig. Hinsichtlich der Walzendurchbiegung sei auf die in Abschnitt 2.3.1 beschriebenen Kompensationsmaßnahmen verwiesen. Dabei ist zu beachten, dass Bombage und *Roll-Bending*-System auf einen Lastfall bzw. -bereich ausgelegt sind. Toleranz-Überschreitungen der Elektrodendicke sind auch vollflächig aufgrund des *Springback*-Effekts möglich. Die elastische Rückdehnung erfolgt unmittelbar nach dem Verlassen des Walzspalts, aber auch über die Zeit, und ist abhängig von weiteren Faktoren wie der Formulierung, Temperatur, usw. Die Elektrode bzw. der Elektrodenwickel sollte auch nach dem Kalandrieren bzw. vor der Weitergabe an die Zellmontage einer umfangreichen Qualitätsprüfung unterzogen werden.

Das Fehlerbild **versiegelte Oberflächenporen** (vgl. Abbildung 4-4 b), auch bekannt als geschlossene Oberflächenstruktur, beschreibt eine niedrige Porosität an der Oberfläche der Beschichtung. Diese lässt sich mittels REM oder Lichtmikroskopie visualisieren. Makroskopisch liefert der Oberflächenglanz Informationen zur Ausprägung (MEYER 2019, S. 89 ff.).

Zu hohe Verdichtungsraten führen zu einer Versiegelung der Oberflächenporen (vgl. Abschnitt 3.2). Die Aktivmaterialpartikel werden verformt und die Inaktivmaterialpartikel besetzen die freien Hohlräume. Bei Anoden tragen die ‚schmierenden‘ Eigenschaften von Grafit dazu bei. Ein verstärkendes Phänomen ist die sog. *binder migration*<sup>26</sup>, bei der ein Teil des Binders beim Verdampfen des Lösungsmittels mit an die Oberfläche wandert. Da das Fehlerbild stark vom Anteil

---

<sup>26</sup> Hier sei auf weiterführende Untersuchungen verwiesen (FONT ET AL. 2018, JAISER ET AL. 2016, MORASCH ET AL. 2018, WESTPHAL ET AL. 2015).

an Inaktivmaterialien beeinflusst wird, muss das Kalandrieren in Abhängigkeit von der Formulierung untersucht werden, um die zulässige maximale Verdichtungsrate zu ermitteln.

Das Fehlerbild **Schichtablösung** (vgl. Abbildung 4-4c), auch bekannt als Adhäsions- bzw. Kohäsionsbruch, beschreibt das Versagen der Haftfestigkeit. Es kann auf der gesamten Fläche auftreten, wobei die Beschichtungsänder stärker betroffen sind. Im Extremfall kann die Beschichtung an der Walzenoberfläche anhaften.

Untersuchungen in der Literatur zeigen den Einfluss des Kalandrierens auf die Haftfestigkeit der Beschichtung. Bei moderaten Verdichtungsraten wird die Haftfestigkeit i. Allg. abgesenkt und hin zu höheren Verdichtungsraten bei Kathoden wieder erhöht (vgl. Abschnitt 3.2.2 und 3.3). In einigen Fällen kann die Haftung der Beschichtung jedoch versagen. Hier ist zwischen Adhäsions- und Kohäsionsversagen zu unterscheiden. HASELRIEDER (2016, S. 214) beschreibt einerseits, dass Schubspannungen den Kontakt zwischen dem Binder und der Substratfolie auflösen können und damit ein Adhäsionsversagen einleiten. Andererseits kommt es beim „Überschreiten der Reißfestigkeit [...] der Bindermolekülketten“ zum Kohäsionsversagen. Auch hier ist die *binder migration* nachteilig, da an der Grenzfläche weniger Bindemittel vorhanden ist, um die Haftfestigkeit zu gewährleisten.

Um die Duktilität des Binders zu erhöhen, was seine Umverteilung fördert, aber auch die Schubspannungen an der Grenzfläche senken kann, können die Walzen temperiert werden. Eine weitere Möglichkeit die Schubspannung zu beeinflussen, ist der Einsatz größerer Walzendurchmesser. HASELRIEDER (2016, S. 214) erwartet dadurch einen langsameren Anstieg der Schubspannung im Walzspalt. Es ist davon auszugehen, dass das Scherverhalten im Spalt bei Anode und Kathode sowie ein- und doppelseitiger Beschichtung unterschiedlich ist.



### Mechanische Fehlerbilder

Abbildung 4-5 gibt einen Überblick über die mechanischen Fehlerbilder. Diese werden im Folgenden beschrieben.

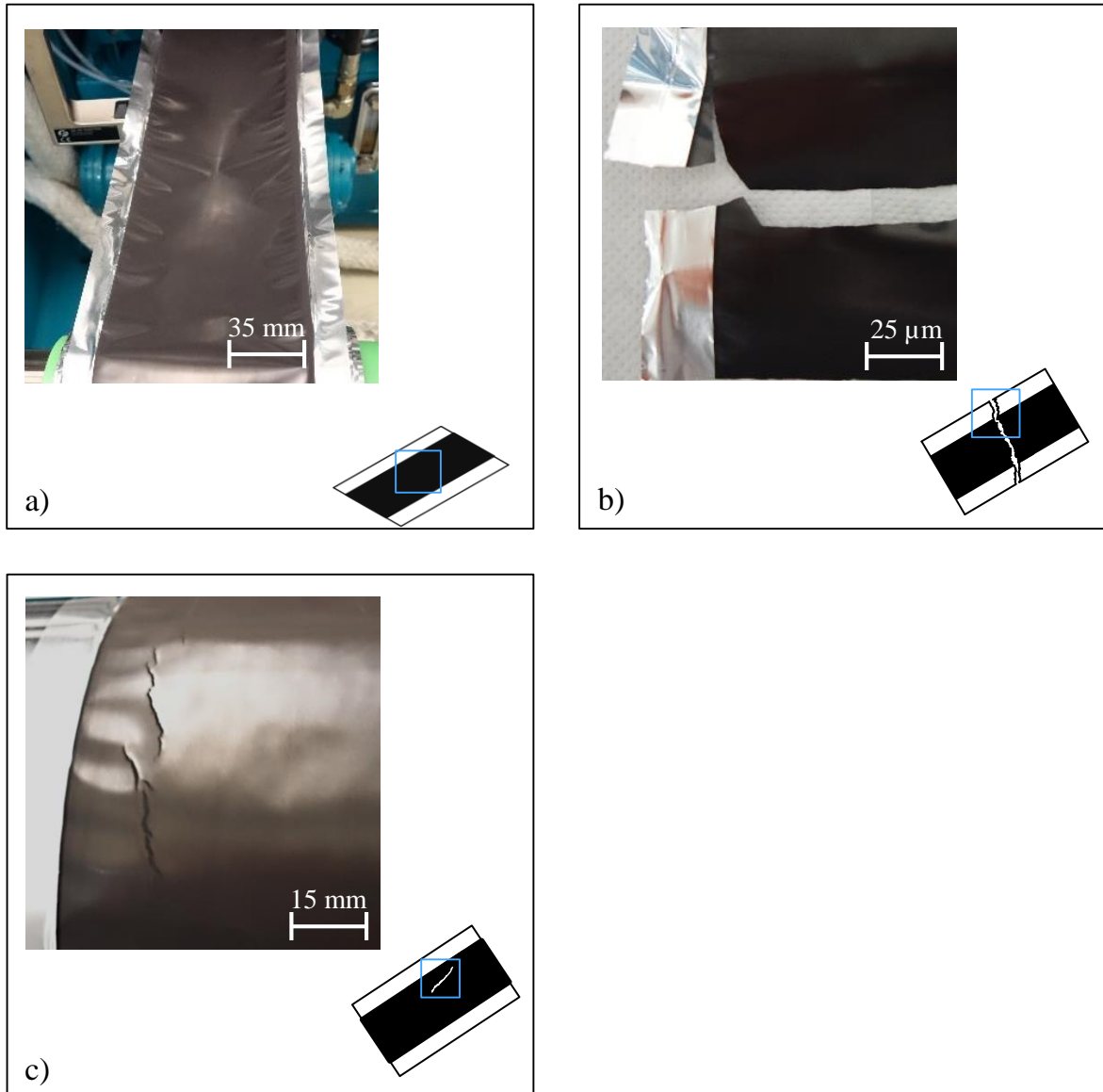


Abbildung 4-5: Mechanische Fehlerbilder – a) Elektrodenversprödung, b) Folienriss und c) Riss in der Beschichtung.

Die **Elektrodenversprödung** (vgl. Abbildung 4-5 a), auch bekannt als geringe Elektrodenflexibilität, ist durch ein sprödes Materialverhalten gekennzeichnet. Die Elektrode lässt sich unter mechanischer Belastung kaum elastisch verformen und reißt ohne plastische Verformung. Das Ausbleiben einer weiteren plastischen Verformung ist in Hinblick auf den Betrieb der LIB zwar vorteilhaft, sollte aber kein sprödes Verhalten zur Folge haben. Erstrebenswert sind Elektroden mit hoher Reißfestigkeit gepaart mit einer rein elastischen Dehnung (HASELRIEDER 2016,

S. 168). Aus haptischer Sicht weist die Elektrode eine hohe Biegesteifigkeit auf. Sichtbar wird das Fehlerbild oftmals durch Knicke und Beulen (vgl. Abschnitt zu geometrischen Fehlerbildern).

Die Ursache für die Versprödung ist zu hoher Druck bzw. eine zu hohe Linienlast zur Erreichung hoher Dichten (vgl. Abschnitt 3.2.3). Zur Absenkung der erforderlichen Linienlast kann warm kalandriert werden (vgl. Abschnitt 3.3). Des Weiteren fördert nach HASELRIEDER (2016, S.139-140) die Zugabe von Leitruß die Partikelumordnung beim Kalandrieren und senkt somit die erforderliche Linienlast. Außerdem lassen sich Elektroden mit stärker agglomerierten Leitadditiven leichter verdichten als solche mit stärker desagglomerierten Leitadditiven (BOCKHOLT ET AL. 2016, S. 145 f.).

Der **Folienriss** (vgl. Abbildung 4-5 b), auch bekannt als Elektrodenriss, beschreibt das Reißen der Substratfolie oder der kompletten Elektrode unmittelbar nach dem Verlassen des Walzspalts oder in den Folgeprozessen.

I.Allg. fördert die Elektrodenversprödung Folienrisse. Außerdem können hohe Belastungen der Elektrode durch bspw. lokale Dicke- und Dichteschwankungen (vgl. Abbildung 4-4 a) einen Riss hervorrufen. Partikeleindrücke in der Substratfolie können diese beschädigen und den Riss einleiten. Weiter können die Falten am Ableiter die Aufwicklung der Elektrode behindern und durch ungleichmäßige Zugbelastungen Folienrisse herbeiführen. Hier ist auf das Verhältnis von Ableiter- zu Beschichtungsbreite zu achten. Ein verhältnismäßig großer Ableiter induziert hohe Querspannungen. Intermittierende Beschichtungen ohne Ableiterstreifen lassen sich besser aufwickeln. Zuletzt können Substratfolien aufgrund des Längsschneidens der Mutterrolle ab Werk an den Kanten vorgeschädigt sein.

Generell sind dünne Folien anfälliger für einen Folienriss. So sollte auf das Verhältnis von Massenbelastung zu Substratdicke geachtet werden.

Zuletzt kann sich ein **Riss in der Beschichtung** (vgl. Abbildung 4-5 c), auch bekannt als Bruch in der Beschichtung, ausbilden, der z. T. ohne Vergrößerung sichtbar ist.

Während des Kalandrierens wird infolge der Partikelumlagerung die Beschichtung gedehnt. Dabei kann es zum Überschreiten der Reißdehnung kommen. V. a. die Homogenität der Inaktivmaterialien ist von Bedeutung, da der Binder für die Kohäsion sorgt. Weiter ist zu beachten, dass Binder unterschiedliche Reißdehnungen aufweisen können. Das Warmkalandrieren erleichtert die Partikelumlagerung, da der Binder duktiler wird.

In den vorangegangenen Abschnitten wurden die geometrischen, strukturbedingten und mechanischen Fehlerbilder beschrieben. Diese wurden v. a. an NMC-111-Kathoden und Grafit-Anoden experimentell festgestellt. Durch Aggregation der Fehlerbilder aus verschiedenen Informationsquellen wurde die Gültigkeit erweitert, da von den befragten Experten und in der Literatur weitere Materialsysteme untersucht wurden. Die Erläuterungen zeigen, dass die Ausprägung der Fehlerbilder von verschiedenen Parametern abhängig ist, die teilweise beeinflussbar sind. So kann der Bandsäbel bspw. durch Anpassung des Beschichtungsdesigns reduziert werden. I. Allg. werden die Elektrodeneigenschaften aber durch inhärente Materialeigenschaften vorgegeben. Wie in Abschnitt 2.3.3 erläutert, durchlaufen partikelbasierte Systeme unterschiedliche Verdichtungsphasen, aus denen schließlich die Produkteigenschaften hervorgehen. Die Verdichtungsmechanismen sind zudem abhängig von den Partikeleigenschaften selbst (MEYER ET AL. 2018). Bei „überlithiierten oder nickelreichen Hochvoltmaterialien“ wird von einer erhöhten Sprödigkeit berichtet (HASELRIEDER 2016, S. 140). Abbildung 4-5 a) und c) zeigen bspw. das Fehlerbild Elektrodenversprödung bzw. Riss in der Beschichtung, das an einer überlithiierten, manganreichen NMC-Kathode aufgetreten ist (SCHREINER ET AL. 2021, S. 9 f.). Da die Elektrode ein Komposit ist, werden die Produkteigenschaften zudem maßgeblich von der Substratfolie vorgegeben. So sind die Ausprägung und die Häufigkeit bzw. Auftretenswahrscheinlichkeit der Fehlerbilder abhängig von vielen Faktoren. I. Allg. kann aber festgehalten werden, dass die Fehlerbilder bei Kathoden aufgrund des höheren Verdichtungswiderstandes ausgeprägter sind. Eine Ausnahme bildet die Schichtablösung, die häufiger bei Anoden beobachtet wird. Diese weisen eine geringe Haftfestigkeit auf, da u. a. Grafit ein weiches und schmierendes Material ist (DU ET AL. 2014, S. A1071).

### 4.2.2 Einfluss der Fehlerbilder auf nachfolgende Prozesse

Die Montage wird häufig als „Sammelbecken für Fehler aus vorgeschalteten Arbeitsbereichen“ bezeichnet (MÜLLER 2006, S. 3). Die Montage von LIB bildet da keine Ausnahme. Im Folgenden wird der Einfluss der Fehlerbilder auf die Prozesse der Zellmontage beschrieben. Hierzu wurde die im vorangegangenen Unterkapitel beschriebene Methode am Bsp. der *iwb*-Forschungsproduktionslinie angewandt. Die Ergebnisse der Studie wurden in GÜNTHER ET AL. (2020) publiziert. Tabelle 4-1 zeigt die aus der Expertenbefragung entstandene DMM.

Tabelle 4-1: DMM zur Auswirkung der Fehlerbilder auf Folgeprozesse der iwB-Forschungsproduktionslinie

<b>Bewertungsskala</b>		<b>Konfektionieren</b>	<b>Z-Falten</b>	<b>Vakuumtrocknen</b>	<b>Kontaktieren</b>	<b>Verpacken</b>	<b>Elektrolytbefüllung</b>	<b>Formierung</b>	<b>Aktivsumme</b>
2 $\triangleq$ Fehlerbild führt zu Ausschuss, Elektrode für Prozess unbrauchbar									
1 $\triangleq$ Fehlerbild kann während Prozess zu Ausschuss führen									
0 $\triangleq$ Fehlerbild unbedenklich für Prozess									
Geometrische Fehlerbilder	Elektrodenwelligkeit	1	2	0	0	2	1	1	<b>7</b>
	Wellen am Beschichtungsrand	0	1	0	0	0	1	1	<b>3</b>
	Falten am Ableiter	1	1	0	1	0	1	0	<b>4</b>
	Bandsäbel	0	1	0	0	0	0	0	<b>1</b>
Strukturbedingte Fehlerbilder	Lokale Dicke und Dichteschwankungen	0	0	0	0	1	1	1	<b>3</b>
	Versiegelte Oberflächenporen	0	0	0	0	0	1	1	<b>2</b>
	Schichtablösung	0	1	0	1	1	1	1	<b>5</b>
Mechanische Fehlerbilder	Elektrodenversprödung	1	1	0	1	1	0	1	<b>5</b>
	Folienriss	2	1	0	1	0	1	1	<b>6</b>
	Riss in der Beschichtung	0	0	0	0	0	1	1	<b>2</b>
	Partikelriss	0	0	0	0	0	0	0	<b>0</b>
	Partikeleindruck in Substratfolie	0	0	0	0	0	0	0	<b>0</b>
<b>Passivsumme</b>		<b>5</b>	<b>8</b>	<b>0</b>	<b>4</b>	<b>5</b>	<b>8</b>	<b>8</b>	

Im Folgenden wird auf das Ergebnis eingegangen. Den größten Einfluss haben **Elektrodenwelligkeit**, **Folienriss**, **Elektrodenversprödung** sowie **Schichtablösung**. Bei den beiden ersten Fehlerbildern ist die Elektrode teilweise unbrauchbar, was die hohe Aktivsumme erklärt. Die Aktivsumme der Fehlerbilder **Partikelriss** und **Partikeleindruck in Substratfolie** ist jeweils gleich null. Die Fehlerbilder haben keinen Einfluss auf die nachfolgenden Prozesse und werden nicht weiter betrachtet. Dies bedeutet jedoch nicht, dass sie keinen Einfluss auf die Qualität des Endprodukts haben und die *Performance* der Zelle beeinträchtigen können. Für detaillierte Informationen zu den Fehlerbildern sei auf Abschnitt 3.2 und die darin enthaltenen Quellenangaben verwiesen, sowie zusätzlich für das Fehlerbild Partikeleindruck in Substratfolie auf HYAMS ET AL. (2007).

Die Fertigungsprozesse sind bis auf das **Vakuumtrocknen** alle betroffen. Die größten Passivsummen erreichen das sog. **Z-Falten**, die **Elektrolytbefüllung** und die **Formierung**. Die beiden letztgenannten Prozesse werden, neben den geometrischen und mechanischen Fehlerbildern, aufgrund der direkten Wechselwirkung mit der Elektrodenstruktur besonders von den strukturbedingten Fehlerbildern beeinflusst.

Bei der Interpretation der DMM ist zu berücksichtigen, dass sich die Angaben der Experten auf die spezifische Prozesskette des *iwb* beziehen und die Expertise zum Zeitpunkt der Befragung (11.2016–04.2017) widerspiegeln. Die eingesetzten Materialien, die einzelnen Prozesse und die vorhandene Anlagentechnik können sich unterscheiden. Die Prozesse Längsschneiden und Wickeln wurden bspw. nicht berücksichtigt, obwohl sie weit verbreitet sind. Dadurch hat z. B. der Bandsäbel einen geringen Einfluss, da er erst durch das Längsschneiden sichtbar wird. Des Weiteren zeigen aktuelle Erkenntnisse aus dem Stand der Forschung, dass bspw. Partikelrisse die Feuchtigkeitsaufnahme beeinflussen (HUTTNER ET AL. 2021). Dies könnte eine Anpassung des Vakuumtrocknens erforderlich machen. Eine vollständige Trocknung muss gewährleistet werden, da Feuchtigkeit eine kritische Verunreinigung in LIB darstellt. Der Einfluss des Kalandrierens war zum Zeitpunkt der Datenerhebung nicht bekannt und das Vakuumtrocknen nicht im Fokus der Untersuchungen, weshalb der Prozess von den Befragten nicht genannt wurde. Im Gegensatz zur Methode ist die Studie folglich nicht allgemeingültig, da sie nur die *iwb*-Forschungsproduktionslinie zum Zeitpunkt der Erhebung betrachtet. Weiter zeigt die DMM nicht, ob weitere Prozesse die Elektrode bzw. die Fehlerbilder beeinflussen. In den Untersuchungen von HUTTNER ET AL. (2021) ist z. B. die Haftfestigkeit nach dem Vakuumtrocknen wieder angestiegen. Die Autoren vermuteten, dass es temperaturbedingt zu einem Kriechen des thermoplastischen PVDF-Binders und damit zu einer Neuordnung der durch das Kalandrieren geschädigten Kontaktstellen kommt.

Der folgende Teil widmet sich dem Einfluss der Fehlerbilder als Ergänzung und Konkretisierung des Abschnitts 3.4. Dabei wird nicht nur der spezifische Einfluss auf die am *iwb* implementierten Prozesse diskutiert, sondern es werden auch allgemeine Zusammenhänge dargestellt. Es handelt sich um eine Zusammenfassung der Veröffentlichung GÜNTHER ET AL. (2020). Eine weiterführende Darstellung der Ergebnisse mit experimentellen Daten und Abbildungen ist darin gegeben. Die zitierten Quellen sind qualitätsgesicherte Veröffentlichungen der Arbeitsgruppe am *iwb*, welche die Expertise belegen.

Unter den **geometrischen Fehlerbildern** beeinträchtigt die Elektrodenwelligkeit hauptsächlich die Bahnführung nach dem Kalandrieren. Durch die Wellen liegen die Elektroden nicht vollflächig auf den Leitwalzen auf. Das kann zwar durch eine Erhöhung der Bahnspannung kompensiert werden, erhöht aber, v.a. bei spröden Elektroden, das Risiko für Folienrisse. Die verringerte Auflagefläche erhöht punktuell die Belastung auf die Elektrode, v.a. der Beschichtungsrand wird zum Ankerpunkt für Folienrisse. Der Bandsäbel verursacht aufgrund der Abweichung von der Geradheit einen seitlichen Versatz der Bahn, der ebenfalls, mit dem Risiko für Folienrisse, durch eine höhere Bahnspannung kompensiert werden kann.

Der Bandsäbel macht sich auch bei der Zellmontage bemerkbar. Beim Wickeln kann es zu einem seitlichen Versatz der Lagen kommen, was die Gefahr von elektrischen Kurzschlüssen erhöht. Bei diskontinuierlichen Montageprozessen wie dem Einzelblattstapeln kommt die Abweichung von der Ebenheit mit ins Spiel, was eine Anpassung der Greif- und Handhabungsprozesse erforderlich macht (KURFER ET AL. 2012, S. 35). Es wird mehr Greifkraft benötigt, um die Elektrode sicher zu halten und zu bewegen (GÜNTHER ET AL. 2020, S. 7). Eine zu hohe Belastung der Elektroden kann diese jedoch schädigen (bspw. durch Ansaugen von Partikeln). Bei den Konfektionierschritten *Stanzen* bzw. *Laserstrahlschneiden* können Welligkeiten zu Verletzungen der Maßtoleranzen führen. Plastisch verformte Falten am Ableiter sind bspw. in der Draufsicht in der richtigen Geometrie geschnitten, ergeben aber aufgrund des Ziehharmonika-Prinzips bei Streckung eine Überlänge. Speziell bei Laser-basierten Prozessen ändern die Fehlerbilder die Fokushöhe, was einen Einfluss auf die Intensität im Schneidprozess hat (GÜNTHER ET AL. 2016, S. 7). Ergänzend zu Abschnitt 3.4 wird beim Kontaktieren nicht nur der etablierte Ultraschall-Schweißprozess, sondern auch das neuartige Laserstrahl-Schweißen gestört.

Bei der Elektrolytbefüllung und -benetzung behindern Formabweichungen den Elektrolytfluss. Der innere Zellaufbau hat einen maßgeblichen Einfluss auf die Benetzungszeit (GÜNTNER ET AL. 2020).

Bei den geometrischen Fehlerbildern ist generell darauf zu achten, dass es sich um Formabweichungen durch plastische Deformation und mechanische Spannungen handeln kann. Eigenspannungen können sich durch das Konfektionieren abbauen und würden damit die Folgeprozesse nicht mehr beeinträchtigen.

Unter den **strukturbedingten Fehlerbildern** ist die Schichtablösung das in der Literatur am häufigsten untersuchte Fehlerbild in Bezug auf die Weiterverarbeitbarkeit (vgl. Abschnitt 3.2.2 und 3.3). Tatsächlich wird die Elektrode mehrmals auf- und abgewickelt, gebogen, gestapelt, usw. Bei all diesen Fertigungsschritten ist die Elektrode unterschiedlichen mechanischen Belastungen ausgesetzt, die zu einer Abplatzung oder Delamination der Beschichtung führen können (GÜNTHER ET AL. 2016, S. 307).

Lokale Dicke- und Dichteschwankungen können das Einführen des Zellstapels bzw. -wickels in das Gehäuse stören (vgl. Abschnitt 3.4). Im Falle von Flachzellen kann es auch zur Toleranzüberschreitung der Zelldicke kommen, da sich die weiche Verpackung (sog. *Soft Pack*) ausbeulen würde. (GÜNTHER ET AL. 2020, S. 7)

Zu hohe Dichten führen zur Versiegelung der Oberflächenporen. Die Elektrolytbefüllung bzw. -benetzung wird maßgeblich durch die Porenstruktur beeinflusst. Wie in Abschnitt 3.4 zu sehen, beschäftigen sich einige Forschungsarbeiten mit diesem Zusammenhang. Um dennoch hohe Verdichtungsraten zu ermöglichen, ohne die Benetzung zu beeinträchtigen, wird die Laser-Strukturierung untersucht (HABEDANK ET AL. 2019). Dabei können Bohrungen oder Kanäle in die Elektrode eingebracht werden, welche die Benetzung beschleunigen.

Bei den **mechanischen Fehlerbildern** haben die Elektrodenversprödung und die damit verbundene erhöhte Gefahr für Folienrisse den größten Einfluss auf die Weiterverarbeitung. Für kontinuierliche Prozesse bedeutet ein Folienriss einen Produktionsstopp, der nur durch manuellen Eingriff bzw. Spleißen<sup>27</sup> beseitigt werden kann, was die Ausbeute verringert (GÜNTHER ET AL. 2020, S. 8).

Ergänzend zum Handlungsbedarf aus dem Stand der Forschung (vgl. Abschnitt 3.5) wurde auf Grundlage einer Pareto-Analyse entschieden, welche Fehlerbilder in dieser Arbeit experimentell untersucht werden (vgl. Kapitel 6). Dies ist wichtig, da hierzu in Kapitel 5 Messverfahren ausgewählt bzw. entwickelt werden müssen.

---

<sup>27</sup> Als Spleißen wird das Zusammenfügen der Elektrodenbahnen mit Klebeband bezeichnet.

Abbildung 4-6 zeigt das Ergebnis der Pareto-Analyse. Die Aktivsumme der sechs ersten Fehlerbilder entspricht ca. 80 % der Gesamtsumme.

Unter den sechs ersten Fehlerbildern wird das Fehlerbild **Falten am Ableiter** nicht weiter betrachtet, da BOLD & FLEISCHER (2018) hierzu bereits ein Messverfahren angekündigt haben, das als *Proof of Concept* inkl. erster Versuchsergebnisse vorgestellt wurde. Diese Ergebnisse werden in der vorliegenden Arbeit aufgenommen, da es sich um Poster handelt, die auf Konferenzen und Fachkongressen präsentiert wurden und nicht öffentlich zugänglich sind. Es sei daher auf zukünftige Veröffentlichungen von BOLD & FLEISCHER verwiesen.

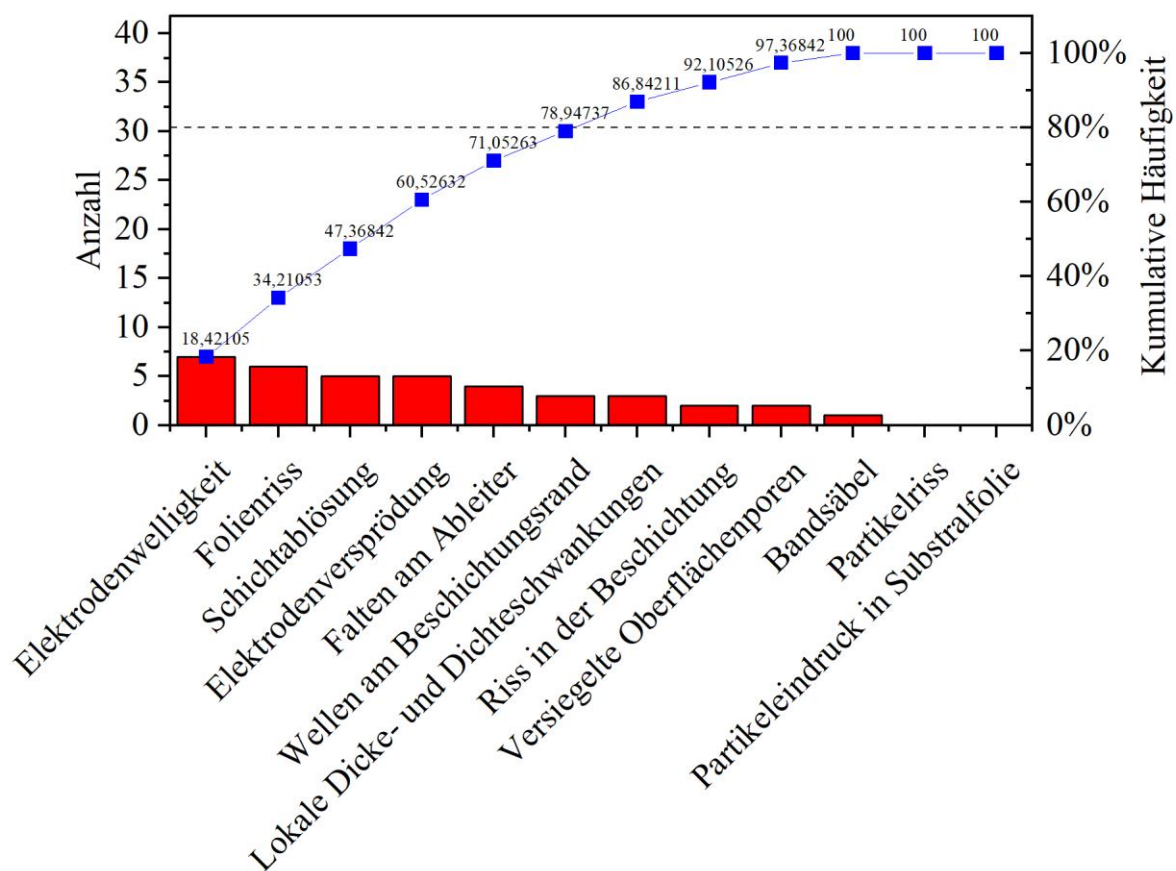


Abbildung 4-6: Pareto-Analyse zum Einfluss der Fehlerbilder auf Folgeprozesse am Bsp. der iwb-Forschungsproduktionslinie

Für die weiteren Untersuchungen im Rahmen dieser Arbeit wurden:

- die geometrischen Fehlerbilder **Elektrodenwelligkeit** und **Wellen am Beschichtungsrand**,
- das strukturbedingte Fehlerbild **Schichtablösung** und
- die mechanischen Fehlerbilder **Elektrodenversprödung** und **Folienriss**

ausgewählt.



## 5 Auswahl und Entwicklung von Messverfahren zur Erfassung der Fehlerbilder

Im vorangegangenen Kapitel wurden Fehlerbilder identifiziert und beschrieben, die für die Weiterverarbeitung relevant sind. Nun werden geeignete Messverfahren zu deren Erfassung ausgewählt und untersucht. Den Schwerpunkt bildet die Entwicklung eines Messverfahrens zur Erfassung von Formabweichungen.

### 5.1 Prüfung der Weiterverarbeitungseigenschaften von Elektroden

Zur experimentellen Untersuchung des Einflusses des Kalandrierens auf die Fehlerbilder werden Messverfahren benötigt, welche diese zuverlässig erkennen. Sie ermöglichen, die Ausprägung der Fehlerbilder zu beschreiben und liefern so die erforderlichen Antwortgrößen für die spätere Versuchsauswertung (vgl. Abschnitt 6.3). Im Folgenden sollen in Anlehnung an das Vorgehen der Prüfplanung (vgl. Abschnitt 2.1.3) Messverfahren für die Fehlerbilder ausgewählt oder bei Bedarf neu entwickelt werden.

#### 5.1.1 Allgemeine Anforderungen an die Messverfahren

Der erste Schritt der Prüfplanung ist die Beschreibung der **Prüfmerkmale**. Da das Qualitätsziel für die Weiterverarbeitung der Elektrode darin besteht, das Auftreten der Fehlerbilder zu verhindern oder deren Ausmaß zu begrenzen, muss die Elektrode auf ihre Fehlerbilder (vgl. Abschnitt 4.2.1) hin geprüft werden. Daher wird eine Verknüpfung zwischen den Fehlerbildern und den Prüfmerkmalen benötigt. Erst dann können entsprechende Messverfahren ausgewählt werden. Für das Fehlerbild Schichtablösung muss bspw. die Haftfestigkeit gemessen werden. Bei den Messverfahren wird das Schadensausmaß nach Auftreten des Fehlerbildes nicht immer gemessen, sondern die Elektrode gezielt beansprucht, um das Prüfmerkmal zu erfassen und die Grenzwerte zu ermitteln. So wird z. B. die Reißfestigkeit in Bezug auf Folienrisse gemessen. Dabei ist zu berücksichtigen, dass es für ein Prüfmerkmal in den meisten Fällen unterschiedliche Messverfahren gibt. Diese unterscheiden sich nach den physikalischen Messprinzipien. Oftmals stehen die Ermittlung von Werkstoffeigenschaften im Vordergrund (z. B. im Zugversuch). Für die Fehlerbilder ist aber auch die Art der Belastung während der Prüfung relevant. Als Bsp. kann die Beschichtung zur Messung der Haftfestigkeit in Normalenrichtung durch Abreißen, transversal durch Ritzen oder in beide Richtungen durch Schälen beansprucht

werden. Folglich ist bei der Auswahl des Messverfahrens zu berücksichtigen, welchen Belastungen die Elektrode in ihrer Weiterverarbeitung ausgesetzt ist.

Hinsichtlich des **Prüfortes** ist zur Beurteilung der Verarbeitbarkeit wichtig, möglichst vergleichbare Bedingungen bzgl. der Weiterverarbeitung zu simulieren. Spannungsbezogene Fehlerbilder, wie z. B. die Elektrodenwelligkeit, sind nach dem Ausschnitt von Elektrodenblättern weniger ausgeprägt und damit nicht mehr repräsentativ für die Verarbeitung der Rollenware.

In der Serienfertigung sollten möglichst viele Informationen zu den Prüfmerkmalen zerstörungsfrei *inline* gewonnen werden, da es sich beim Kalandrieren um einen Rolle-zu-Rolle-Prozess handelt. Die Entnahme von Stichproben reduziert die Ausbeute. Im Versuchsbetrieb ist jene zwar möglich, sollte aber aufgrund des Zeitaufwands zur Probenherstellung und der hohen Materialkosten auf das Nötigste reduziert werden. Eine Wiederverwendung von Proben für unterschiedliche Prüfungen ist sinnvoll. Da die Eigenschaften der Elektroden nach dem Kalandrieren über die Zeit ggf. nicht konstant sind (z. B. *Springback*-Effekt), sollte der **Prüfzeitpunkt** unmittelbar danach gewählt werden bzw. dem Zeitpunkt entsprechen, zu dem sie im nachfolgenden zu untersuchenden Prozessschritt verarbeitet werden sollen, um auch hier repräsentative Bedingungen nachzubilden.

Anschließend würde in der industriellen Praxis das erfasste Prüfmerkmal mit der Qualitätsforderung verglichen werden, um eine Entscheidung hinsichtlich der Güte zu treffen. Hier sind quantitative, durch eine Messung gewonnene Prüfmerkmale zu bevorzugen, da die zulässigen Wertebereiche je nach Bedarf bzw. Anforderung angepasst werden können. Im Rahmen dieser Arbeit wird dieser Prüfschritt nicht durchgeführt, also keine Entscheidung getroffen, da keine Qualitätsforderung vorliegt (vgl. Abschnitt 4.1.1). Das Ergebnis wird dennoch dokumentiert und anschließend diskutiert (vgl. Abschnitt 6.3). Zu diesem Zwecke muss das Messergebnis ein Zahlenwert sein (bspw. Mittelwert aus Wiederholungsmessungen), um eine statistische Versuchsauswertung zu ermöglichen (KLEPPMANN 2016, S. 12). Kurvenverläufe könnten zwar analysiert und diskutiert werden, eignen sich aber nicht für die SVM.

Die Anforderungen an die Prüf- und Messverfahren sind in Tabelle 7-1 zusammengefasst. Tabelle 5-1 stellt die Verknüpfung zwischen den Fehlerbildern und den Prüfmerkmalen dar und nennt angemessene Prüf- und Messverfahren aus dem Stand der Technik bzw. Forschung im Bereich LIB, aber auch darüber hinaus. Die im Fokus der Betrachtung stehenden Fehlerbilder sind hervorgehoben.

Tabelle 5-1: Fehlerbilder und entsprechende Prüfmerkmale sowie Verfahren zu deren Erfassung basierend auf GÜNTHER ET AL. (2020, S. 5 f.)

Fehlerbild	Prüfmerkmale	Geeignete Prüfverfahren
<b>Elektrodenwelligkeit</b>	Wellenhöhe und -länge	Berührungslose Messverfahren (bspw. Laser-Scanner zur 2-D- bzw. 3-D-Profilmessung, Streifenlichtprojektion)
<b>Wellen am Beschichtungsrand</b>	Wellenhöhe und -länge	
Falten am Ableiter	Faltenhöhe, -länge und -winkel	
Bandsäbel	Abstand der Elektrodenkante von der Geraden pro Längenmaß	Längenmessung (bspw. Messschieber)
Lokale Dicke- und Dichteschwankungen	Dicke, Dichte oder Porosität	REM, Quecksilberporosimetrie, Mikrometerschraube, Mikrowaage, $\beta$ -Strahlenabsorption, Ultraschallabsorption, Thermografie
Versiegelte Oberflächenporen	Oberflächenglanz	REM, Reflektometrie
<b>Schichtablösung</b>	Haftfestigkeit	Schäl-, Abreiß-, Dornbiege- und Ritzversuch
<b>Elektrodenversprödung</b>	Biegemodul, E-Modul	Zug- und/oder Biegeversuch, Nanoindentierung, <i>Loop stiffness tester</i>
<b>Folienriss</b>	Zug- und Scherfestigkeit	Zugversuch, <i>shear punch test</i>
Riss in der Beschichtung	Fläche, flächenbezogene Anzahldichte	Sichtprüfung, Lichtmikroskopie, REM

### 5.1.2 Diskussion und Auswahl der Messverfahren

Im Folgenden werden die in Abschnitt 3.1 vorgestellten Prüf- und Messverfahren hinsichtlich der Prüfung der Fehlerbilder diskutiert und entsprechend den gestellten Anforderungen (vgl. Tabelle 7-1) im Rahmen dieser Arbeit ausgewählt. Auf Grundlage des Handlungsbedarfs aus Abschnitt 3.5 sollen aufbauend auf den Arbeiten von HASELRIEDER (2016) an Anoden die mechanischen Eigenschaften von Kathoden untersucht werden. Weiter sollen aufgrund der widersprüchlichen Angaben aus der Literatur zum Einfluss des Kalandrierens auf die Haftfestigkeit von Graphit-Anoden weiterführende Untersuchungen durchgeführt werden. Zuletzt werden Messverfahren zur Quantifizierung der Formabweichungen benötigt, um experimentelle Analysen zur Verformung von Elektroden zu ermöglichen.

Zur Messung von Formabweichungen sind kaum Verfahren literaturbekannt (vgl. Abschnitt 3.1). Der **Bandsäbel** wird, wie in Abbildung 5-1 zu sehen, über den Abstand der Elektrodenkante  $h_C$  von der idealen Geraden definiert. Üblicherweise wird ein Meter Elektrode abgewickelt, wobei durch Erhöhung der Bezugslänge der Messfehler verringert werden kann, was aber auch zu einer Erhöhung des Materialbedarfs und folglich des Ausschusses führt. Das Messverfahren hat seinen Ursprung zwar im Walzen, findet aber breite Anwendung in der Elektrodenfertigung. Vorteilhaft ist seine einfache Umsetzung. Da das Fehlerbild jedoch erst nach dem Längsschneiden auftritt, kann die Messung nicht unmittelbar nach dem Kalandrieren durchgeführt werden und ist *offline*. Der Bandsäbel wird in dieser Arbeit nicht gemessen (vgl. Abschnitt 4.2.2). Die Ausführungen konzentrieren sich im Folgenden auf Abweichungen von der Ebenheit. Das Verfahren wird aber später als Stand der Technik für die wirtschaftliche Bewertung herangezogen (vgl. Abschnitt 7.2).



Abbildung 5-1: Abgewickelte Elektrode (links, Quelle: BMW AG) und Vorgehen zur Messung des Bandsäbels nach MÜCKE ET AL. (2002, S. 36) (rechts)

**Verfahren zur Messung der Ebenheit** sind bis auf das von MAYER ET AL. (2021) vorgestellte Verfahren im Bereich der Elektrodenherstellung nicht in der Literatur beschrieben. Die Elektrodenwelligkeit hat in der DMM zur Auswirkung der

Fehlerbilder auf Folgeprozesse (vgl. Tabelle 4-1) die höchste Aktivsumme, d.h. ihr wird in der *iwb*-Forschungsproduktionslinie der größte Einfluss auf die Weiterverarbeitung zugeschrieben. Die Forderung des Standards IEEE 1725:2011 nach Möglichkeiten zur Erkennung von Formabweichungen bekräftigt dies. Letztlich handelt es sich nicht um einen punktuellen Fehler, d.h. die Auswirkung auf den Ausschuss ist groß. Damit kommt der Messung der Ebenheit eine große technische und wirtschaftliche Bedeutung zu. Hier ist ein klarer Handlungsbedarf erkennbar. In Abschnitt 5.3 wird detailliert auf die spezifischen Anforderungen an die Messung, die prototypische Umsetzung und die Auswertung der Messdaten eingegangen.

Zur Prüfung bzw. Messung der **Haftfestigkeit** gibt es viele Möglichkeiten. Diese sollen im Rahmen dieser Arbeit nicht im Detail bewertet werden. Hier sei auf Abschnitt 3.1 und die dort zitierten Studien verwiesen. Die Verfahren unterscheiden sich u.a. durch die Belastungsfälle. Der Dornbiegeversuch kann bspw. die Biegebeanspruchung, wie sie beim Wickeln einer Zelle vorkommt, abbilden. Es wird jedoch unmittelbar kein quantitativer Wert gewonnen. Hierfür braucht es anschließende Untersuchungen (bspw. mittels Lichtmikroskopie). Außerdem unterscheiden sich die Verfahren darin, ob sie Adhäsion oder Kohäsion beschreiben. Ritzversuche wie SAICAS sind im Vorteil, da orts aufgelöst Informationen gewonnen werden können. Weit verbreitet sind Schäl- und Abreißversuche, wie aus der Literatur hervorgeht. Ein entscheidender Vorteil ist die vergleichsweise einfache Umsetzung in einer UPM. Dieser drückt sich auch durch die geringen Kosten aus. Eine unverbindliche Preisanfrage bei DAIPLA WINTES CO., LTD., dem Hersteller der SAICAS-Geräte, ergab, dass der Preis im Vergleich zur Implementierung des Schäl- bzw. Abreißversuchs in einer UPM im Verhältnis von ca. 10:1 steht. Dies ist ein klarer Vorteil des Schäl- bzw. Abreißversuchs. Durch die Arbeit von HASELRIEDER ET AL. (2015) ist der Abreißversuch *de facto* Standard im Forschungscluster ProZell<sup>28</sup>, wo die Ergebnisse dieser Dissertation weitestgehend erarbeitet wurden. Dadurch wird die Vergleichbarkeit der Ergebnisse erhöht, weshalb dieser umgesetzt wurde.

Die mechanischen Fehlerbilder betreffen die Elektroden- und Beschichtungsmechanik. In der Literatur wurden für beide nach entsprechender Probenvorbereitung hauptsächlich Zugversuche verwendet. Für die Untersuchung der Beschichtungsmechanik hat sich zusätzlich die Nanoindentierung etabliert. Vorversuche, die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführt wurden, haben den mikromechanischen Charakter der Methode und ihre Eignung zur Untersuchung der

---

<sup>28</sup> <https://prozell-cluster.de/>, Zugriff am 07.12.2021.

Beschichtungsmechanik, nicht aber der Elektrodenmechanik, bestätigt. Zur Untersuchung der Elektrodenmechanik, namentlich der **Elektrodenversprödung** und des **Folienrisses**, werden hingegen ‚makromechanische‘ Methoden benötigt.

Auf den ersten Blick kann der Zugversuch beide Fehlerbilder abbilden. Durch Analyse des Kurvenverlaufs ist erkennbar, ob die Elektrode spröde ist, d. h., ob keine oder nur eine geringe plastische Verformung zu beobachten ist. Um zusätzlich das Reißverhalten zu beschreiben, bestimmt HASELRIEDER (2016, S. 164 ff.) auf Grundlage von Zugversuchen die Reißfestigkeit.

Die Prüflinge wurden gemäß der Form H der Norm DIN 50125 (S. 15) mit 250 mm Gesamtprobenlänge zugeschnitten. In der Literatur wird die Probenform und v. a. die -länge nicht immer genannt. Proben mit einer Länge unter 100 mm sind jedoch nicht zu erwarten. Werden die Proben zusätzlich zur MR quer zu dieser entnommen, um bspw. wie WANG ET AL. (2018, S. 267) die Materialanisotropie zu untersuchen, kann dies einschränkend sein. Die Beschichtungsstreifen könnten je nach Zelldesign auch schmaler ausfallen, wodurch das Reißverhalten nicht quer zur MR untersucht werden könnte. Ohnehin entstehen Folienrisse selten im beschichteten Bereich, sondern zumeist am Elektrodenrand. V. a. der Übergang vom Ableiter zur Beschichtung wird stark beansprucht, insbesondere bei sprödem Material. Durch die Faltenbildung am Ableiter und Beschichtungsrand entstehen beim Kalandrieren Knicke und Beulen, die im Kontakt mit den Leitwalzen durch unterschiedliche Belastungsarten einen Folienriss verursachen können.

In Hinsicht auf den Belastungsfall ist der von NOELLE ET AL. (2018) verwendete Schertest von Interesse. Streng genommen handelt es sich um einen sog. *shear punch test* (SPT). In der Scherzone zwischen Stempel und Matrize treten nämlich keine reinen Scherbeanspruchungen auf, sondern zusätzlich Druckspannungen. Die Elektroden werden in den nachfolgenden Prozessen verschiedenen Belastungen (z. B. Zugspannung zwischen und Druckspannung auf den Leitwalzen) ausgesetzt, die sich nicht gleichmäßig verteilen (vgl. die Ausführungen zur Auflagefläche der Elektrode auf den Leitwalzen in Abschnitt 4.2.2). Der SPT könnte die mehrdimensionale Spezifität der Belastungen besser darstellen. Ein weiterer Vorteil im Vergleich zum Zugversuch ist die geringere Probengröße. Auf der Elektrodenfläche können Proben aus beliebigen Positionen entnommen werden, um lokale Informationen zu gewinnen. Zuletzt ist die Probenpräparation einfach, da zum einen die gleichen Elektrodenstanzlinge wie beim Abreißversuch verwendet werden, zum anderen keine komplizierte Probeneinspannung erforderlich ist (z. B. Zentrierung o. Ä.).

Die Eignung des SPT zur Beschreibung der Elektrodenversprödung muss untersucht werden. In zahlreichen Publikationen wurde von einer Korrelation zwischen dem SPT und dem Zugversuch berichtet (MASOUDPANAH ET AL. 2011). Zur Untersuchung von spröden Materialien wird der Biegeversuch dem Zugversuch teils vorgezogen, da das Versagensverhalten beim Zugversuch messtechnische Probleme bereiten kann (ZWICKROELL GMBH & CO. KG 2021). ANTARTIS ET AL. (2015) und HASELRIEDER (2016) kombinieren daher die Zugprüfung mit bildgebenden Verfahren, was die Komplexität des Messsystems erhöht. Ein weiterer Grund ist die getrennte Messung von Beschichtung und Substrat, die aber bei doppelseitigen Beschichtungen nicht möglich und ohnehin nicht notwendig ist, da die Elektrode die Eigenschaften eines Komposits besitzt (HASELRIEDER 2016, S. 165).

Als Biegeversuch bietet sich der Drei-Punkt-Biegeversuch an, der bereits von NOELLE ET AL. (2018) für Elektroden eingesetzt wurde. Dieser lässt sich mit dem Abreißversuch und der SPT in einer UPM umsetzen. In Anlehnung an Normen für Metalle, Kunststoffe und faserverstärkte Kunststoffe (Norm DIN EN ISO 178, Norm DIN EN ISO 7438, Norm DIN EN ISO 14125) lassen sich Auswertungsmethoden ableiten, wodurch die Vergleichbarkeit der Ergebnisse erhöht wird. Außerdem sind die Prüflinge mit einer Breite von 12,5 mm (NOELLE ET AL. 2018, S. 127) kompakt genug, um Prüfungen in Längs- und Querrichtung zur Untersuchung der Materialanisotropie zu ermöglichen.

Andere Biegeversuche zielen darauf ab, die Elektrodenflexibilität zu beschreiben. Die Elektrodenversprödung geht mit einer Zunahme der Biegesteifigkeit einher, was zu einer Abnahme der Elektrodenflexibilität führt. Für die Verarbeitung in Folgeprozessen ist eine gewisse Flexibilität notwendig, um Folienrisse zu vermeiden. Der in Abschnitt 3.1 beschriebene *Loop Stiffness Test* ist geeignet, um die Flexibilität von Elektroden in Bezug auf das Flachwickeln zu untersuchen. Leider werden keine genauen Angaben zur Probengeometrie und zum genauen Prüfablauf gemacht. GUPTA ET AL. (2020) beschreiben hingegen detailliert den entwickelten U-Biegeversuch. Das Verfahren ermöglicht die Untersuchung des Biegeverhaltens auf Dehnung und Stauchung hinsichtlich der mechanischen Beanspruchung der Elektroden im Betrieb. Die Voraussetzung für seine Nutzung sind aber einseitig beschichtete Elektroden. In dieser Arbeit soll jedoch die Makromechanik an doppelseitig beschichteten Elektroden untersucht werden. Weiter besitzen die Elektroden mit 51,80% eine sehr hohe Porosität. Es ist fraglich, ob der U-Biegeversuch mit stark verdichteten, biegesteifen Elektroden umsetzbar ist. Außerdem sind die Prüflinge 100 mm lang, was die Probenentnahme quer zur MR einschränkt.

Zusammenfassend wurden für die Untersuchung der Haftfestigkeit der Abreißversuch und für die Elektrodenmechanik der SPT und der Dreipunkt-Biegeversuch<sup>29</sup> ausgewählt. Dabei wird der SPT primär zur Beschreibung des Reißverhaltens eingesetzt. Zur Untersuchung der Elektrodenversprödung bzw. -flexibilität wird zusätzlich der Drei-Punkt-Biegeversuch herangezogen und mit dem SPT verglichen. Verfahren zur Beschreibung der Ebenheit werden in Abschnitt 5.3 gesondert behandelt.

### 5.2 Abreiß-, Biege- und Scherversuch

I. Allg. zeigt sich, dass die Normen zu Messverfahren zur Charakterisierung von Folien gängige Materialien wie bspw. Metalle, Kunststoffe oder textile Flächengebilde betreffen. Composite wie Batterieelektroden werden nicht adressiert. In wissenschaftlichen Publikationen wurden Messverfahren eingesetzt, wobei die Auswertung der Messdaten nur spärlich erläutert wurde. Daher werden nachfolgend der prototypische Aufbau für Abreiß-, Biege- und Scherversuch vorgestellt. Es folgt eine kritische Auseinandersetzung mit den Auswertungsmethoden. Für den Abreißversuch sei auf HASELRIEDER ET AL. (2015) verwiesen. Die folgenden Darstellungen haben keinen normativen Charakter, dienen aber als Grundlage für eine Normung und machen die Versuchsauswertung (vgl. Abschnitt 6.3) nachvollziehbar.

#### 5.2.1 Prototypische Umsetzung

Zur prototypischen Umsetzung der ausgewählten Messverfahren zur Untersuchung der Schichtablösung, der Elektrodenversprödung und des Folienrisses wurde eine am *iwb* entwickelte und gebaute UPM eingesetzt (BILLOT 2021). Dabei handelt es sich um eine Konstruktion aus Aluminium-Strangpressprofilen mit versteifenden Frästeilen. Zur Ausführung der Bewegungen ist darauf eine Linearachse mit Kugelgewindetrieb (CKK-145-NN-1, BOSCH REXROTH AG) montiert. Die UPM lässt sich für Abreiß-, Biege- und Scherversuch an Elektroden umrüsten (vgl. Anhang A7).

Je nach Prüfung sind unterschiedliche Kraftbereiche relevant. Für den Abreißversuch wird ein Zug- und Druckkraftaufnehmer (F2210, TECSIS GMBH) mit einem Messbereich bis 2 kN und einer Abtastrate von 5 kHz eingesetzt. Beim Biege- und Scherversuch werden geringere Kräfte gemessen, weshalb Miniatur-Kraftaufnehmer

---

<sup>29</sup> Zur besseren Lesbarkeit werden der SPT und der Drei-Punkt-Biegeversuch im Folgenden vereinfacht Scher- bzw. Biegeversuch genannt.



mit 20 bzw. 50 N Nennkraft (F2808, TECSIS GMBH) benötigt werden. Die UPM ist für die entsprechende Messung mit Umbausätzen ausgestattet. Antriebsseitig werden die Kraftmessdose und der obere Prüfkopf mit einer Adapterplatte befestigt. Darunter befindet sich die Grundplatte, auf welcher der untere Prüfkopf montiert ist. Abbildung 5-2 zeigt die entsprechenden Prüfstempel und Probenaufnahmen.

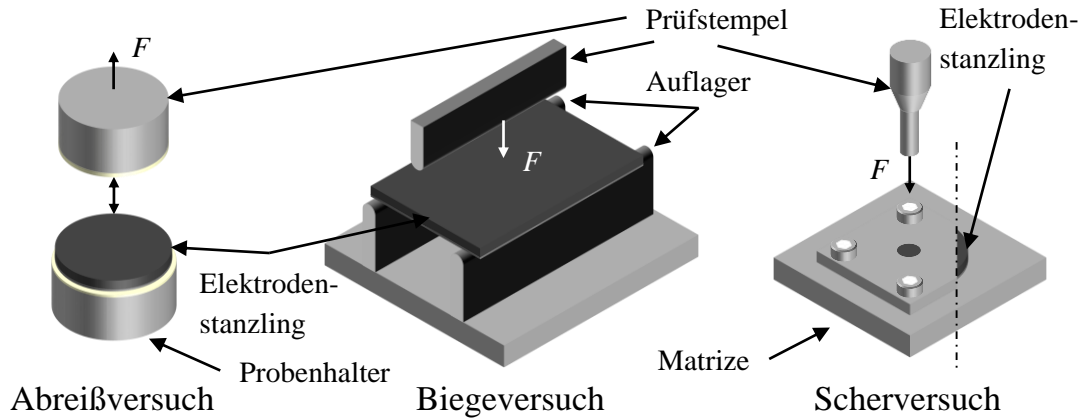


Abbildung 5-2: Umrüstsätze an der UPM für Abreiß-, Biege- und Scherversuch

Für den Abreißversuch wird ein kreisrunder Elektrodenstanzling mit 15 mm Durchmesser ausgestanzt (Handstanze, NOGAMIGIKEN CO., LTD.) und auf einem Probenhalter mit doppelseitigem Klebeband (tesafix 5696, extra strong, TESA SE) befestigt. Das Klebeband wird ebenso auf dem oberen Prüfstempel angebracht. Für den Scherversuch wird dieselbe Probengeometrie verwendet. Der Probenkörper wird zwischen zwei Aluminiumplatten fixiert. Zentrisch befindet sich jeweils eine Durchgangsbohrung mit einem Durchmesser von 3,8 mm. Der Durchmesser des zylindrischen Prüfstempels beträgt 3,2 mm. Für den Biegeversuch unterscheidet sich die Probengeometrie. Es werden rechteckige Elektrodenblätter mit 25 mm Breite und 30 mm Länge mit einer Stanzform (Maßanfertigung, KIERMEIER STANZFORMEN E. K.) angefertigt. Die Stanzlinge werden zwischen zwei Auflagern positioniert. Die lange Seite verläuft parallel zum Prüfstempel. Beide Auflagern sowie der Prüfstempel sind mit einem Radius von 1 mm abgerundet, um einen Linienkontakt zu gewährleisten. Die Auflagern werden in einem Abstand von 10,5 mm positioniert. Daraus ergibt sich eine Stützweite von 12,5 mm. Diese Maße wurden für diese Arbeit größtenteils von NOELLE ET AL. (2018) übernommen.

Der Prüfablauf wurde als Zustandsautomat in Labview 2019 programmiert und ist als Programmablaufplan in Abbildung 5-3 dargestellt. Die Messparameter des Abreißversuchs wurden von HASELRIEDER ET AL. (2015) übernommen; für den Biege- und Scherversuch wurde eine Studie zu ihrer Ermittlung durchgeführt.

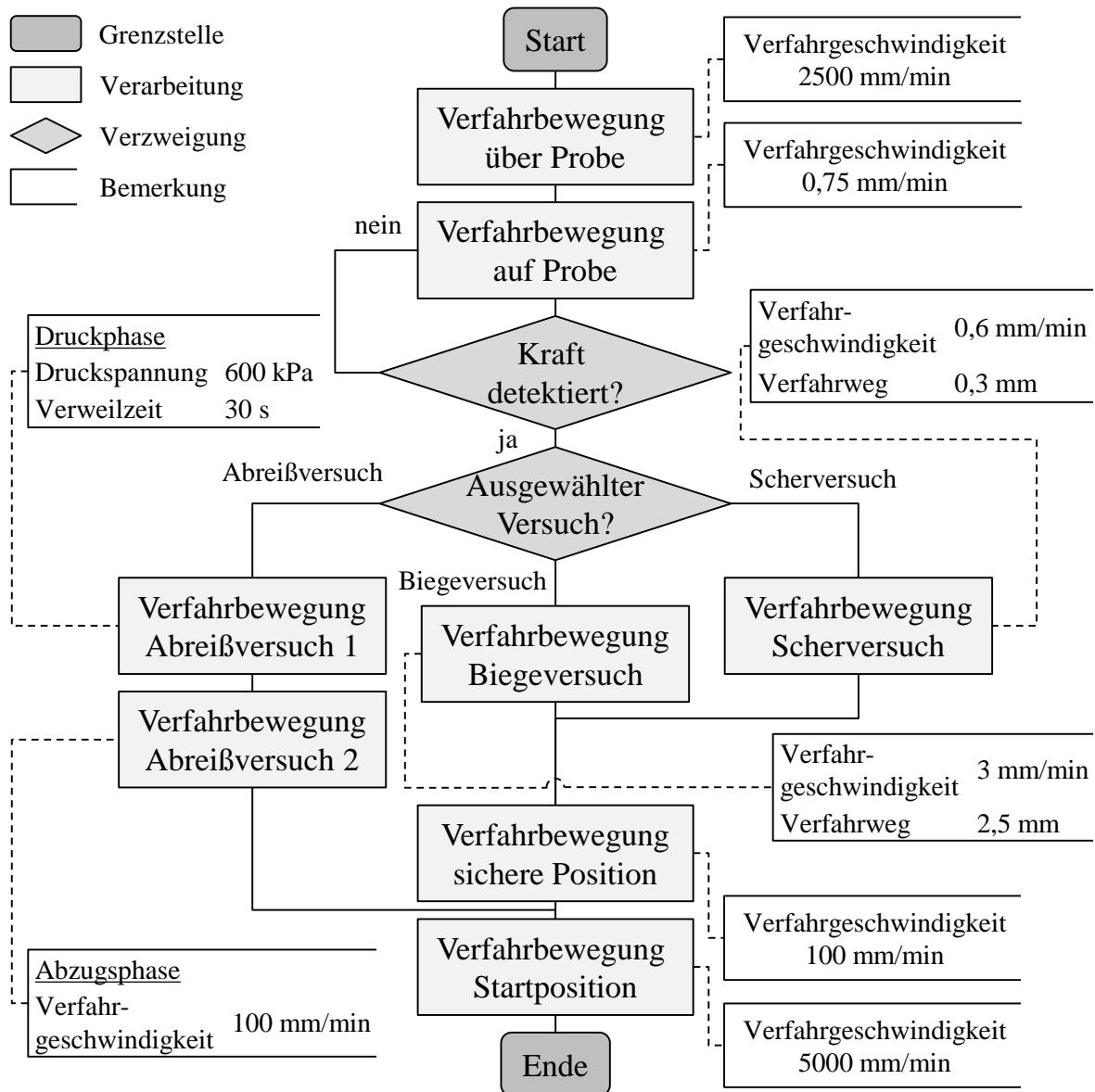


Abbildung 5-3: Programmablaufplan des Abrei-, Biege- und Scherversuchs in Anlehnung an HASELRIEDER ET AL. (2015) und eigene Untersuchungen

Im Folgenden wird der Prüfablauf erläutert, der grundsätzlich aus fünf Schritten besteht. Als Erstes verfährt der obere Prüfkopf im Eilgang mit 2500 mm/min bis auf wenige Millimeter über die Elektrode. Es folgt ein langsames, kraftgeregeltes Verfahren auf die Elektrode mit 0,75 mm/min, bis eine Kraft registriert wird. Berührt der Prüfkopf die Elektrodenoberfläche, findet eine Speicherung der Position statt und der dritte Schritt, die eigentliche Messung, beginnt. Für den Abreiversuch wird die Elektrode zuerst mit dem oberen Prüfstempel auf Druck belastet, um eine gleichmäßige Klebeverbindung herzustellen, bevor der eigentliche Abreiversuch startet. Für den Biege- und Scherversuch passt sich ab dem Registrieren der

Elektrodenoberfläche die Geschwindigkeit des Antriebs an und der Prüfkopf verfährt weiter, bis ein vorgegebener Weg zurückgelegt ist. Ist die Messung abgeschlossen, bewegt sich der Prüfkopf im vierten Schritt mit 100 mm/min in eine sichere Position. Abschließend lässt sich der Prüfkopf bei allen Versuchen mit 5000 mm/min wieder in die Startposition verfahren.

Die Messwerte werden fortlaufend in einer Tabelle erfasst und nach jedem Versuch gespeichert. Die Datei beinhaltet pro Zeitschritt einen Zeitstempel, den Weg und die gemessene Kraft. Zusätzlich werden zur Erleichterung der Auswertung die Einträge markiert, die der Messung entsprechen. Der nächste Abschnitt befasst sich mit der Auswertung der Rohdaten.

### 5.2.2 Messdatenauswertung

Die Auswertung der Messdaten ist für diese Arbeit besonders wichtig, weil daraus die Antwortgrößen abgeleitet werden. Diese ermöglichen später in Abschnitt 6.3 die statistische Versuchsauswertung.

Die Auswertung des **Abreißversuchs** wird gemäß HASELRIEDER ET AL. (2015) durchgeführt. Als Wert für die Schichthaftung wird die **Haftfestigkeit**  $\sigma_H$  nach Gleichung 5-1 berechnet.

$$\sigma_H = \frac{F_{\max,H}}{A_H} \quad (\text{Gl. 5-1})$$

Sie entspricht dem Quotienten aus der maximalen Abzugskraft  $F_{\max,H}$  und der Probenfläche  $A_H$ . Gemäß der Norm DIN EN ISO 4624 (S. 10) werden mindestens sechs Bestimmungen durchgeführt und daraus der Mittelwert gebildet, wobei Ausreißer ungültig sind.

Der **Biegeversuch** wird in der Literatur unterschiedlich ausgewertet. Die Normen sind werkstoffspezifisch. Bei duktilen Werkstoffen wie bspw. Metallen wird der Biegeversuch zur „Bestimmung der Biege-Fließgrenze und des größtmöglichen Biegewinkels“ verwendet (BERGER & KLOOS 2011, S. E26). Nach Norm DIN EN ISO 7438 (S. 11) ist „das Ausbleiben von Rissen [sic!] die ohne Vergrößerungsmittel festgestellt werden können, ein Kriterium, dass die Probe die Biegeprüfung bestanden hat“. Vorversuche mit einem Dornbiegeprüfer haben aber gezeigt, dass an Kathoden Risse nicht oder nur mit Lichtmikroskopie zu erkennen waren. Außerdem verliefen die Risse nur durch die Beschichtung. Ein Riss in der Beschichtung<sup>30</sup> ist ein Ausdruck

<sup>30</sup> Die Methode würde sich ggf. für das Fehlerbild **Riss in der Beschichtung** (vgl. Abschnitt 4.2.1) eignen, das aber nicht detailliert untersucht wurde.

mangelnder Flexibilität, aber kein Beleg für ein sprödes Verhalten der Elektrode als Ganzes. Folglich wurde die Methode nicht weiter berücksichtigt.

Bei spröden Werkstoffen wird die Biegefestigkeit bestimmt (BERGER & KLOOS 2011, S. E26). Bei Kunststoffen wird hierzu die maximale Biegespannung bzw. Biegespannung beim Bruch ermittelt (BURR & HARSCH 2011, S. E77). Darüber hinaus lässt sich nach Norm DIN EN ISO 178 bzw. Norm DIN EN ISO 14125 der Biegemodul berechnen, der dem Verhältnis der aufgetragenen Spannung zur Durchbiegung entspricht. Er ist ein Maß für die Steifigkeit des Materials im elastischen Bereich. Ein geringer Biegemodul entspricht einer geringen Steifigkeit und folglich einer höheren Flexibilität, was für Elektroden vorteilhaft ist.

Wie in Abschnitt 5.1.2 erläutert, stehen für Elektroden keine Normen zur Verfügung. NOELLE ET AL. (2018) berechnen den Biegemodul und die Biegesteifigkeit (engl. *bending stiffness*). Tatsächlich wird fälschlicherweise von Biegesteifigkeit gesprochen, da lediglich das Verhältnis der aufgetragenen Kraft zur Durchbiegung in N/mm angegeben wird. Im Vergleich zu NOELLE ET AL. (2018) wurden daher Anpassungen und Erweiterungen zur Beschreibung der Biegeeigenschaften vorgenommen, die im Folgenden erklärt werden.

Für diese Arbeit wurde zunächst der Biegemodul ausgewählt, da zum einen Elektroden nach dem Kalandrieren in erster Linie ein elastisches Verhalten aufweisen und zum anderen kein Bruch zu erwarten ist. Der **Biegemodul**  $E_B$  wurde in dieser Arbeit nach Gleichung 5-2 berechnet.

$$E_B = \frac{l_B^3 \cdot m}{4 \cdot b_E \cdot (\delta_E \cdot 10^{-3})^3} \quad (\text{Gl. 5-2})$$

Dabei entspricht  $l_B$  der Stützweite zwischen den Auflagern,  $b_E$  der Probenbreite und  $\delta_E$  der Elektrodendicke. Die Steigung der Ausgleichsgeraden  $m$  wird nach Gleichung 5-3 berechnet.

$$m = \frac{\Delta F_B}{\Delta s_B} \quad (\text{Gl. 5-3})$$

Sie ( $m$ ) ist der Quotient aus der Differenz der gemessenen Kraft  $F_B$  und der Durchbiegung  $s_B$  zwischen zwei festgelegten Punkten. Der Biegemodul wird als Sekantenmodul berechnet, d.h. bei einem bzw. zwischen bestimmten Spannungs- oder Dehnungswerten. Die **Dehnung**  $\varepsilon_B$  wird nach Gleichung 5-4 berechnet.

$$\varepsilon_B = \frac{6 \cdot s_B \cdot (\delta_E \cdot 10^{-3})}{l_B^2} \quad (\text{Gl. 5-4})$$

Nach Norm DIN EN ISO 178 wird der Biegemodul zwischen 0,05 % und 0,25 % Randfaserdehnung bestimmt. Wie in Gleichung 5-4 zu sehen, ändert sich die Dehnung mit der Elektrodendicke. In der Werkstoffprüfung werden in der Regel Prüflinge mit gleicher Dichte untersucht, weshalb die Dicke zur Anpassung der Querschnittsfläche berücksichtigt wird. Bei kalandrierten Elektroden müsste die Durchbiegung für jede Elektrodendicke neu berechnet werden. Außerdem ist es fraglich, ob der gleiche Ansatz für partikuläre Systeme sinnvoll ist, da die Dichte durch die Anpassung der Porosität verändert wird. NOELLE ET AL. (2018) legen unabhängig von der Probendicke 0,1 mm Durchbiegung als Vereinfachung und Grundlage für alle Auswertungen fest.

Die Dicke von Elektroden variiert zwischen ca. 100  $\mu\text{m}$  und 200  $\mu\text{m}$  (SUDANO 2019, S. 1292). Wird die Elektrodendicke in Gleichung 5-4 eingesetzt, entspricht eine Durchbiegung von 0,1 mm im Mittel einer Randfaserdehnung von 0,05 %. Gemäß Norm DIN EN ISO 178 entspricht der Wert dem Beginn und nicht dem Ende der Biegemodulermittlung, das bei einer Durchbiegung von ca. 0,5 mm liegt. Abbildung 5-4 a) zeigt jedoch an beispielhaften Versuchsdaten, dass der Kurvenverlauf bei einer Randfaserdehnung von 0,25 % den linear-elastischen Bereich bereits verlässt. Daher muss der Biegemodul für Elektroden bei geringeren Dehnungen berechnet werden.

Basierend auf den Kurvenverläufen aus Abbildung 5-4 a) erscheint die Biegemodulermittlung bei 0,1 mm Durchbiegung sinnvoll, da es noch dem linear-elastischen Bereich entspricht. Die Voraussetzung ist jedoch, dass der Beginn der Messung mit dem Koordinatenursprung übereinstimmt. Wie in Abbildung 5-4 b) zu sehen, ist diese Bedingung aufgrund von Eigenspannungen in der Elektrode, die zu Messartefakten führen, nicht immer erfüllt. Die rote Kurve zeigt eine bogige Elektrode. Die Messung wird durch frühzeitiges Berühren der Oberfläche begonnen und die Elektrode zuerst plan gedrückt, wobei kein starker Kraftanstieg zu beobachten ist. Die Kurve verläuft daher zunächst konvex und nicht wie üblich konkav. Die schwarze Kurve zeigt ein Verrutschen der Elektrode, was zu Sprüngen in der Kraftaufnahme führt. Eine Biegemodulermittlung ist hierdurch nicht möglich, v. a. nicht, wenn die Bestimmung bei 0,1 mm ohne Berücksichtigung des Kurvenverlaufes festgelegt ist. Messungen mit konvexer Kurvensteigung müssen verworfen werden, auch wenn die Kurve anschließend ihren üblichen konkaven Verlauf annimmt.

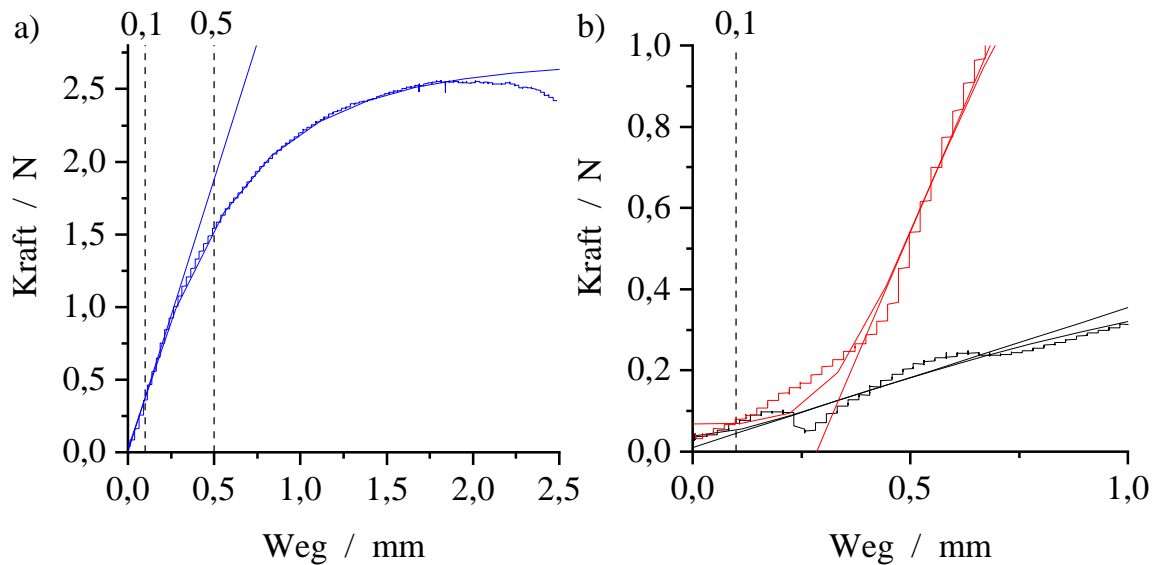


Abbildung 5-4: a) Repräsentative Messdaten und b) Messartefakte inkl. Ausgleichsfunktion und -gerade des Biegeversuchs

Um eine automatisierte Auswertung ohne Fehlinterpretation durch Messartefakte zu gewährleisten, wurde die Biegemodulermittlung angepasst. In Abbildung 5-4 ist zunächst zu sehen, dass die Rohdaten der Messung einer Treppenkurve entsprechen. Da die Linearachse eine langsamere Abtastrate als der Kraftaufnehmer besitzt, werden zu jedem Wegschritt mehrere Kraftaufnahmen gemacht. Anstatt die Treppenkurve lediglich zu glätten, wurde eine Ausgleichsfunktion zur Anpassung an den Kurvenverlauf ermittelt. Dabei wurde eine logistische Regression mit fünf Parametern (sog. 5PL) nach Gleichung 5-5 ausgewählt, da sie auch den S-förmigen Kurvenverlauf anpassen kann, wie ihn die rote Kurve in Abbildung 5-4 b) zeigt.

$$f(x) = D + \frac{A - D}{\left(1 + \left(\frac{x}{C}\right)^B\right)^E} \quad (\text{Gl. 5-5})$$

Die Parameter  $A$  und  $D$  entsprechen dem Wert der horizontalen Asymptote für  $x \rightarrow -\infty$  bzw.  $x \rightarrow +\infty$ .  $B$  beschreibt die Steigung der Kurve im Übergang zwischen den beiden Asymptoten.  $C$  ist der Wendepunkt, d. h. der Punkt auf der Kurve, an dem die Krümmung ihre Richtung bzw. ihr Vorzeichen ändert.  $E$  beschreibt die Asymmetrie der Kurve (die Kurve ist symmetrisch, wenn  $E=1$ ). Die Ausgleichsfunktion wurde für  $0 < x < 1,999$  berechnet. In diesem Bereich wird das linear-elastische Verhalten vollständig abgebildet. Das Regressionsmodell wurde bzgl. des erreichten Bestimmtheitsmaßes überprüft ( $R^2 > 99\%$ ). Über die Ableitung der Funktion wurde die größte Steigung der Kurve ermittelt. An dieser Position wurde die Ausgleichsgerade festgelegt, die zur Biegemodulermittlung herangezogen wurde.

Die **Biegesteifigkeit**  $\sigma_B$  wird gemäß DIN 178 nach Gleichung 5-6 berechnet.

$$\sigma_B = \frac{3 \cdot F_{\max,B} \cdot l_B}{2 \cdot b_E \cdot \delta_E \cdot 10^{-3}} \quad (\text{Gl. 5-6})$$

Dabei wird die Maximalkraft  $F_{\max,B}$  auf die Probengeometrie bzw. -dicke normiert, wie bereits bei der Berechnung des Biegemoduls diskutiert. Bei gleicher Maximalkraft steigt die Biegespannung mit Abnahme der Elektrodendicke. HASELRIEDER (2016, S. 165) beschreibt beim Zugversuch das Phänomen, dass durch Abnahme der Elektrodendicke beim Kalandrieren die Zugfestigkeit zunimmt, obwohl die Zugkräfte absolut sinken. Möglicherweise berechnen NOELLE ET AL. (2018) daher das Verhältnis von Kraft zu Weg bei 0,1 mm Weg, ohne die Elektrodendicke zu berücksichtigen.

Um den Beitrag des Kalandrierens an der Steifigkeitszunahme durch Dickenabnahme nicht überzuinterpretieren, wurde, analog zu NOELLE ET AL. (2018), die Steigung der Ausgleichsgeraden zum Ausdruck der Biegesteifigkeit ausgewählt. Es wurde jedoch das in dieser Arbeit entwickelte Verfahren zur Bestimmung des Biegemoduls verwendet. Jeder Versuch wurde mindestens dreimal wiederholt, um eine Mittelwertbildung inkl. eines Ausreißertests zu ermöglichen.

Zusammenfassend ist die gewählte Auswertungsmethode adaptiv, da der Biegemodul bzw. die Steigung der Ausgleichsgeraden unter Berücksichtigung des Kurvenverlaufes und nicht zu einem festen Wert ermittelt wird. Wie in Abbildung 5-4 a) zu sehen ist, gibt die größte Steigung der Kurve bzw. Ausgleichsgeraden die Steifigkeit wieder. Zudem ist das Verfahren durch die Berechnung der Ausgleichsfunktion robust gegen Messartefakte.

Zur Beschreibung des Folienrisses und der Elektrodenversprödung wurde in Anlehnung an NOELLE ET AL. (2018) der **Scherversuch** ausgewählt. In der entsprechenden Veröffentlichung wird zur Beschreibung der Schereigenschaften keine Scherfestigkeit oder Ähnliches berechnet, sondern der Kurvenverlauf diskutiert. Für eine statistische Versuchsauswertung, wie sie in Abschnitt 6.3.4 durchgeführt wird, werden Zahlenwerte als Antwortgrößen benötigt.

Bevor auf die Auswertung des Scherversuchs eingegangen wird, empfiehlt es sich, die Einflüsse im Scherspalt zu beschreiben. In Abbildung 5-5 ist links das Prinzip des SPT dargestellt. Der Stempel dehnt die Elektrode, bevor der Folienriss eingeleitet wird. Durch den Spalt  $d_S$  zwischen Stempel und Matrize entsteht in der ringförmigen Scherzone keine reine Scherbeanspruchung, sondern ein multiaxialer, ungleichmäßiger Spannungszustand, der auf eine Scherung kombiniert mit

Druckspannungen zurückgeht. Die Art der mechanischen Spannung in der Scherzone wird maßgeblich von der Größe des Scherspalts bestimmt (HANKIN ET AL. 2000).

Die Abmessungen für den Stempel, die Matrize und folglich den Scherspalt wurden von NOELLE ET AL. (2018) übernommen. Für eine Übertragbarkeit der Ergebnisse auf den Zugversuch müsste der Scherspalt und Stempeldurchmesser untersucht werden. Dahingehend sei auf weiterführende Literatur verwiesen (ELWAZRI ET AL. 2006, GUDURU ET AL. 2007). Ferner lassen sich die Messergebnisse so mit NOELLE ET AL. (2018) vergleichen und plausibilisieren.

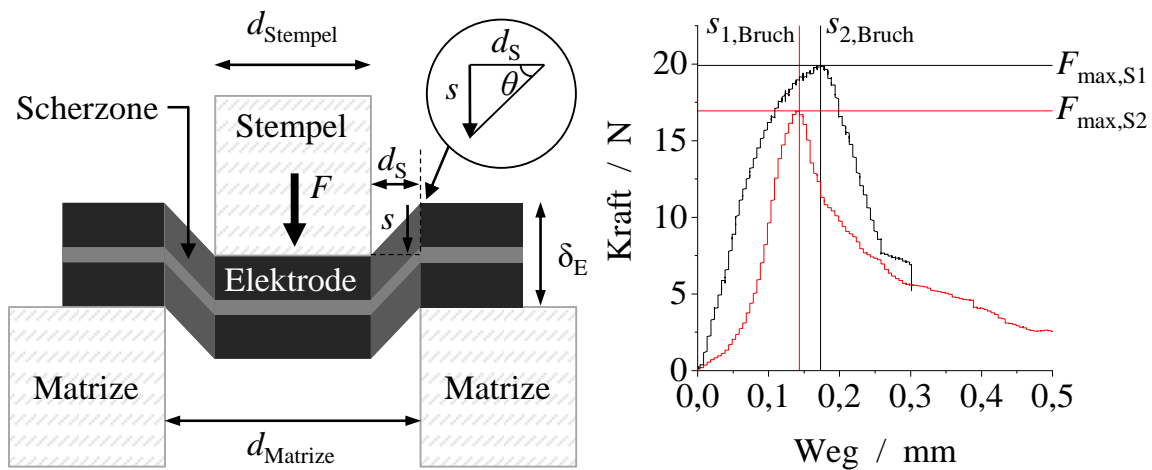


Abbildung 5-5: Prinzip des Scherversuchs in Anlehnung an GUDURU ET AL. (2005, S. 308) (links) und repräsentative Messdaten (rechts)

Die rechte Hälfte von Abbildung 5-5 zeigt zwei beispielhafte Kraft-Weg-Kurven, die im SPT aufgezeichnet wurden. Es wird die maximale Kraft zum Abscheren der Elektrode gemessen. Die **Scherfestigkeit**  $\tau_s$  wird gemäß Gleichung 5-7 nach LUCAS ET AL. (1986) berechnet.

$$\tau_s = \frac{F_{\text{max,S}}}{2 \cdot \pi \cdot \left( \frac{d_{\text{Stempel}} + d_{\text{Matrize}}}{4} \right) \cdot \delta_E \cdot 10^{-3}} \quad (\text{Gl. 5-7})$$

Dabei entspricht  $F_{\text{max,S}}$  der maximal gemessenen Scherkraft,  $d_{\text{Stempel}}$  dem Stempeldurchmesser,  $d_{\text{Matrize}}$  dem Matrizendurchmesser und  $\delta_E$  der Elektrodendicke.

Hier wird die Umfangsfläche inmitten des Scherspalts berechnet, um die Verhältnisse in der Scherzone näherungsweise zu beschreiben. Wie für den Biegeversuch erläutert wurde, führt auch bei der Berechnung der Scherfestigkeit die Abnahme der Elektrodendicke zu einer Zunahme der Scherfestigkeit, ohne dass die Scherkraft steigt. Aus diesem Grund wurde zusätzlich die maximale Scherkraft beim Riss ausgewertet.



Zur Beschreibung der Reißdehnung, d. h. der Dehnung der Elektrode bei maximaler Scherkraft, wurde der maximale **Scherwinkel**  $\theta_S$  nach Gleichung 5-8 berechnet.

$$\theta_S = \tan^{-1} \left( \frac{s_{\text{Bruch}}}{\frac{d_{\text{Matrize}} - d_{\text{Stempel}}}{2}} \right) \quad (\text{Gl. 5-8})$$

Der Stempelweg<sup>31</sup> beim Bruch entspricht  $s_{\text{Bruch}}$ . Der Scherwinkel wird durch den Scherspalt beeinflusst. Für den SPT ist der Scherspalt meist deutlich kleiner als der Weg, was zu hohen Werten für die Reißdehnung führt (GUDURU ET AL. 2005, S. 310). Für den gewählten Scherspalt ist dies jedoch nicht zu erwarten, da 0,3 mm in der Größenordnung des Weges beim Bruch liegen. Ein zu kleiner Scherspalt würde die Elektrode vermutlich so zerstören, dass kein Folienriss nachgebildet werden kann. Tatsächlich kommen zu den Scher- und Druckspannungen noch Zugspannungen hinzu.

Zusammenfassend werden für den Scherversuch die Kraft, die erforderlich ist, um die Elektrode zu durchstoßen, und der Weg bzw. Winkel, bei dem dies geschieht, ermittelt. Aus der Scherkraft lässt sich die Scherfestigkeit berechnen, die sich auf den ringförmigen Scherspalt bezieht und die Elektrodendicke berücksichtigt. Die Reißdehnung beschreibt die maximale Verformung vor Auftreten eines Folienrisses.

## 5.3 Planheitsmessung

Die unterschiedlichen geometrischen Fehlerbilder und die einhergehenden negativen Auswirkungen auf die Qualität und Verarbeitbarkeit von Elektroden erfordern wegen der großen technischen und wirtschaftlichen Bedeutung deren Erkennung und Korrektur (vgl. Abschnitt 5.1.2). Zunächst werden Messverfahren aus dem Stand der Technik und Forschung diskutiert und mit den Anforderungen abgeglichen. Anschließend werden der Aufbau und die Funktionsweise des entwickelten Messsystems vorgestellt. Schließlich werden die Datenverarbeitung und -auswertung erläutert.

### 5.3.1 Diskussion der Verfahren aus Stand der Technik und Forschung

In der Literatur sind nur wenige Messverfahren zur Beschreibung der Formabweichung an Elektroden bekannt. Lediglich MAYER ET AL. (2021)

<sup>31</sup> Unter der Annahme, dass bei den untersuchten Materialien die elastische Kompression des Stempels vernachlässigt werden kann (GUDURU ET AL. 2005, S. 309), wurde im prototypischen Aufbau auf eine separate Wegmessung verzichtet.

präsentierten ein Verfahren zur Messung der Dehnung und der Ebenheit (vgl. Abschnitt 3.1). Ferner beschäftigt sich das Flachwalzen mit Messverfahren zur Beschreibung vergleichbarer Formabweichungen (vgl. Abschnitt 2.1.3). Im Folgenden werden diese diskutiert und den Anforderungen gegenübergestellt.

Unter den etablierten Messverfahren beim Flachwalzen sind die Planheitsmessrollen auf den ersten Blick von Interesse. Sie sind *per se inline*, da sie zugleich als Leitwalze fungieren. Es wird kein zusätzlicher Bauraum benötigt. Zudem werden die Systeme in Regelkreisen eingebunden, um eine Anpassung der Parameter ohne Unterbrechung des Prozesses vorzunehmen. Voraussetzung dafür sind allerdings valide Messdaten. Die Auswertung der Radialkräfte könnte jedoch bei Elektroden uneindeutig sein, da es einen Höhenunterschied zwischen den beschichteten Bereichen und den Ableitern gibt. Außerdem ist von hohen Investitionskosten auszugehen, da es sich um eine Spezialanfertigung handelt.

Ökonomisch gesehen ist die geometrische Planheitsmessung im Vorteil, da keine kostspieligen Messsysteme vonnöten sind. Voruntersuchungen an Elektroden haben jedoch gezeigt, dass Elektroden aufgrund ihrer Formlabilität ungeeignet sind. Durch die Handhabung werden weitere Fehler wie bspw. Falten herbeigeführt. Im Nachhinein kann nicht unterschieden werden, welche Verformung durch die Probenpräparation und welche durch das Kalandrieren entstanden sind. Außerdem wurde beobachtet, dass es nach dem Zuschnitt zu einem Spannungsabbau kommt und bspw. die Elektrodenwelligkeit nicht mehr sichtbar ist (MAYER ET AL. 2021, S. 13).

Berührungslose Messsysteme können *inline* eingesetzt werden. Es erfolgt keine Berührung der Probe. Das von MAYER ET AL. (2021) entwickelte Messverfahren ermöglicht vertiefte Untersuchungen zur Verformung von Elektroden im Zuge des Kalandrierens. Die Integration des Messsystems in einen Pilotkalander macht es zu einem probaten Mittel, um Prozessverständnis aufzubauen. Die Umsetzung in der Serienfertigung ist jedoch fraglich. Denn die Elektrodenbereiche, auf denen das Muster aufgesprüht wurde, müssen ausgeschleust werden, was Fehlerkosten verursacht. Außerdem muss die Anlage angehalten werden, um das Muster aufzunehmen. Schließlich sind die Kosten für den optischen 3-D-Scanner verhältnismäßig hoch.

Es zeigt sich, dass berührungslose Messsysteme für den angestrebten Anwendungsfall Vorteile bieten. Das Messverfahren von MAYER ET AL. (2021) erfüllt jedoch nicht alle Anforderungen, sodass im Folgenden das in dieser Arbeit entwickelte Messverfahren vorgestellt wird, welches versucht Vorteile der verschiedenen Systeme in sich zu vereinen. Darunter zählen u. a. geringe Kosten, die

*Inline*-Fähigkeit und Zerstörungsfreiheit. Auf funktionale Anforderungen, die sich aus der Messaufgabe ergeben, wird bei der Vorstellung des Aufbaus und der Funktionsweise im Folgenden eingegangen.

### 5.3.2 Aufbau und Funktionsweise des Messsystems

In Abbildung 5-6 ist schematisch der Aufbau des **Messsystems zur Planheitsmessung** dargestellt. Die Grundkomponenten sind ein auf einem Hochpräzisions-Lineartisch montierter optischer Laser-Sensor und jeweils eine Industrie- und Digitalkamera. Alle Komponenten befinden sich auf der Aufwicklerseite zwischen den Kalandervalzen und der ersten Leitwalze. Der Laser-Sensor dient der Messung der Abweichungen von der Ebenheit und arbeitet nach dem Prinzip der Lasertriangulation. Zur Messung der Fehlerbilder **Elektrodenwelligkeit**, **Wellen am Beschichtungsrand** und **Falten am Ableiter** wird der Laser-Sensor mit dem Lineartisch verfahren. Die Industriekamera nimmt hierbei die Position des Elektrodenbandes auf, um diese dem Lineartisch zur Positionierung zu übergeben. Die Digitalkamera nimmt das Elektrodenband auf und dient der Versuchsdokumentation. Der Aufbau ist in Anhang A8 zu finden. Der in dieser Arbeit eingesetzte Kalandrierer wird an dieser Stelle nicht näher beschrieben, da das Messsystem prinzipiell maschinenunabhängig ist. Für eine detaillierte Beschreibung des Kalandrierers sei auf Anhang A11 verwiesen.

Das entwickelte Messverfahren entspricht grundsätzlich der Laser-Profilometrie. Der Laser-Sensor misst den Abstand zur Oberfläche der Elektrode (1-D). Durch die Bewegung des Elektrodenbandes ändert sich der Abstand zur Oberfläche der Elektrode. Der Laser-Sensor nimmt über die Zeit ein Oberflächenprofil auf (2-D), das entsprechend der in Abschnitt 4.2.1 vorgestellten Formabweichungen infolge des Kalandrierens eine periodische bzw. quasi-periodische Form annimmt. Sind die Bahngeschwindigkeit des Kalandrierers und die Abtastrate des Sensors bekannt, lässt sich das Zeit- in ein Wegsignal umrechnen.

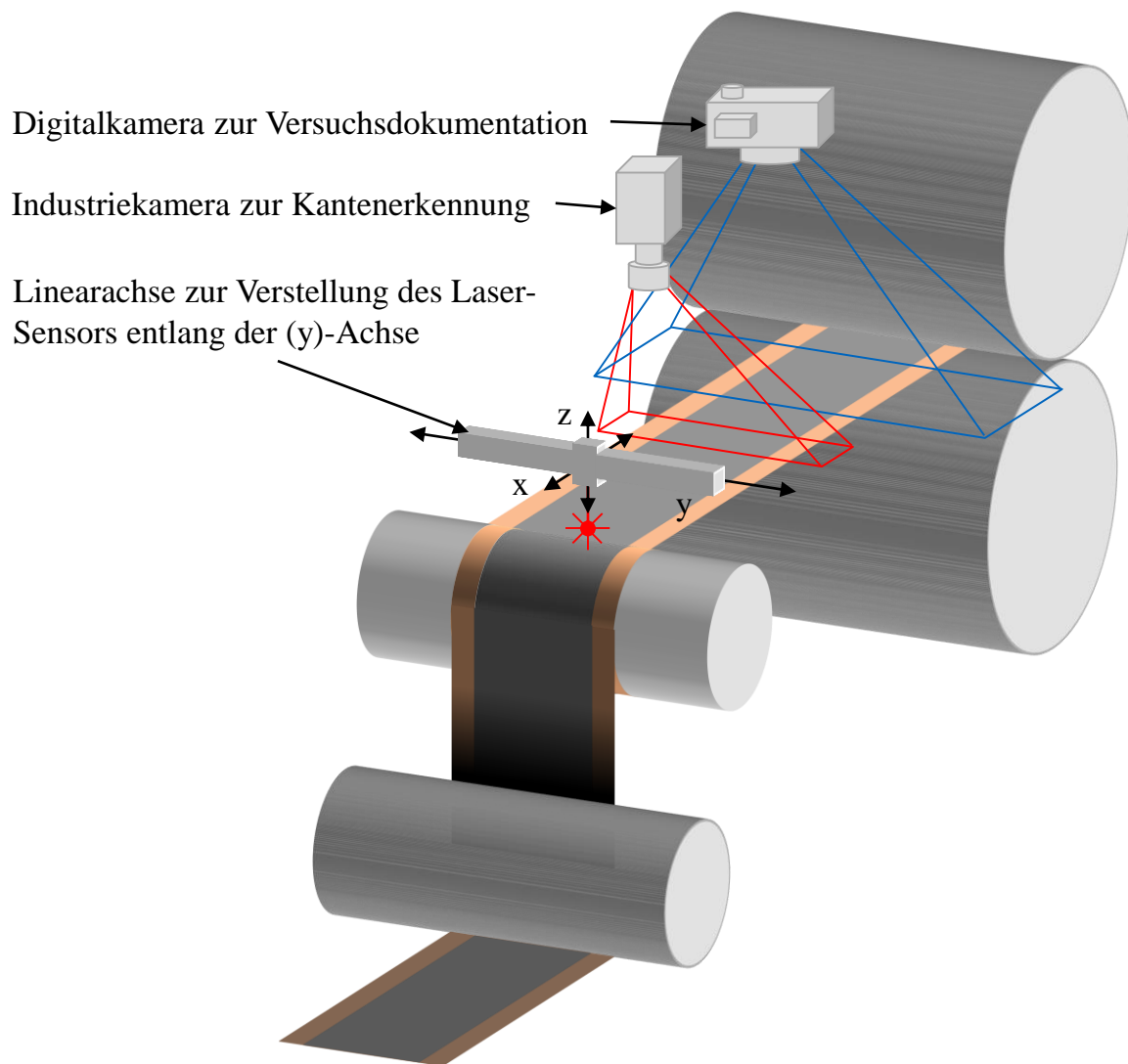


Abbildung 5-6: Schematische Darstellung des Messsystems zur Planheitsmessung

Im Weiteren werden die Auswahl, der Aufbau und die Funktionsweise der einzelnen Komponenten genauer erläutert. Für jedes Messverfahren ist der Sensor von zentraler Bedeutung. Bei der Auswahl sind zahlreiche Kriterien zu berücksichtigen. Zunächst muss bei der Messung der Bandplanheit berücksichtigt werden, dass das Messobjekt nicht fixiert ist. Der Messbereichsanfang muss in ausreichender Entfernung von der Messoberfläche liegen, sodass auch bei Verlassen des Messbereichs eine Berührung des Sensors ausgeschlossen ist, um eine Beschädigung auszuschließen. Der Messbereich selbst muss groß genug sein, um bei Bewegung des Bandes entlang der z-Achse und bei maximaler Amplitude des Fehlerbildes kein Verlassen des Messbereichs zu riskieren, was die Messung unvollständig machen würde. Die Größe des Messbereichs beeinflusst die Auflösung des Sensors. Vergrößert sich der Messbereich, sinkt diese. Die Genauigkeitsanforderungen ergeben sich aus der

geometrischen Ausprägung der Fehlerbilder. Vorversuche haben gezeigt, dass sich die Amplitude und Wellenlänge je nach Verarbeitung auf zehntel bis hundertstel Millimeter unterscheiden. Entsprechend muss der Sensor eine Größenordnung genauer sein, d. h. im  $\mu\text{m}$ -Bereich messen. Bei Bahngeschwindigkeiten von bis zu 100 m/min spielt auch die Abtastrate des Sensors eine wichtige Rolle, um vollständige Kurvenverläufe zu gewährleisten. Die Auflösung in MR, also der Abstand zwischen zwei Messpunkten entlang der x-Achse, berechnet sich nach Gleichung 5-9.

$$d_x = \frac{v_B \cdot 10^3}{60 \cdot f_S} \quad (\text{Gl. 5-9})$$

Dabei entspricht  $d_x$  dem Abstand zwischen zwei Messpunkten,  $v_B$  der Bahngeschwindigkeit und  $f_S$  der Abtastrate des Sensors. So wird mit höchster Bahngeschwindigkeit (100 m/min) und niedrigster Abtastrate bei dem ausgewählten Sensor (312,5 Hz) lediglich ca. alle 5,33 mm ein Messpunkt registriert. Dabei ist zu beachten, dass für dunkle oder glänzende Messobjekte eine längere Belichtungszeit erforderlich sein kann, die durch Herabsetzen der Abtastrate des Sensors erreicht werden kann.

Die Oberfläche sowie das Material des Messobjekts sind bei der Auswahl von berührungslosen Sensoren entscheidend. Für optische Sensoren ist zwischen diffuser und direkter Reflexion zu unterscheiden. Die Oberfläche der Beschichtung reflektiert i. Allg. diffus, wobei der Glanzgrad mit zunehmender Verdichtung von Matt- hin zu Mittelglanz steigt (MEYER 2019, S. 121 f.). Gewalzte Metallfolien reflektieren hingegen direkt. Bei induktiven oder kapazitiven Sensoren beeinflusst der Glanzgrad das Messergebnis hingegen nicht – viel mehr das Material. Der Messfleck ist jedoch größer als bei optischen Sensoren, was bei Krümmungen und v. a. bei der Unterscheidung zwischen den Wellen am Beschichtungsrand und Falten am Ableiter (vgl. Abbildung 5-7) zu Messfehlern führen kann. Bei Krümmungen muss die zulässige Verkippung des Sensors beachtet werden.

In Anbetracht der aufgestellten Anforderungen und des systematischen Vergleichs mit unterschiedlichen berührungslosen Sensoren wurde der Laser-Sensor optoNCDT ILD 1700-10DR (MICRO-EPSILON MESSTECHNIK GMBH & CO. KG) ausgewählt.<sup>32</sup> Der Sensor hat einen Messbereich von 10 mm und eine Auflösung von 0,5  $\mu\text{m}$ , was zur Erfassung der geometrischen Fehlerbilder jeweils groß und genau genug ist. Der Messbereichsanfang ist mit 28,3 mm auf Distanz, was eine Berührung der Elektrode ausschließt. Die maximale Abtastrate beträgt 2,5 kHz und würde bei dem

<sup>32</sup> [https://www.micro-epsilon.de/download/man\\_archiv/man--optoNCDT-1700--de.pdf](https://www.micro-epsilon.de/download/man_archiv/man--optoNCDT-1700--de.pdf), Zugriff am 23.12.21.

verwendeten Kalanders bei höchster Bahngeschwindigkeit (3 m/min) alle 20 µm einen Messpunkt aufnehmen, was eine hohe räumliche Auflösung ermöglicht. Der Sensor ist für direkt reflektierende Oberflächen ausgelegt, um sowohl auf der Beschichtung als auch auf der Metallfolie messen zu können.

Der Sensor wurde möglichst nah an der ersten Leitwalze positioniert. Dort ist das Elektrodenband gestützt und bewegt sich weniger. Das ist vorteilhaft, da sonst die Oberfläche der Elektrode den Messbereich verlassen könnte. Befindet sich der Sensor jedoch zu nah an der Leitwalze, wird das Messergebnis beeinträchtigt, da das Elektrodenband aufliegt und die Wellen und Falten auf der Walze gespannt werden. Wichtige Einflussgrößen, die es darüber hinaus zu beachten gilt, sind die Bahnspannung sowie die Folien- und Schichtdicke. In Vorversuchen wurde empirisch eine Position ermittelt, in der das Elektrodenband möglichst ruhig geführt wird, ohne jedoch die Messung zu verfälschen. Die Einstellung der Messbereichsmittle des Sensors entlang der z-Achse wird mit einem manuellen Lineartisch an einer unkalandrierten Elektrode vorgenommen. Dabei ist zu berücksichtigen, dass die Elektrode mit derselben Bahnspannung beaufschlagt wird, wie im tatsächlichen Versuch, da die Messbereichsmittle sich sonst verschiebt. Die Messbereichsmittle sollte nach der Einstellung unter der Annahme einer sinusförmigen Wellenform dem Nulldurchgang entsprechen.

Der Hochpräzisions-Lineartisch dient der maschinellen Positionierung des Sensors entlang der y-Achse bzw. quer zur MR oberhalb der entsprechenden Messposition. Unter der Annahme, dass bei homogenen Beschichtungs- und Folieneigenschaften sowie gleichmäßiger Verdichtung, die Fehlerbilder sich symmetrisch ausbilden, wurden die Wellen am Beschichtungsrand und Falten am Ableiter nur in MR links gemessen. Die Elektrodenwelligkeit befindet sich in der Symmetrieachse. Diese Vereinfachung wurde angenommen, um weniger Probenmaterial aufzuwenden. Der Lineartisch ist dennoch bei Bedarf bei der verwendeten Elektrodenbreite (150 mm) in der Lage alle Messpositionen zu erreichen.

In Kalandern gewährleistet eine sog. Kantenregelung die präzise Führung der Bahn. Dabei kommen Kantensensoren zum Einsatz, die bspw. die genaue Aufwicklung der Elektrode auf der Wickelhülse sicherstellen. Nichtsdestotrotz kann es v.a. bei regelmäßigem Anfahren im Versuchsbetrieb zur Bewegung des Elektrodenbandes kommen. Zur Sicherstellung der Messposition oberhalb der Elektrode wurde der Lineartisch in einen Regelkreis eingebunden. Die Industriekamera, die oberhalb der Elektrode und in MR vor dem Lineartisch montiert ist, nimmt das Elektrodenband kontinuierlich in der Draufsicht auf. Mithilfe einer Detektion der Ableiter- und

Beschichtungskanten wurde die Position des Elektrodenbandes bestimmt und als Stellgröße zum Anfahren der jeweiligen Messpositionen dem Lineartisch übergeben. Abbildung 5-7 verdeutlicht die Messpositionen mit den entsprechenden Maß- und Toleranzangaben.

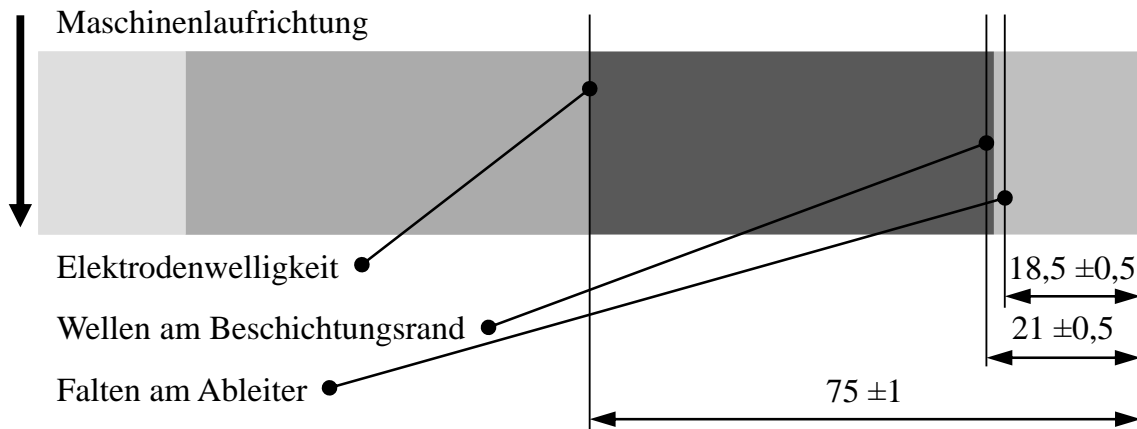


Abbildung 5-7: Elektrodenabschnitt in der Draufsicht mit Messpositionen

Nach der Kalibrierung des Messsystems beginnt die eigentliche Messung. Nach Angabe der Position und Aufnahmedauer der jeweiligen Messung läuft der Versuch automatisiert ab. Die Aufnahmedauer bzw. -länge wurde so gewählt, dass ca. sechs Perioden erfasst wurden. Berechnet wird sie anhand der Bahngeschwindigkeit und Wellenlänge der jeweiligen Fehlerbilder. So werden pro Aufnahme genügend Daten für eine statistische Auswertung geliefert. Das Messprogramm inkl. der Einbindung von Aktorik und Sensorik wurde im grafischen Programmiersystem LabVIEW 2019 umgesetzt. In Anhang A9 ist die Benutzeroberfläche zu sehen.

### 5.3.3 Datenverarbeitung und -auswertung

Auf die Datenaufnahme folgen die Datenverarbeitung und -auswertung. Die Datenverarbeitung ist notwendig, um die Messungen untereinander vergleichbar und deutbar zu machen. Das Messsignal wird in den Schritten **Invertierung**, **Trendbeseitigung**, **Glättung**, ggf. Extrapolation und ggf. **Filterung** verarbeitet.

Die **Signalinvertierung** wird benötigt, um den gemessenen Abstand zur Oberfläche der Elektrode in die tatsächliche Wellenform umzurechnen. Bei der **Trendbeseitigung** wird das Signal um den Nulldurchgang verschoben und von einer systematischen Verschiebung bereinigt, die bspw. auf eine vertikale Bandbewegung zurückgeführt werden kann. Bei der **Glättung** wird das Rauschen im Messsignal entfernt, das bspw. von hochfrequenten Schwingungen in der Anlage aufgrund der Druckzylinder des Walzwerks verursacht wird. Für den Fall, dass das Signal aufgrund

zu großer Wellenhöhen den Messbereich verlassen würde, wurde der abgeschnittene Kurvenverlauf mit einer Sinusfunktion extrapoliert. Der letzte Schritt ist die **Filterung** der Messdaten. Die Filterung ist i. Allg. in der Fertigungstechnik bzw. Oberflächenmesstechnik zur Unterscheidung von Oberflächenprofilen unterschiedlicher Größenordnungen etabliert (KEFERSTEIN ET AL. 2018, S. 112 f., WECKENMANN & WERNER 2014, S. 643).

Die Elektrodenwelligkeit nimmt eine sinusförmige Wellenform an, die bis auf die Glättung des Messsignals keine Filterung benötigt (vgl. Anhang A10). Für die Messung der Wellen am Beschichtungsrand ist hingegen eine Filterung vonnöten, da die Elektrodenwelligkeit sich bis zum Beschichtungsrand ausbreitet und zur Signalüberlagerung führt. Um die Wellen am Beschichtungsrand von der Elektrodenwelligkeit zu unterscheiden, wird ein Hochpassfilter eingesetzt. Abbildung 5-8 zeigt für die Wellen am Beschichtungsrand die einzelnen Verarbeitungsschritte und hebt die Notwendigkeit einer Filterung hervor.

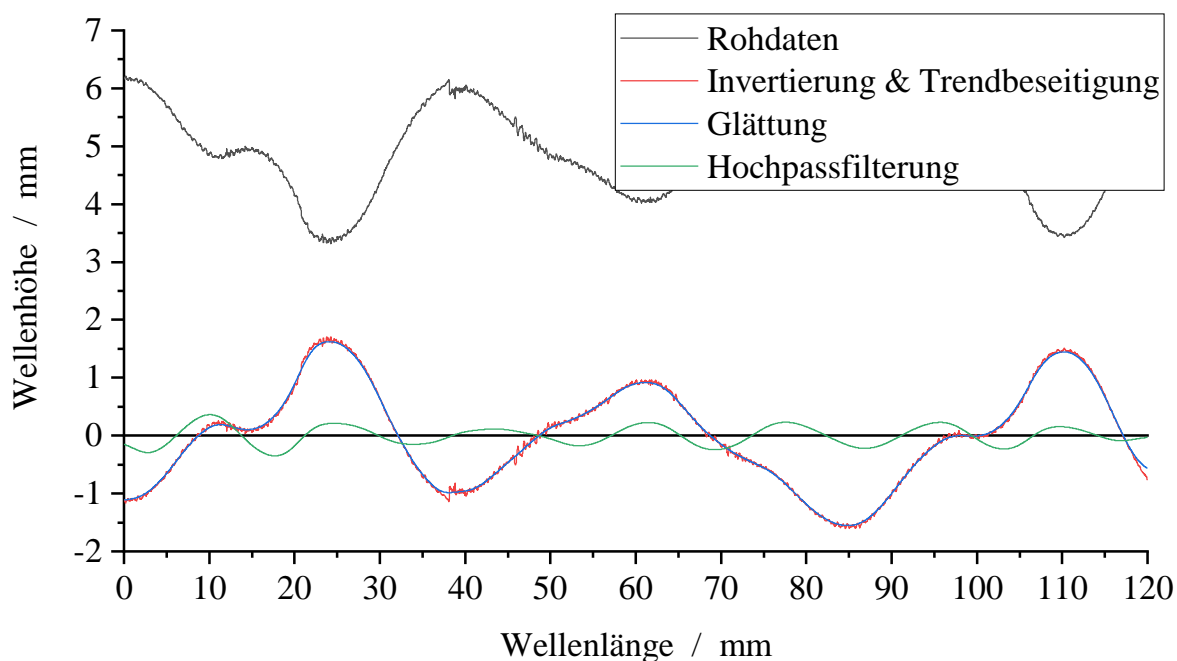


Abbildung 5-8: Verarbeitung der Messdaten (Grenzwellenlänge 10 mm; Flankensteilheit 0,85; Sperrdämpfung 60 dB); in diesem Bsp. zeigt sich der Trend nur marginal

Bei der Filterung ist zu beachten, dass es in der praktischen Anwendung keine Filter mit idealer Charakteristik gibt, die im Durchgangsbereich das Signal ungedämpft passieren lassen und im Sperrbereich vollständig unterdrücken. Zwischen beiden Bereichen liegt zusätzlich der Übergangsbereich, der die Dämpfung maßgeblich beeinflusst. Die Dämpfungscharakteristiken des Filters können beliebig eingestellt



werden. Vereinfacht gesagt, kann festgelegt werden, welche Frequenzen ‚durchgelassen‘ werden und wie das Signal gedämpft wird. In der Oberflächenmesstechnik sowie in der vorliegenden Applikation ist daher die Festlegung der Grenzfrequenz bzw. Grenzwellenlänge (sog. Cut-Off-Wert) besonders wichtig, um Oberflächenprofile unterschiedlicher Größenordnung voneinander zu trennen.

Der Filter wurde in MATLAB R2020a mit der Filterfunktion `highpass` umgesetzt. Die Parametrierung wurde zunächst auf die Grenzfrequenz des Durchlassbereiches beschränkt. Um die Bedienung zu erleichtern, gibt der Bediener die Wellenlänge an, ab welcher der Durchlassbereich beginnt. Der Wert wurde empirisch mit einem Programm zur Längenbestimmung in digitalen Bildern ermittelt (Datinf Measure, DATINF GMBH). Dabei wurden die Aufnahmen der in Kapitel 6 beschriebenen Versuche vermessen. Die Wellenlänge der Wellen am Beschichtungsrand beträgt ca. fünf bis zehn Millimeter. Da das Signal bereits im Übergangsbereich gedämpft wird, wurde zur Bestimmung der Grenzfrequenz die Wellenlänge auf zehn Millimeter festgelegt. Zur Verifizierung wurde das gefilterte Profil mit der tatsächlichen Wellenform qualitativ verglichen. Die Parameter Flankensteilheit (engl. *steepness*), die den Übergangsbereich dimensioniert, und Sperrdämpfung<sup>33</sup> (engl. *stopband attenuation*) wurden auf ihre Standardwerte eingestellt (vgl. Abbildung 5-8).

Zur Glättung des Signals wurde die Funktion `smoothdata` verwendet. Dabei wird das Messsignal mit einem gewichteten gleitenden Mittelwert verarbeitet. Die Gauß'sche Glockenkurve bestimmt die Gewichtung der benachbarten Werte. Physikalisch gesehen entspricht die Glättung einer Tiefpassfilterung. Es muss beachtet werden, dass möglichst nur das Rauschen entfernt wird und der Profilverlauf nicht verändert wird. Ein unterschiedlicher Verlauf würde nämlich nach der Filterung ein unterschiedliches Profil ergeben; dabei wird v. a. die Wellenhöhe verringert.

Bei der Auswertung der Daten werden die Wellen durch ihre Wellenlänge  $\lambda$  und Wellenhöhe  $f$  beschrieben. Daraus lässt sich die Welligkeit  $w = f/\lambda$  berechnen (MÜCKE ET AL. 2002, S. 34). Zur Ermittlung der Werte wurden die Profile analysiert und die Hoch- und Tiefpunkte bestimmt. Anschließend wurde für die Wellenlänge der Abstand zwischen zwei Punkten gleicher Orientierung und für die Wellenhöhe der Abstand zwischen dem Hoch- und Tiefpunkt berechnet. Die so extrahierten Wellenlängen und -höhen werden einem Ausreißertest nach Grubbs unterzogen, bevor schließlich der Mittelwert berechnet wird.

---

<sup>33</sup> „Die Sperrdämpfung gibt den Pegel in dB an, um den Frequenzanteile im Sperrbereich des Filters gedämpft werden“ (WECK & BRECHER 2006, S. 303).

Unter der Annahme sinusförmiger Wellenverläufe kann zur Beschreibung der Bandplanheit der **Ebenheitsindex**  $I_E$  nach Gleichung 5-10 berechnet werden.

$$I_E = \left( \frac{\pi \cdot f}{2 \cdot \lambda} \right)^2 \cdot 10^5 \quad (\text{Gl. 5-10})$$

Obwohl der Ebenheitsindex als dimensionslose Größe eingeführt wurde, wird er in I-Units angegeben. 1 I-Unit entspricht einer Dehnung von 10  $\mu\text{m}$  pro 1 m Bandlänge (LOGES 2009, S. 7 f., MÜCKE ET AL. 2002, S. 37).

Ebenso kann die **Dehnung** bzw. **Längenänderung der Elektrode**  $\varepsilon_B$  nach Gleichung 5-11 berechnet werden.

$$\varepsilon = \frac{\Delta l_E}{l_{E,0}} = \frac{\sum_{i=0}^{i=n} \sqrt{(\Delta x_{i,S}^2 + \Delta y_{i,S}^2)}}{l_{E,0}} - 1 \quad (\text{Gl. 5-11})$$

Dabei entsprechen  $\Delta l_E$  der Längenänderung,  $l_{E,0}$  der ursprünglichen Länge sowie  $x_{i,S}$  und  $y_{i,S}$  den Koordinaten des Messsignals.

In diesem Kapitel wurden Messverfahren vorgestellt, die zur Beschreibung der ausgewählten Fehlerbilder herangezogen werden. Dabei wurden Anforderungen gestellt und die Messverfahren entsprechend diskutiert sowie bei Bedarf angepasst oder neu entwickelt. Die Lehren aus der Anwendung der Messverfahren zur Beschreibung der Fehlerbilder in den durchgeführten experimentellen Untersuchungen, die im folgenden Kapitel vorgestellt werden, werden in Kapitel 7 gezogen. Dort wird eine technische und wirtschaftliche Bewertung präsentiert.

## 6 Einfluss des Kalandrierens auf die Fehlerbilder

Kapitel 6 beschreibt die Durchführung der Versuche. In Abschnitt 6.1 werden zunächst allgemeine Versuchsziele formuliert und das Versuchsvorgehen vorgestellt. Basierend auf den ausgewählten Materialien und Versuchsanlagen (vgl. Anhang A11) wird das Versuchsvorgehen im darauffolgenden Abschnitt in Form von Versuchsplänen konkretisiert. In Abschnitt 6.3 werden die Versuchsergebnisse vorgestellt, diskutiert und in Abschnitt 6.4 qualitativ validiert. Abschnitt 6.5 fasst modellgestützt die Ergebnisse zusammen und zeigt, wie die Versuchsergebnisse angewandt werden können.

### 6.1 Untersuchungsziele und Vorgehen

Um die Untersuchungsziele zu definieren, soll zunächst die Ausgangssituation bzw. Problemstellung beschrieben werden (KLEPPMANN 2016, S. 17-22). Hier sei auf den Handlungsbedarf in Abschnitt 3.5 verwiesen. Zusammenfassend lässt sich festhalten, dass sich die Studien in der Literatur auf den Einfluss der Verdichtung auf die Zelleigenschaften konzentrieren. Deshalb sollen die Untersuchungen auf die Weiterverarbeitungseigenschaften ausgeweitet werden. Die zugrundeliegenden Fehlerursachen und -mechanismen wurden bisher nicht umfangreich beleuchtet. Das übergeordnete Versuchsziel ist daher durch Variation von Einflussgrößen UWB aufzudecken, die die Fehlerursachen und deren Entstehung nachvollziehbar machen. Dabei dient die Vorstellung der Ergebnisse der **Beschreibung** und beantwortet die Frage: Was ist die **Wirkung**? Die Diskussion liefert die **Erklärung** und gibt die Antwort auf die Frage: Was ist die **Ursache**? Im Sinne einer produktionstechnischen Betrachtung darf dabei die Produktionsanlage an sich nicht außer Acht gelassen werden. Als Grundlage für die Modellierung wurde ein sog. PPR<sup>34</sup>-Modell gewählt, das die Domänen **Produkteigenschaften**, **Prozessparameter** und **Anlagenmerkmale** umfasst. Die Domänen beinhalten die entsprechenden Einflussgrößen, wie bspw. die Walzentemperatur für die Domäne Prozessparameter. Die Anlagenmerkmale unterscheiden sich von den Prozessparametern dadurch, dass sie nicht ohne großen Aufwand verändert werden können. Somit ist z.B. der Walzendurchmesser kein Prozessparameter. Abbildung 6-1 zeigt das System Kalandrierprozess. Die Eingangsgrößen  $\{x_{11}, x_{12}, \dots, x_{21}, x_{22}, \dots, x_{31}, x_{32}, \dots, x_n\}$  sind die Einflussgrößen aus den unterschiedlichen Domänen, die das System beeinflussen. Dabei sind Wechselwirkungen zwischen den Einflussgrößen innerhalb des Prozesses

---

<sup>34</sup> PPR steht für die engl. Begriffe *product*, *process* und *resource* und wird für die Modellierung von Produktionsprozessen verwendet (CHINNATHAI ET AL. 2017).

möglich. Durch einen erklärenden Ansatz sollen diese UWB aufgedeckt werden. Die Ausgangsgrößen  $\{y_1, y_2, \dots, y_n\}$  sind die physikalischen Eigenschaften des Elektrodenbandes, die als Fehlerbild aggregiert werden und die Weiterverarbeitung in den Folgeprozessen beeinträchtigen (vgl. Abschnitt 5.1).

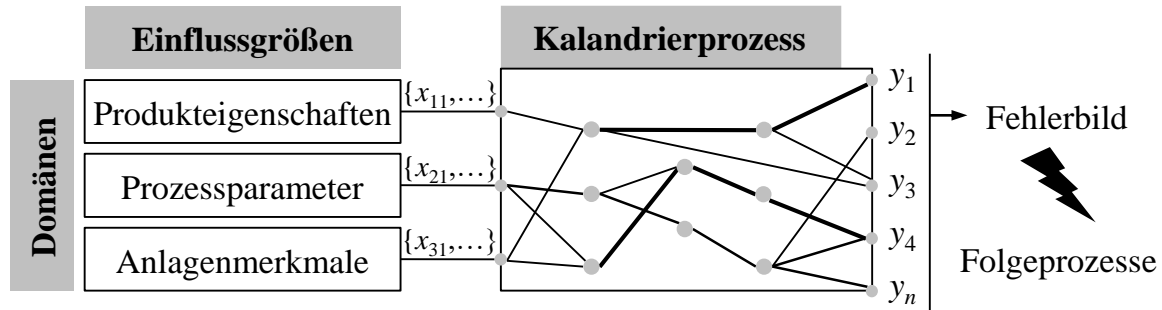


Abbildung 6-1: System ‚Kalandrierprozess‘ mit Ein- und Ausgangsgrößen

Um die Einflussgrößen innerhalb der Domänen zu sammeln, eignet sich u. a. das Ishikawa-Diagramm (KLEPPMANN 2016, S. 24). In Abbildung 6-2 wird eine Sammlung der Einflussgrößen wiedergegeben, ohne jedoch Anspruch auf Vollständigkeit zu erheben.

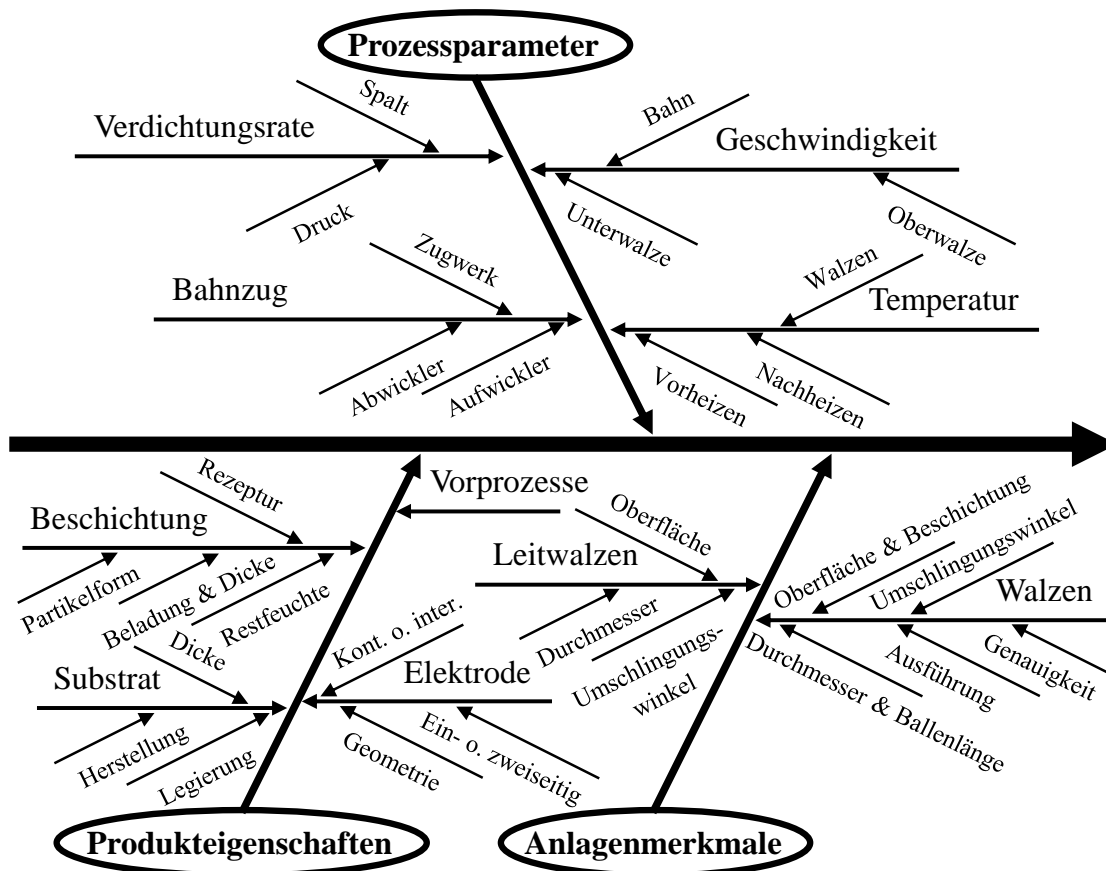


Abbildung 6-2: Ishikawa-Diagramm von Einflussgrößen auf die Fehlerbilder

Das Diagramm lässt erkennen, dass viele Einflussgrößen bestehen, die zumeist nicht kategorisch sind, sondern stetige Werte annehmen. Um den Parameterraum einzugrenzen, werden daher bezugnehmend auf die Sammlung an Einflussgrößen im Folgenden Prämissen für diese Arbeit festgelegt.

- Kontinuierlich beschichtete Elektroden

Wie in Abschnitt 3.4 erläutert sind intermittierende Beschichtungen prozesstechnisch beim Kalandrieren von Interesse, da höhere Elektrodendichten ohne Falten am Ableiter erreicht werden können. Jedoch muss vorgelagert die Beschichtungsgeschwindigkeit reduziert werden, da der Prozess seinen stationären Zustand verlassen muss (SCHMITT ET AL. 2015, S. 928). Außerdem finden intermittierende Beschichtungen zumeist bei Rundzellen Anwendung (PETTINGER ET AL. 2018, S. 213, TAGAWA & BRODD 2009, S. 185), was ihr Einsatzfeld einschränkt. Daher sollen in dieser Arbeit ausschließlich kontinuierliche Beschichtungen untersucht werden, um höhere Dichten durch Untersuchung der Fehlerbilder zu ermöglichen.

- Doppelseitig beschichtete Elektroden

In dieser Arbeit werden vorzugsweise doppelseitig beschichtete Elektroden untersucht, da diese Industriestandard sind (TAGAWA & BRODD 2009, S. 185) und somit die Relevanz und Übertragbarkeit der Ergebnisse gesteigert wird. In der Literatur wurden zumeist einseitig beschichtete Elektroden verwendet, um u. a. den Aufwand bei der Probenherstellung zu reduzieren.

- Erhöhung der volumetrischen Energiedichte

Die Dichte von kalandrierten Kathoden liegt normalerweise zwischen  $2,8 \text{ g/cm}^3$  und  $3,4 \text{ g/cm}^3$  (vgl. Abschnitt 2.3.2). Die Elektrodendichte ist ein wichtiger Hebel zur Verbesserung der volumetrischen Energiedichte der Zelle. Der Trend geht bei gewissen Kathodenmaterialien in Richtung höherer Dichten (vgl. CHU ET AL. (2012) mit bis zu  $3,6 \text{ g/cm}^3$ ). Oftmals vermittelt die Porosität ein besseres Gefühl für die Elektrodenstruktur. Abbildung 6-3 zeigt den Zusammenhang zwischen Dichte, Verdichtungsrate und Porosität in Abhängigkeit von der Schichtdicke am Bsp. der in dieser Arbeit eingesetzten Kathodenformulierung (vgl. Tabelle 6-6). Elektrodendichten oberhalb von  $3,4 \text{ g/cm}^3$  senken die Porosität unterhalb von 20 %, was höchste Linienlasten erfordert und Kalandrieren möglicherweise an ihre Grenzen bringt. In Anbetracht dessen soll in dieser Arbeit ein möglichst breiter Korridor untersucht werden, um die Fehlerursachen und -mechanismen zu verstehen. Vorversuche müssen diesen Korridor festlegen.

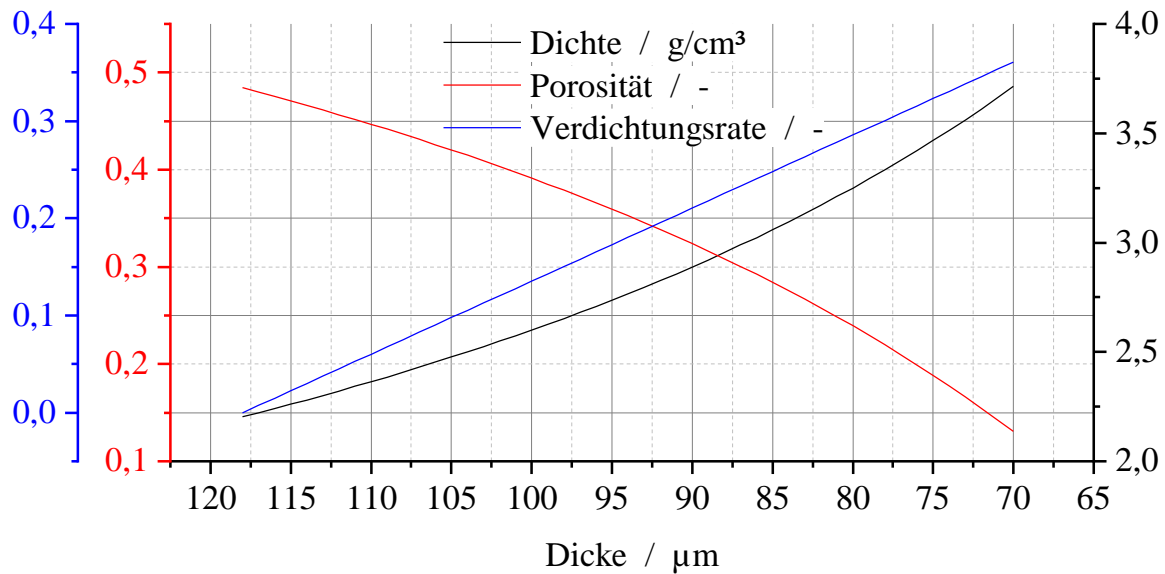


Abbildung 6-3: Verlauf der Dichte, Porosität und Verdichtungsrate im Zuge der Verdichtung nach Gleichung 2-4 und 2-5 am Bsp. der in dieser Arbeit eingesetzten Kathode mit  $13 \text{ mg}_{\text{NMC}}/\text{cm}^2$  Massenbeladung je Seite und  $15 \mu\text{m}$  Foliendicke

- Grafit als Anodenmaterial

Wie in Kapitel 2.2.2 erläutert, kommt in LIB mit ca. 90 % Marktanteil überwiegend Grafit als Aktivmaterial für Anoden zum Einsatz, was die Relevanz des Materials bekräftigt. Außerdem verlangen die Materialeigenschaften von Grafit vertiefte Untersuchungen zur Adhäsion, da es ein weiches und schmierendes Material ist (vgl. Kapitel 4.2.1). Dabei sollen schuppenförmige Grafite eingesetzt werden, nicht nur da diese kostengünstiger sind, sondern auch weil eine erhöhte Empfindlichkeit während der Umordnung der Partikel vermutet wird (DREGER ET AL. 2019, S. 234).

- NMC als Kathodenmaterial

Als Kathodenmaterial wird in dieser Arbeit NMC untersucht, da das Material aufgrund seiner ausgeglichenen Eigenschaften weit verbreitet ist (SCHMUCH ET AL. 2018, S. 272, ZUBI ET AL. 2018, S. 299). Dabei liegt der Schwerpunkt auf NMC-111, wobei zur Validierung der Ergebnisse auch NMC-622 eingesetzt wird.

- Maximierter Aktivmaterialanteil

Die Verarbeitbarkeit von Elektroden im Kalandrierprozess wird teils über Anpassungen der Formulierung eingestellt. Es ist z. B. bekannt, dass die Zugabe von Leitruß bzw. -grafit den mechanischen Widerstand während der Umlagerung der Partikel durch Schmierung senken kann (HASELRIEDER 2016, S. 139 f.). Weiter

könnten erhöhte Binderanteile durch ein elastischeres Verhalten der Elektrodenversprödung entgegenwirken. Anpassungen der Formulierung erfolgen aber zu Lasten der Energiedichte. Da die vorliegende Arbeit auf eine Maximierung der Energiedichte bei mindestens gleichbleibender Verarbeitbarkeit abzielt, müssen weitere Einflussgrößen betrachtet werden, die das Kalandrieren beeinflussen.

- Prozessierung in den vorgelagerten Prozessen

Die vorgelagerten Prozesse Mischen und Dosieren sowie Beschichten und Trocknen sollen bis auf die herkömmlichen Prozessschwankungen konstant gehalten werden, um dem Kalandrierprozess möglichst gleichmäßige Elektroden zuzuführen. Dabei ist jedoch zu beachten, dass es sich um Labor bzw. Technikumsanlagen handelt, deren Prozessstabilität geringer als der von Serienanlagen einzuschätzen ist.

- Fokussierung auf den tatsächlichen Verdichtungsvorgang

Kalanderanlagen können sich im Bereich der Module Ab- und Aufwicklung stark unterscheiden. Hier sind z. B. Zugwerke üblich, um die Bahnspannung zu entkoppeln, oder Temperiergeräte, um das Elektrodenband vor- oder nachzuwärmen. Um eine Übertragbarkeit der Ergebnisse und eine fundierte Analyse des tatsächlichen Verdichtungsvorgangs zu ermöglichen, sollen Anlagenkomponenten weitestgehend ausgeklammert und der Fokus auf den Walzvorgang gelegt werden.

- Aufwand-Nutzen-Verhältnis

Die Versuche sollen das Aufwand-Nutzen-Verhältnis berücksichtigen. Der Aufwand bezieht sich nicht nur auf die Kosten (z. B. Materialkosten), sondern auch auf den Zeitaufwand bei der Herstellung sowie Versuchsdurchführung und -auswertung. Die Auswahl richtet sich nach der Auftretenswahrscheinlichkeit und Schwere der Fehlerbilder (vgl. Abschnitt 4.2). Bei den Anoden wird das Fehlerbild **Schichtablösung** untersucht. An den Kathoden kommen die **Elektrodenwelligkeit**, die **Wellen am Beschichtungsrand**, die **Elektrodenversprödung** und der **Folienriss** hinzu.

### 6.2 Versuchsplanung

Nach der Darstellung der Prämissen für die experimentellen Untersuchungen dieser Arbeit wird im Folgenden die Versuchsplanung vorgestellt. Ein besonderes Augenmerk liegt auf der Diskussion der Faktoren sowie Faktorstufen.

Die Einflussgrößen bzw. Faktoren<sup>35</sup> wurden auf Grundlage der Untersuchungsziele (vgl. Abschnitt 6.1) und der zur Verfügung stehenden Materialien und Anlagen (vgl. Anhang A11) ausgewählt. Die Zielgrößen wurden aus den Fehlerbildern abgeleitet und bereits in Kapitel 5 vorgestellt.

Die Auswahl der Faktoren ist nach den Domänen **Produkteigenschaften**, **Prozessparameter** und **Anlagenmerkmale** (vgl. Abbildung 6-1) gegliedert. Die Faktoren werden aus den im **Ishikawa-Diagramm** (vgl. Abbildung 6-2) erfassten Einflussgrößen abgeleitet. Zudem werden geeignete Faktorstufen für die Versuchsplanung ausgewählt. Die untersuchten Faktoren bzw. Faktorstufen für die Anoden und Kathoden<sup>36</sup> sind in Tabelle 6-1 bzw. Tabelle 6-2 zusammengefasst.

#### **Anode**

Die Massenbeladung und die resultierende Dicke der Beschichtung einer Anode beeinflusst ihre Haftfestigkeit (HASELRIEDER ET AL. 2015, S. 5 f.). Bisher wurde dieser Zusammenhang in Bezug auf das Kalandrieren nicht untersucht. Hierzu wurden im Rahmen dieser Arbeit Anoden mit zwei unterschiedlichen Massenbeladungen verglichen. Die Dicke der höher beladenen Elektrode ist etwa eineinhalbmal so groß wie die der Referenzelektrode.

Der Einfluss der Verdichtung auf die Haftfestigkeit von Anoden lässt sich aufgrund widersprüchlicher Ergebnisse anhand der Literatur nicht eindeutig feststellen (vgl. Abschnitt 3.5). Es wurde entweder nur eine Porosität oder ein eingeschränkter Bereich betrachtet. Die Porosität<sup>37</sup> soll daher ausgehend von der unkalandrierten Elektrode ( $\approx 55\%$ ) von  $45\%$  in  $5\%$ -Schritten auf  $25\%$  abgesenkt werden, um das Verhalten genauer abbilden zu können. Dabei ist zu beachten, dass die Porosität und Dichte sich im Gegensatz zur Verdichtungsrate nicht linear verhalten (vgl. Abbildung 6-3). Ein Prinzip der Versuchsplanung ist die sog. *Symmetrie* der Faktorstufen, wonach der Abstand zwischen den Stufen gleich sein muss. Da der

---

<sup>35</sup> Einflussgrößen, die zur experimentellen Untersuchung herangezogen werden, werden *Faktoren* genannt.

<sup>36</sup> Die Begriffe *Anode* und *Kathode* sind nicht als Verallgemeinerung zu verstehen. Sie beziehen sich auf die untersuchten Elektrodenformulierungen (vgl. Tabelle 12-3 auf Seite 232).

<sup>37</sup> Der Faktor *Porosität* gehört zu den Prozessparametern und nicht zu den Produkteigenschaften, da er erst im Zuge des Kalandrierens eingestellt wird.



Verlauf der Porosität nicht linear ist, ist dies nicht der Fall. Es wurde jedoch angenommen, dass der Einfluss vernachlässigbar ist.

*Tabelle 6-1: Faktoren und Stufen der Anodenversuche*

Faktoren	Stufen						Einheit
<b>Produkt</b>							
Schichtdicke	≈ 80		≈ 125				μm
<b>Prozess</b>							
Porosität	≈ 55	45	40	35	30	25	%
Walzentemperatur	RT	50	75	100	125	150	°C
Bahngeschwindigkeit	0,5		1,5				m/min
<b>Anlage</b>							
Walzendurchmesser	200		400				mm
Tandem-Kalandrieren	nein		ja				–

Bei Kathoden führt eine Erhöhung der Walzentemperatur zu einer verbesserten Schichthaftung (vgl. Abschnitt 3.3). Ähnliches wurde beim Kalandrieren von Elektroden für Brennstoffzellen beobachtet (FASSE 1997, S. 38). Durch Aufnahme dieses Faktors soll geprüft werden, ob sich dies auf Anoden übertragen lässt. Dieser Faktor wurde ebenso in fünf Stufen ausgehend von der RT (25 °C) in 25-°C-Schritten auf 150 °C variiert.

Der Einfluss der Bahngeschwindigkeit auf die Haftfestigkeit wurde bei Anoden bisher nicht untersucht. Die reduzierte Kontaktzeit im Spalt bei höherer Geschwindigkeit könnte bzgl. der Temperierung einen negativen Einfluss haben. Außerdem steht der Verdichtung bzw. der Partikelumlagerung bei höheren Bahngeschwindigkeiten weniger Zeit zur Verfügung, was aufgrund der unterschiedlichen Materialeigenschaften zwischen der Beschichtung und dem Substrat bzw. innerhalb der Beschichtung zum Versagen der Adhäsion bzw. Kohäsion führen kann. Dies gilt es experimentell zu untersuchen. Da der Einstellbereich der Bahngeschwindigkeit klein ist und lediglich geprüft werden soll, ob es einen Einfluss gibt, wurden hier nur zwei Faktorstufen gewählt.

Höhere Schubspannungen werden gleichermaßen für kleinere Walzendurchmesser erwartet. Die gedrückte Länge nimmt ab und die Verdichtung findet bei gleicher Bahngeschwindigkeit „schneller“ statt (PIETSCH 1987, S. 11). Folglich sind höhere

Verdichtungsspannungen zu erwarten (vgl. Abschnitt 3.2.2 und 3.3). Der Einfluss auf die Haftfestigkeit muss nachgewiesen werden. Um die Verhältnisse im Walzspalt zu beeinflussen, kommen in der industriellen Praxis vermehrt sog. Tandem-Kalander zum Einsatz. Hier wird die Verdichtungsrate auf zwei Walzstufen aufgeteilt. Um diesen Effekt nachzubilden, sollen Anoden, die ein- und zweistufig verdichtet wurden, verglichen werden.

### **Kathode**

An der Kathode soll nicht nur die Schichtdicke, sondern auch die Dicke der Substratfolie variiert werden. Bisher ist nicht bekannt, wie sich unterschiedliche Dicken auf das Kalandrierergebnis auswirken und was die Auswirkung auf die Weiterverarbeitung ist. Es ist zu erwarten, dass bei höheren Massenbeladungen mehr Material ‚verdrängt‘ wird und daher größere Deformationen entstehen – ein Effekt, der durch stabilere Substratfolien gedämpft werden könnte. Aluminiumfolien werden in unterschiedlichen Härtegraden angeboten. Um die Wellen an den Elektroden deutlich zu erkennen, wurden walzweiche Folien verwendet, da eine stärkere Dehnung zu erwarten ist.

Die Verdichtungsrate hat einen starken Einfluss auf die physikalischen Eigenschaften der Elektroden (vgl. Abschnitt 3.2). Dieser Faktor soll also über einen großen Wertebereich variiert werden. Bei der Auswahl der Faktorstufen ist zu beachten, dass auch alle umsetzbar sind. Durch Warmkalandrieren könnten zwar höhere Dichten erreicht werden, ein Vergleich mit den weiteren Versuchspunkten wäre aber nicht möglich, da bei Raumtemperatur die Maximaldichte geringer ausfällt. Vorversuche haben gezeigt, dass 28 % Verdichtungsrate bzw. ca. 25 % Porosität auch bei RT mit dem vorhandenen Kalander erreichbar sind, was  $3,5 \text{ g/cm}^3$  entspricht (vgl. Abbildung 6-3).

Um hohe Elektrodendichten zu erreichen, hat sich das Warmkalandrieren etabliert, da u. a. aufgrund des sinkenden Verdichtungswiderstandes die Linienlast reduziert werden kann. Der Einfluss auf die Eigenschaften der Kathoden ist jedoch noch nicht vollständig untersucht worden. Experimentelle Daten zur Verformung der Elektroden fehlen bspw. in der Literatur. Der Faktor wurde ausgehend von RT in drei Schritten von  $40^\circ\text{C}$  auf  $120^\circ\text{C}$  variiert. Die Walzentemperatur kann nicht schnell eingestellt werden, da sich Mikrorisse in der Walze bilden können (BLECHSCHMIDT 2013, S. 392). Um die Aufheizzeiten zu berücksichtigen und den Versuchsaufwand zu reduzieren, wurde die sog. *Randomisierung* (vgl. Anhang A1) aufgegeben. Gleichmaßen ist auch die Kühlung der Walzen in der Versuchsplanung und -durchführung zu berücksichtigen.

Ein Prozessparameter mit geringem Einstellungsaufwand ist die Bahngeschwindigkeit. Von einer Variation der Bahngeschwindigkeit wurde jedoch abgesehen. Das Hochfahren auf die eingestellte Geschwindigkeit verursacht zusätzlichen Materialverbrauch. Ohnehin ist fraglich, ob die Ergebnisse bei der maximalen Bahngeschwindigkeit von 3 m/min auf relevante Produktionsgeschwindigkeiten von 30 m/min und mehr übertragbar sind. Diese wurde konstant auf 0,3 m/min gehalten, da bei niedrigen Geschwindigkeiten die elastische Rückdehnung gering sein sollte (PIETSCH 1987, S. 13).

*Tabelle 6-2: Faktoren und Stufen der Kathodenversuche*

Faktoren	Stufen					Einheit
<b>Produkt</b>						
Schichtdicke bzw.	≈ 60		≈ 85			μm
Massenbeladung	13		19,5			mg <sub>NMC</sub> /cm <sup>2</sup>
Foliendicke	15		20			μm
<b>Prozess</b>						
Verdichtungsrate	12	16	20	24	28	%
Walzentemperatur	RT	40	80	120		°C
<b>Anlage</b>						
Walzendurchmesser	200		400			mm

Die Einstellung der Bahnspannung könnte eine weitere Möglichkeit sein, um Formabweichungen von der Ebenheit zu verringern. Hier sei auf die theoretischen Überlegungen in Abschnitt 4.2.1 verwiesen. Da vorläufige Studien in der Literatur zu gegenteiligen Ergebnissen gekommen sind (vgl. Abschnitt 3.3), wäre eine Untersuchung umso interessanter. Mit dem entwickelten Messverfahren bräuchte es jedoch ein Zugwerk zur Entkopplung der Bahnspannung. Ansonsten würden die Elektroden unterschiedlich elastisch gedehnt, was das Messergebnis beeinflussen würde. Daher kann die Bahnspannung leider nicht ohne Weiteres untersucht werden.

Abschließend wird untersucht, ob auch der Walzendurchmesser einen Einfluss auf die Schichthftung von Kathoden hat. Schließlich sind die Partikeleigenschaften sehr unterschiedlich (z. B. Flocken im Vergleich zur Kugelform).

### Zusammenfassung

Für die experimentellen Untersuchungen wurden Haupt- und Zusatzversuche geplant. Die entsprechenden Versuchspläne sind in Anhang A12 aufgeführt. Für die **Hauptversuche** wurde für die Anoden und die Kathoden jeweils ein vollständiger, vollfaktorieller Versuchsplan erstellt. D.h. alle möglichen Faktorkombinationen werden untersucht.

- Im **Hauptversuch ‚Anode‘** wurden die Porosität in sieben Stufen und die Walzentemperatur in fünf Stufen variiert (vgl. Tabelle 12-5).
- Der **Hauptversuch ‚Kathode‘** beinhaltet jeweils zwei Stufen für die Faktoren Massenbelastung, Foliendicke und Walzentemperatur und drei Stufen für die Verdichtungsrate (vgl. Tabelle 12-7).

Um das Aufwand-Nutzen-Verhältnis zu berücksichtigen, wurden **Zusatzversuche** geplant, welche die weiteren Faktoren einbeziehen bzw. weitere Stufen beinhalten.

- Beim **Zusatzversuch ‚Anode‘** handelt es sich um einen d-optimalen Versuchsplan, der zusätzlich zu den zuvor genannten Faktoren die Schichtdicke, die Bahngeschwindigkeit, den Walzendurchmesser und das Tandem-Kalandrieren berücksichtigt (vgl. Tabelle 12-6).
- Für den **Zusatzversuch ‚Kathode‘** wurden dem Hauptversuch Zusatzpunkte für die Verdichtungsrate und die Walzentemperatur hinzugefügt, die im Gegensatz zu allen anderen Versuchen nicht statistisch, sondern grafisch untersucht werden (vgl. Tabelle 12-7).

Die Versuchspläne (vgl. Anhang A12) zeigen die Reihenfolge auf, in der die Versuche abgearbeitet wurden. Details zur Versuchsdurchführung sind in Anhang A11 gegeben.

### 6.3 Versuchsergebnisse

Die folgende Darstellung der Ergebnisse gliedert sich nach der Fehlerklassifikation aus Abschnitt 4.2.1. An Anoden werden die Untersuchungen zum strukturbedingten Fehlerbild Schichtablösung beschrieben. Daran schließt sich die Vorstellung der Ergebnisse für die ausgewählten geometrischen, strukturbedingten und mechanischen Fehlerbilder an Kathoden an. Auf die **Beschreibung** der Ergebnisse folgt deren **Erklärung** in der Diskussion.

Für die Nachvollziehbarkeit und Interpretation der Ergebnisse sind folgende allgemeine Hinweise zu beachten:

- Sofern nicht anders angegeben, zeigen die Diagramme reale Daten, keine Modelldaten. Ein Punkt darin entspricht dem Mittelwert aller Faktoreinstellungen mit Angabe des Standardfehlers des Mittelwertes<sup>38</sup> mit Ausnahme des untersuchten Faktors.
- Kurvenanpassungen werden nur dargestellt, wenn ein statistisches Modell vorliegt. Die Art der Anpassung gibt an, ob das Modell linear ist oder nicht.
- Faktoren, die keinen statistisch signifikanten Effekt ( $p > 0,05$ ) haben, werden in den Regressionsmodellen nicht berücksichtigt und i. d. R. nicht diskutiert.
- Bei der Darstellung der Ergebnisse steht die prozentuale Zu- oder Abnahme einer Antwortgröße bei Änderung einer Faktorstufe im Vordergrund. Absolute Werte werden i. d. R. nicht diskutiert, da die Messsysteme unkalibrierte Prototypen sind.
- Statistische Modelle wurden mit der Software Minitab® 19.2020.1 berechnet.

### 6.3.1 Struktureigenschaften von Anoden

Unter den strukturbedingten Fehlerbildern von Anoden wurde in dieser Arbeit die **Schichtablösung** untersucht. Die entsprechende Antwortgröße ist die **Haftfestigkeit**  $\sigma_H$ . Untersuchungen von BILLOT (2021) an unkalandrierten Anoden mit derselben Elektrodenformulierung zeigten, dass der Bindergehalt und die Schichtdicke die Haftfestigkeit beeinflussen. Die Haftfestigkeit nimmt zu, wenn der Binderanteil in der Elektrode erhöht wird, während sie abnimmt, wenn die Schichtdicke erhöht wird. Dabei wurde zu Validierungszwecken geprüft, ob dieser Zusammenhang auch nach dem Kalandrieren gültig ist. Es wurde nur eine Porosität von 35 % untersucht. Die Haftfestigkeit der kalandrierten Elektrode nahm bei allen untersuchten Binderanteilen und Schichtdicken im Mittel um ca. 11 % ab.

Darauf aufbauend wurde in dieser Arbeit am Bsp. von zwei Schichtdicken untersucht, was eine weitere Absenkung der Porosität für die Haftfestigkeit bedeutet. Dafür wurden die Elektroden zusätzlich auf 30 % bzw. 25 % Porosität mit dem Laborkalander des Lehrstuhls für Technische Elektrochemie (TEC) der TUM verdichtet. Das Versuchsergebnis ist in Abbildung 6-4 a) dargestellt. Die Tatsache, dass die Zunahme der Schichtdicke die Haftfestigkeit reduziert, gilt für jede untersuchte Porosität. Die Haftfestigkeit der kalandrierten Elektroden sinkt mit einer

---

<sup>38</sup> Standardfehler des Mittelwertes und Standardabweichung sind nicht gleichzusetzen. Ihnen liegen unterschiedliche Berechnungsformeln zugrunde, die in Anhang A3 erläutert werden.

Erhöhung der Schichtdicke um 56,25% im Mittel um ca. 50%. BILLOT (2021) erklärte die Abnahme der Haftfestigkeit bei dickeren Schichten damit, dass die gleiche Grenzfläche höheren Belastungen ausgesetzt ist. Nach dem Trocknen und v.a. nach dem Kalandrieren werden mechanische Spannungen eingebracht (vgl. Abschnitt 4.2.1). Die verbleibenden Eigenspannungen sind für dickere Schichten größer und wirken sich auf die gleiche Fläche aus, was zum Versagen der Adhäsion führen kann. Eine pauschale Absenkung der Haftfestigkeit durch das Kalandrieren konnte jedoch nicht bestätigt werden. Zwischen 35% und 25% Porosität nimmt die Haftfestigkeit bei ca. 80µm Schichtdicke um 35% und bei ca. 125µm Schichtdicke um 21% zu.

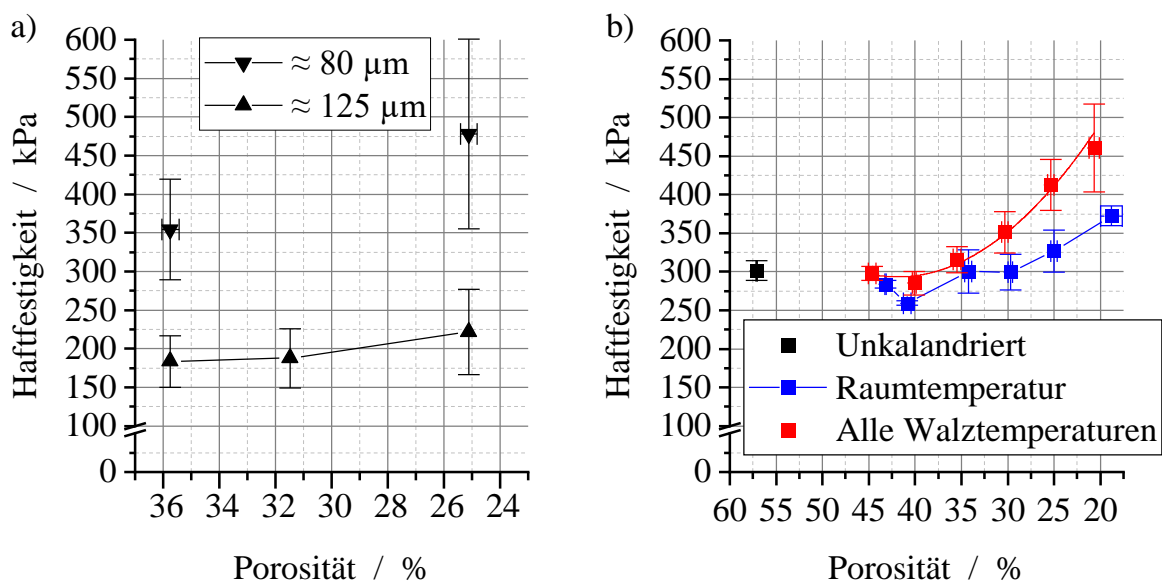


Abbildung 6-4: Verlauf der Mittelwerte mit Standardfehler für die Haftfestigkeit über die Porositätsstufen für a) zwei Schichtdicken am Kalandrierer TEC und b) bei RT und für alle Walztemperaturen am Kalandrierer iwB

Dieses Verhalten wurde tiefergehend über mehrere Porositätsstufen hinweg untersucht und in BILLOT ET AL. (2020, S. 4 ff.) publiziert. Abbildung 6-4 b) zeigt die Haftfestigkeit der Anode mit ca. 80µm Schichtdicke in Abhängigkeit von der Porosität. Diese wurde ausgehend von ca. 57% Porosität in sechs Stufen von 45% auf 20% Porosität kalandriert. Der Verlauf der Mittelwerte mit Standardfehler ist über alle Walztemperaturen und gesondert für RT zum Vergleich mit Abbildung 6-4 a) aufgeführt. Die Haftfestigkeit nimmt ausgehend von der unkalandrierten Elektrode bei niedrigen Verdichtungsgraden ab. Bei ca. 35–40% Porosität stellt sich ein Minimum ein. So hatte BILLOT (2021) mit 35% Porosität einen in Bezug auf die Maximierung der Haftfestigkeit ungünstigen Punkt gewählt.

Die Modellberechnung ergibt, dass bei RT bei 39% Porosität die geringste Haftfestigkeit erwartet wird ( $p < 0,001$ ). Der Vergleich der Kurvenverläufe der Haftfestigkeit bei RT und über alle Walzentemperaturen deutet darauf hin, dass die Walzentemperatur zu einer Verbesserung der Haftfestigkeit führt.

Abbildung 6-5 a) unterstreicht diesen Zusammenhang, indem sie die Haftfestigkeit in Abhängigkeit von der Walzentemperatur über alle Porositätsstufen zeigt. Die Elektroden wurden am Kalanders des *iwb* kalandriert. Erhöhte Walzentemperaturen führen zu einer Verbesserung der Haftfestigkeit. Ab 75 °C ist der Einfluss deutlicher und stärker. Dies deutet auf eine Wechselwirkung zwischen den Faktoren Porosität und Walzentemperatur hin ( $p < 0,001$ ). Die Wechselwirkung ist in dem Graphen auch an dem größeren Standardfehler der Mittelwerte für höhere Walzentemperaturen erkennbar, da in einem Punkt jeweils alle Porositätsstufen gemittelt sind.

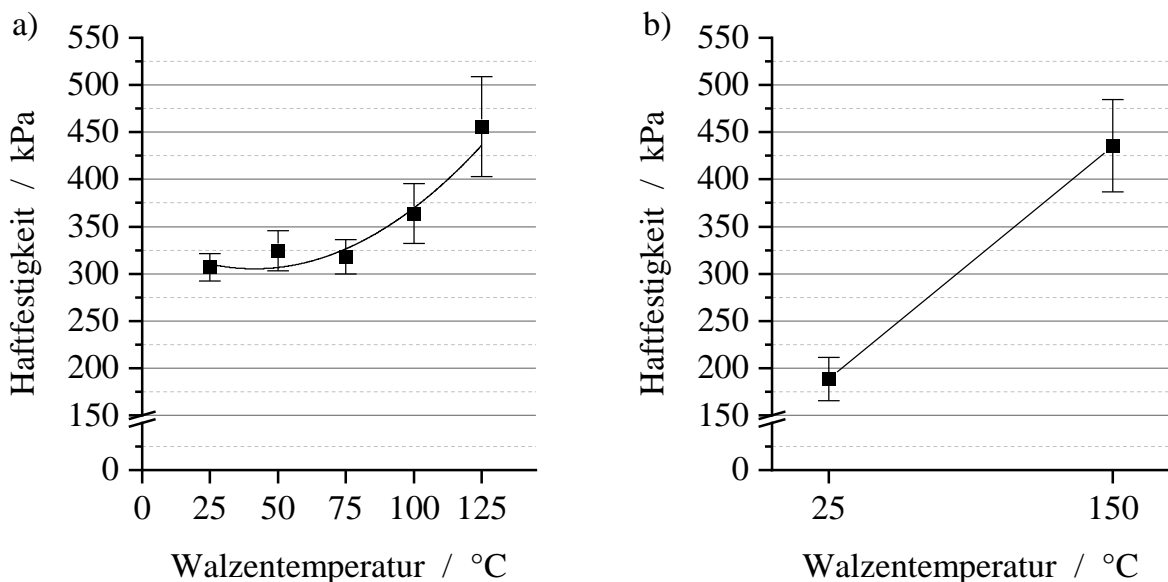


Abbildung 6-5: Verlauf der Mittelwerte mit Standardfehler für die Haftfestigkeit über der Walzentemperatur a) am Kalanders *iwb* und b) an den Kalandern *iwb* sowie *TEC*

Im Zusatzversuch ‚Anode‘ an beiden Kalandern, konnte der positive Einfluss der Walzentemperatur bestätigt werden. Wie in Abbildung 6-5 b) zu sehen, ist bei einer Erhöhung der Walzentemperatur von RT auf 150 °C eine Verdoppelung der Haftfestigkeit zu verzeichnen.

Abbildung 6-6 zeigt zusammenfassend den mit der Regressionsgleichung 6-1 berechneten Zusammenhang zwischen den hochsignifikanten Prozessparametern Porosität  $\Phi$  und Walzentemperatur  $T_w$  hinsichtlich der Haftfestigkeit. Die höchste Haftfestigkeit wird mit höchster Walzentemperatur und niedrigster Porosität erreicht.

Das Regressionsmodell bestätigt die Wechselwirkung zwischen den beiden Prozessparametern.

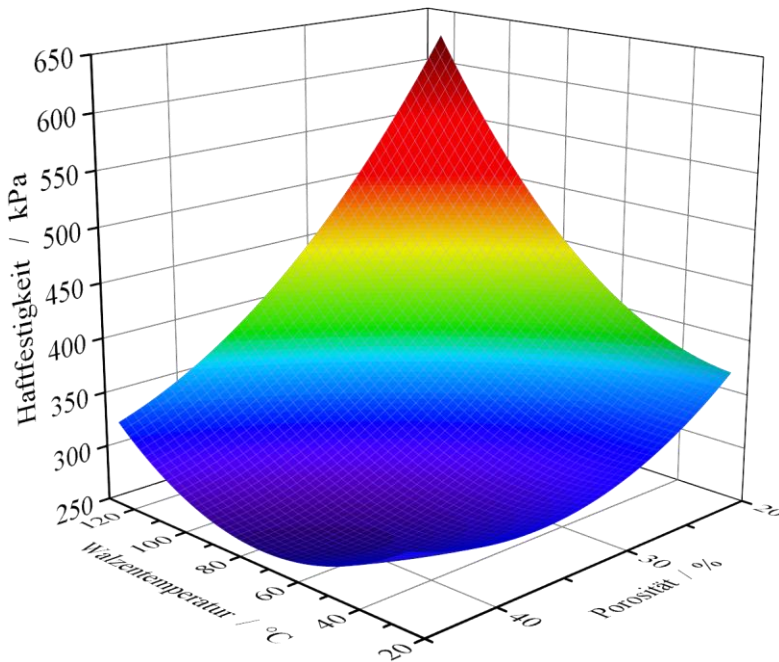


Abbildung 6-6: 3-D-Diagramm der Regressionsgleichung ( $p < 0,001$ ,  $R^2 = 88,19\%$ )

$$\sigma_H = 639 + 1,12 \cdot T_W - 19,37 \cdot \Phi + 0,02306 \cdot T_W^2 + 0,305 \cdot \Phi^2 - 0,0993 \cdot T_W \cdot \Phi \quad (\text{Gl. 6-1})$$

Im untersuchten Bereich von 0,5–1,5 m/min ist der Prozessparameter Bahngeschwindigkeit nicht signifikant ( $p = 0,485$ ). Es konnte kein Einfluss auf die Haftfestigkeit festgestellt werden.

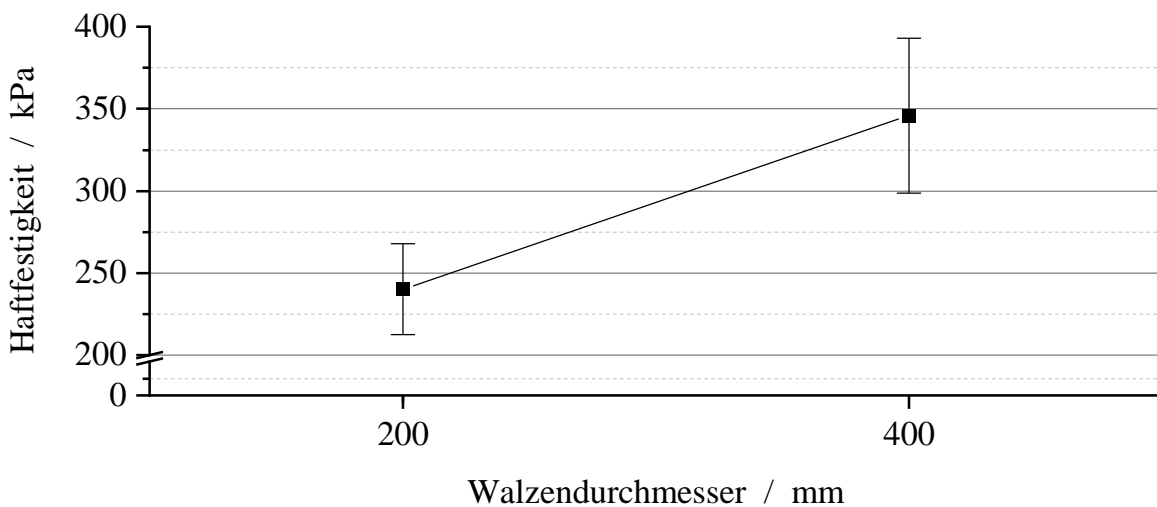


Abbildung 6-7: Haftfestigkeit in Abhängigkeit vom Walzendurchmesser mit Angabe von Mittelwert und Standardfehler



Darüber hinaus wurde der Einfluss von Anlagenmerkmalen auf die Haftfestigkeit untersucht. In Abbildung 6-7 ist der Einfluss des Walzendurchmessers zu sehen. Die Verdoppelung des Walzendurchmessers von 200 mm auf 400 mm führt zu einer Steigerung der Haftfestigkeit um ca. 44 %.<sup>39</sup> Der Faktor ist sehr signifikant ( $p < 0,01$ ). Zusätzlich wurde durch ein- und zweistufiges Kalandrieren der Effekt des Tandem-Kalandrierens simuliert. Der Faktor ist nicht signifikant ( $p > 0,05$ ).

Im Folgenden werden die Versuchsergebnisse dem Stand des Wissens gegenübergestellt und diskutiert. Prinzipiell können die gemessenen Werte für die Haftfestigkeit absolut nur mit denen von DREGER ET AL. (2019, S. 233) und HASELRIEDER (2016, S. 213) verglichen werden, da die Elektroden bei RT kalandriert wurden und das Messverfahren sowie die Binderchemie gleich sind. Tatsächlich liegen diese deutlich höher als jene, die in dieser Arbeit ermittelt wurden. Die niedrigste Haftfestigkeit beträgt ca. 750 kPa bzw. 1100 kPa, was mehr als das Doppelte bzw. Dreifache des in dieser Arbeit gemessenen Maximums ist. Ein Grund für diesen deutlichen Unterschied kann der höhere Massenanteil an Binder (6 % bzw. 8 % verglichen zu 5 %) in den untersuchten Formulierungen sein. Weiter unterscheiden sich u. a. die eingesetzten Materialien und Vorprozesse, was einen direkten Vergleich erschwert. Die Ursache für den deutlichen Unterschied liegt aber vermutlich in der Messung. Dabei fiel auf, dass stets eine Hälfte der Beschichtung versagte, was auf eine nicht parallele Ausrichtung der Stempel zueinander hinweist. Von einer Justierung während der Messungen wurde abgesehen, um die Ergebnisse vergleichen zu können. Die tatsächlich gemessenen Werte dürften aber absolut gesehen etwa doppelt so hoch sein, was den Unterschied zu den Literaturwerten erklären würde.

Im Folgenden wird daher die relative Änderung der Haftfestigkeit im Zuge des Kalandrierens mit Literaturdaten verglichen. HASELRIEDER (2016, S. 233) untersuchte mit maximal 20 % bzw. 25 % niedrige Verdichtungsraten. Das entspricht übertragen auf die in dieser Arbeit untersuchten Elektroden einer Porosität von ca. 40 %. In diesem Bereich wurde auch eine Abnahme der Haftfestigkeit festgestellt. Erst unterhalb von 35 % Porosität wird die Haftfestigkeit der unkalandrierten Elektrode wieder erreicht. Dieser Bereich wird von HASELRIEDER nicht abgedeckt. DREGER ET AL. (2019, S. 233) verdichten die Anoden im Bereich einer

---

<sup>39</sup> Der Mittelwert der Haftfestigkeit bei 200 mm Walzendurchmesser beträgt 240,20 kPa und weicht damit von dem entsprechenden Wert (290,03 kPa) in BILLOT ET AL. (2020, S. 5) ab. Dies ist darauf zurückzuführen, dass im Gegensatz zur vorliegenden Arbeit für 200 mm Walzendurchmesser mehr Faktoreinstellungen gemittelt wurden als für 400 mm Walzendurchmesser. Es wurden mehr Versuche mit der geringen Schichtdicke berücksichtigt, was sich positiv auf den Mittelwert auswirkt. In dieser Arbeit enthalten beide Mittelwerte die gleiche Anzahl von Punkten und die gleichen Faktoreinstellungen, mit Ausnahme des Walzendurchmessers.

Verdichtungsrate von 21,62 % bis 31,33 %. Trotzdem weisen alle Elektroden eine schlechtere Haftfestigkeit auf. In dieser Arbeit wurde erst ab 30 % Porosität eine höhere Haftfestigkeit gemessen, was bezogen auf die Verdichtungsraten dem oberen Ende des von DREGER ET AL. (2019) untersuchten Bereichs entspricht. Bemerkenswert ist die von BAUNACH ET AL. (2016, S. 467 f.) beobachtete Steigerung der Haftfestigkeit, die bereits mit 30 % Verdichtungsrate vorliegt. Dies könnte in der erhöhten Walzentemperatur (60 °C) begründet sein und die in dieser Arbeit beobachtete positive Wechselwirkung mit der Verdichtung unterstützen.

Die Untersuchungen in dieser Arbeit und der Vergleich mit den Literaturangaben zeigen, dass die unterschiedlichen Ergebnisse nicht im Widerspruch stehen. Durch die Abdeckung eines großen Bereichs (45–20 % Porosität) ließ sich bestätigen, dass die Haftfestigkeit zunächst bei mäßiger Verdichtung sinkt bzw. stagniert. Erst zwischen 30 % und 20 % Porosität ist eine Steigerung der Haftfestigkeit auch bei RT zu beobachten – ein Bereich, der bisher nicht untersucht wurde. Durch die Temperierung der Walzen tritt der positive Einfluss des Kalandrierens bereits früher ein, sodass auch bei niedrigen Verdichtungsraten die Haftfestigkeit nicht beeinträchtigt wird. Der Vollständigkeit halber ist anzumerken, dass BAUNACH ET AL. (2016) kein PVDF, sondern SBR und CMC als Binderchemie verwenden.

Die Abnahme der Haftfestigkeit von Anoden wird in der Literatur i. Allg. mit Schubspannungen erklärt, die durch das Kalandrieren induziert werden (DREGER ET AL. 2019, S. 233). V. a. die unterschiedlichen Materialausdehnungseigenschaften von Beschichtung und Substratfolie sollen diese fördern und zu einem Adhäsionsversagen an der Grenzfläche führen (HASELRIEDER 2016, S. 214). So gesehen, sollten beim uniaxialen Pressen auch Schubspannungen auftreten, wenn auch in geringerem Maße. Außerdem lässt sich damit nicht erklären, warum die Haftfestigkeit hin zu höheren Verdichtungsraten wieder zunimmt. Daher werden die Verhältnisse im Walzspalt zur Erklärung des Verhaltens herangezogen.

Eine Analogie zur Walzplattierung in Anlehnung an SCHMIDTCHEN & KAWALLA (2017, 83-119) gibt Aufschluss darüber. Es wird zwischen Grund- und Aufagewerkstoff unterschieden, wovon ersterer der steifere ist. Für die Haftfestigkeit sind die Lage des sog. Bindungspunktes, ab dem der Grundwerkstoff das Fließen beginnt, und der Fließscheide entscheidend. Übertragen auf Anoden ist die Kupferfolie der steifere Grundwerkstoff und die Beschichtung der weichere Aufagewerkstoff. Die Verdichtung der Beschichtung beginnt in der Rückstauzone. Die Geschwindigkeit der Walzenoberfläche ist dort größer als die der Beschichtung. Die Kupferfolie erfährt noch keine Umformung und tritt mit der gleichen

Geschwindigkeit wie die Walze in den Walzspalt ein. An der Grenzfläche zwischen Beschichtung und Substratfolie entstehen Schubspannungen. Hin zu höheren Verdichtungsraten wird der Bindungspunkt erreicht, da auch das Kupfer zu fließen beginnt, wie in Abbildung 4-3 an den plastischen Verformungen zu sehen ist. Am Bindungspunkt gleichen sich die Geschwindigkeiten an und stimmen in der Fließecke dann überein. Es ist förderlich, wenn die Fließecke sich nahe dem Walzspaltaustritt befindet, um Relativbewegungen zwischen Auflage- und Grundwerkstoff in der Voreilzone zu reduzieren (SCHMIDTCHEN & KAWALLA 2017, S. 94). Die Lage des Bindungspunktes wird u. a. von der Reibung zwischen Grund- und Auftragswerkstoff beeinflusst. Bei geringer Reibung verschiebt sich der Bindungspunkt in Richtung Walzspaltaustritt. Das Fließen des Grundwerkstoffes beginnt später. Bei Anoden ist davon auszugehen, dass die Reibung gering ist, da Graphit auch als Festschmierstoff eingesetzt wird (DU ET AL. 2014, S. A1071).

SCHMIDTCHEN & KAWALLA (2017, S. 98) führen an, dass sich durch die „Temperaturabhängigkeit der Fließspannung“ das Fließspannungsverhältnis von Auflage- und Grundwerkstoff ändert. Konkret kann die Lage des Bindungspunktes durch Absenken der Fließspannung beeinflusst werden, was sich positiv auf die Haftfestigkeit auswirkt. Übertragen auf Anoden müsste durch Warmkalandrieren die Fließspannung der Kupferfolie abgesenkt werden. Dies ist tatsächlich der Fall, wobei der E-Modul der Substratfolie im untersuchten Temperaturbereich trotzdem ca. eine Größenordnung über dem der Graphitbeschichtung (12 GPa, XIAO ET AL. 2010, S. 7653) liegt. Die Verbesserung der Haftfestigkeit durch Warmkalandrieren lässt sich also nicht ausschließlich über das Angleichen des Fließspannungsverhältnisses erklären. Die Ursache wird eher in den Eigenschaften des Binders unter Temperatureinfluss erwartet. PVDF wird duktiler, was sich auch in der Absenkung des E-Moduls bemerkbar macht (CASTAGNET ET AL. 2000, S. 154). Mit 162–172 °C (ARKEMA INC. 2012) liegt der Schmelzpunkt von PVDF nur gering über dem untersuchten Temperaturbereich. Es wird vermutet, dass die Relativbewegungen zwischen Beschichtung und Substratfolie in geringerem Maße zum Versagen der Bindermolekülketten an der Grenzfläche führen, da der Binder duktil ist und erst nach Verlassen des Walzspaltes wieder aushärtet.

HASELRIEDER (2016, S. 214) nimmt aufgrund von theoretischen Überlegungen an, dass höhere Bahngeschwindigkeiten und kleinere Walzendurchmesser das „Adhäsions- bzw. Kohäsionsversagen fördern“. Bzgl. der Bahngeschwindigkeit konnte in den durchgeführten Versuchen kein Effekt festgestellt werden. Vermutlich sind hierfür größere Abstände zwischen den Faktorstufen erforderlich. Hingegen

zeigte sich ein deutlicher Einfluss des Walzendurchmessers, der in Abschnitt 6.3.3 zusammen mit den Ergebnissen der Kathode diskutiert wird.

### 6.3.2 Geometrische Eigenschaften von Kathoden

In diesem Abschnitt werden die Ergebnisse der Untersuchungen zum Einfluss des Kalandrierens auf die geometrischen Eigenschaften von NMC-111-Kathoden vorgestellt. Die untersuchten Antwortgrößen sind die **Elektrodenwelligkeit** und die **Wellen am Beschichtungsrand**. Hierzu wurde die in Abschnitt 5.3 vorgestellte Planheitsmessung eingesetzt.

*Tabelle 6-3: Übersicht der Ergebnisse der MLR-Analyse für die Elektrodenwelligkeit und die Wellen am Beschichtungsrand*

Antwortgrößen	R <sup>2</sup>	Signifikante Einflussgrößen	p-Wert
Elektrodenwelligkeit	$\lambda$ 90,93 %	Massenbeladung	< 0,001
		Verdichtungsrate	0,045
		Verdichtungsrate <sup>2</sup>	0,010
		Verdichtungsrate·Massenbeladung	0,012
	$f$ 94,37 %	Massenbeladung	< 0,001
		Verdichtungsrate	< 0,001
Wellen am Beschichtungsrand	$\lambda$ 38,92 %	Massenbeladung	0,013
		Foliendicke	0,023
	$f$ 0 %	–	–

Tabelle 6-3 fasst die Kenngrößen der Modelle für die **Wellenlänge  $\lambda$**  und **-höhe  $f$**  der Elektrodenwelligkeit bzw. Wellen am Beschichtungsrand zusammen, die mittels multipler linearer Regression (MLR) errechnet wurden. Das Bestimmtheitsmaß der berechneten Regressionsmodelle für die Elektrodenwelligkeit ist hoch ( $R^2 > 90\%$ ). Das bedeutet, dass weniger als 10 % der Streuung in den Antwortgrößen nicht durch das Regressionsmodell erklärt werden kann. Bei den Wellen am Beschichtungsrand ist das nicht der Fall. Die Modellgüte ist für experimentelle Daten unzureichend. Für die Wellenlänge werden lediglich die Massenbeladung und die Foliendicke als Einflussgrößen in das Regressionsmodell übernommen. Für die Wellenhöhe kann

keine Beziehung zu den Einflussgrößen festgestellt werden. Aufgrund der geringen Modellgüte wird auf eine grafische Analyse für die Wellen am Beschichtungsrand verzichtet, um Fehlinterpretationen zu vermeiden. Die Gründe für die geringe Modellgüte werden zum Schluss dieses Abschnitts diskutiert. Zuerst werden die Ergebnisse zur Elektrodenwelligkeit vorgestellt.

### Elektrodenwelligkeit

In den Experimenten wurden die Wertebereiche  $\lambda = [35,07 \text{ mm}, 48,14 \text{ mm}]$  für die Wellenlänge und  $f = [1,28 \text{ mm}, 3,32 \text{ mm}]$  für die Wellenhöhe gemessen. Das Elektrodenband wurde bei den Versuchen mit 15 N bzw. 100 N/m normiert auf die Bahnbreite gespannt. Dabei wellte sich der beschichtete Bereich auf, obwohl das Elektrodenband gespannt war. Zum Ausdruck des Längenunterschieds wurden der Ebenheitsindex und die Dehnung durch Einsetzen der mittleren Wellenlänge  $f$  und -höhe  $\lambda$  aller Experimente berechnet (vgl. Abschnitt 5.3.3). Die Bandmitte erfuhr im Mittel eine relative Dehnung von 653,59 I-Units, was einer Dehnung von ca. 0,65 % entspricht und somit im Einklang mit den Angaben aus der Literatur steht (CAO ET AL. 2015, S. 485, MAYER ET AL. 2021, S. 12).

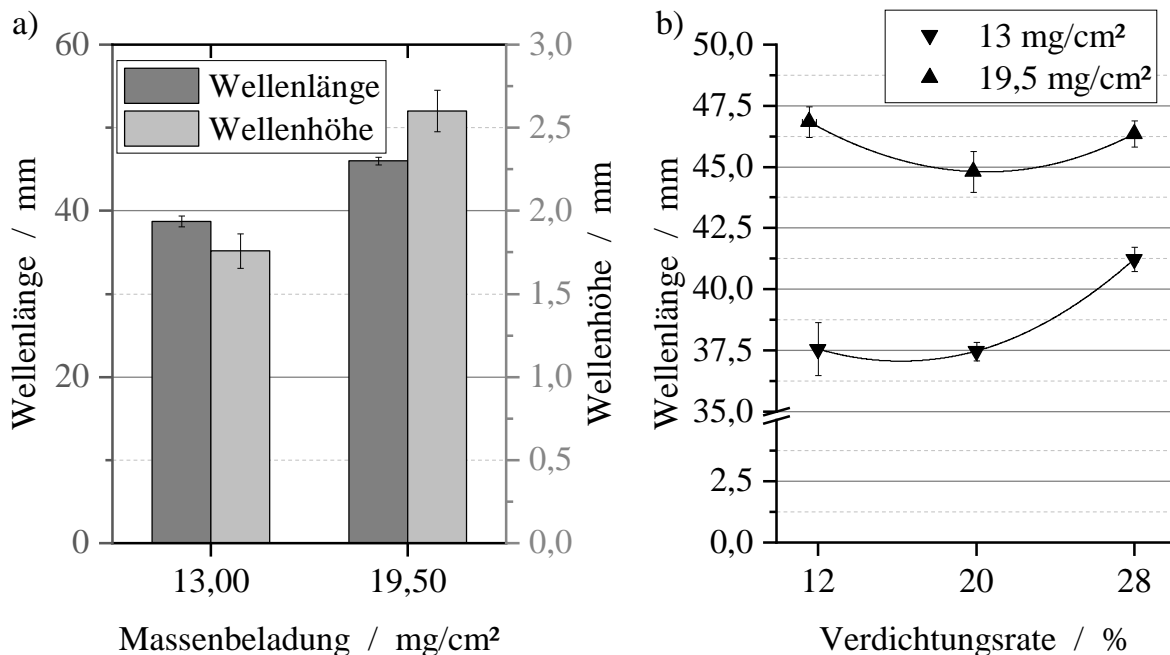


Abbildung 6-8: a) Einfluss der Massenbeladung auf die Elektrodenwelligkeit und b) Wechselwirkung zwischen der Verdichtungsrate und der Massenbeladung in Bezug auf die Wellenlänge

Zunächst wird der Einfluss der Produkteigenschaften Massenbeladung und Foliendicke auf die Elektrodenwelligkeit beschrieben. Letztere war nicht signifikant und ist deshalb nicht in Tabelle 6-3 gelistet. Weder für Wellenlänge noch -höhe

konnte ein Einfluss festgestellt werden. Die Einflussgröße Massenbeladung hingegen war in beiden Fällen hochsignifikant ( $p < 0,001$ ). Abbildung 6-8a) stellt die Ergebnisse der Untersuchungen zur Massenbeladung dar. Eine Steigerung der Massenbeladung von  $13 \text{ mg}_{\text{NMC}}/\text{cm}^2$  auf  $19,5 \text{ mg}_{\text{NMC}}/\text{cm}^2$  führte zu einer Erhöhung der Wellenlänge sowie -höhe. Bei der Wellenlänge war eine Zunahme um ca. 19 % und bei der -höhe um ca. 48 % zu verzeichnen.

Die Wellenlänge wird beim Verdichten aufgrund einer Wechselwirkung mit der Massenbeladung unterschiedlich beeinflusst. Abbildung 6-8b) gibt die Versuchsergebnisse wieder. Während bei niedriger Massenbeladung eine Erhöhung der Verdichtungsrate von 12 % auf 28 % zu einem Anstieg der Wellenlänge um 10 % führt, nimmt die Kurve bei höherer Massenbeladung den Verlauf einer Badewannenkurve an. Die Wellenlänge nimmt zunächst um 4 % ab, bevor sie um 3 % wieder ansteigt.

Abbildung 6-9a) zeigt den allgemeinen Einfluss der Verdichtungsrate auf die Wellenlänge und -höhe der Elektrodenwelligkeit. Die Wellenlänge nimmt mit steigender Verdichtung zunächst um ca. 3 % leicht ab, bevor sie dann wieder um ca. 6 % ansteigt. Insgesamt ist eine geringe Zunahme um 4 % zu verzeichnen.<sup>40</sup> Die niedrige Signifikanz ( $p = 0,045$ ) unterstreicht, dass die Effekte nicht eindeutig von der Streuung zu unterscheiden sind. Die Ergebnisse des Zusatzversuchs ‚Kathode‘ bei konstanter Massenbeladung ( $13 \text{ mg}_{\text{NMC}}/\text{cm}^2$ ) und Foliendicke ( $15 \mu\text{m}$ ), die gesondert aufgeführt sind, unterstützen jedoch die Beobachtung, dass die Wellenlänge, bis auf einen Ausreißer bei 16 % Verdichtungsrate, zunächst konstant oder sinkend verläuft, bevor es zu einer Zunahme mit stärkerer Verdichtung kommt.

Die zweite Ordinatenachse betrifft die Wellenhöhe. Hier ist ein deutlicher, linearer Zusammenhang zwischen der Verdichtungsrate und Wellenhöhe zu erkennen. Von der niedrigsten bis zur höchsten Verdichtungsrate ist eine Zunahme um ca. 53 % zu beobachten. Der Faktor ist hochsignifikant ( $p < 0,001$ ). Die Mittelwerte weichen nahezu nicht von der linearen Anpassung ( $R^2 = 99,89\%$ ) ab. Die Zusatzpunkte des Zusatzversuchs ‚Kathode‘ (vgl. Tabelle 12-7) bei konstanter Massenbeladung ( $13 \text{ mg}_{\text{NMC}}/\text{cm}^2$ ) und Foliendicke ( $15 \mu\text{m}$ ) bestätigen den linearen Anstieg der Wellenhöhe. Die Mittelwerte sind lediglich nach unten versetzt, was den starken Einfluss der Massenbeladung nochmals bekräftigt. Bei 16 % ist erneut der spürbare Einfluss eines Ausreißers zu erkennen, der auf einen Zusammenhang zwischen Wellenlänge und -höhe hindeutet. Genauer betrachtet, unterscheidet sich der Verlauf der Mittelwerte unterhalb von 20 % Verdichtungsrate. Zu höheren Verdichtungsraten

---

<sup>40</sup> Der Kurvenverlauf zur Wellenlänge entspricht der Mittelung der zwei Kurven aus Abbildung 6-8b).

hin ist dann eine Korrelation erkennbar, da die Mittelwerte für Wellenlänge und -höhe einen vergleichbaren Verlauf annehmen.

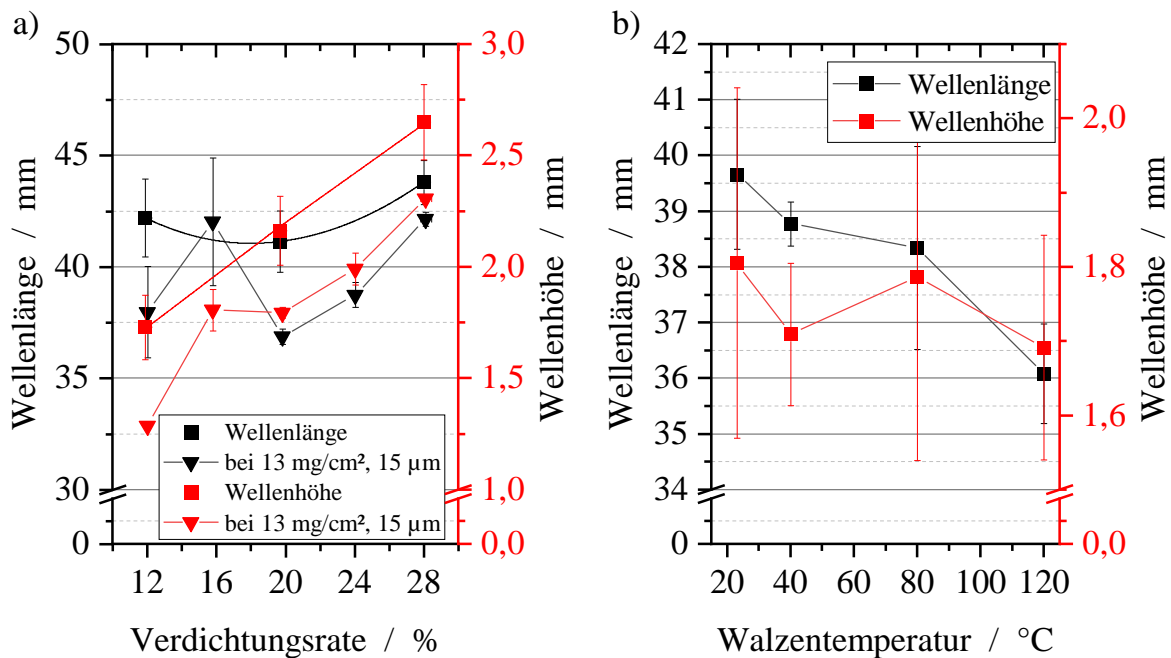


Abbildung 6-9: Verlauf der Mittelwerte mit Standardfehler für die Wellenlänge und -höhe der Elektrodenwelligkeit über der a) Verdichtungsrate und b) Walzentemperatur

Abbildung 6-9 b) zeigt die Ergebnisse der Zusatzversuche ‚Kathode‘ zum Einfluss der Walzentemperatur auf die Wellenlänge und -höhe der Elektrodenwelligkeit. Diese werden aufgeführt, obwohl die Walzentemperatur im Hauptversuch aufgrund eines zu niedrigen Signifikanzniveaus ( $p > 0,05$ ) in den Regressionsmodellen nicht enthalten ist. Mit steigender Walzentemperatur ist ein leicht sinkender Verlauf für beide Antwortgrößen zu beobachten. Der Kurvenverlauf deutet darauf hin, dass es evtl. einen Zusammenhang gibt, der aber aufgrund von zu hoher Streuung, v. a. der Wellenhöhe, nicht signifikant ist.

Im Folgenden werden die Versuchsergebnisse diskutiert und die UWB in Bezug auf die in Kapitel 4.2.1 genannten Ursachen überprüft. I. Allg. ist zu beobachten, dass, relativ gesehen, die Wellenhöhe von den Einflussgrößen stärker beeinflusst wird als die Wellenlänge. Obwohl Verdichtungsraten von weniger als 12 % nicht untersucht wurden, scheint sich die Wellenlänge nach Erreichen einer kritischen Spannung einzustellen und erfährt darüber hinaus nur geringe Veränderungen. Tatsächlich ist die Welligkeit vom Bahnzug abhängig. So ergibt sich ein Wechselspiel zwischen dem Bahnzug und der Eigenspannung in der Elektrode. Idealerweise müsste das Band völlig entlastet werden, um Einflüsse der Bahnspannung auszuschalten (sog.

geometrische Planheitsmessung). Wie in Abschnitt 5.3.1 erläutert, ist dies jedoch bei Folien nicht umsetzbar. Ob der Bahnzug die Wellenlänge und -höhe in gleichem Maße beeinflusst, ist nicht bekannt.

Die Massenbeladung und die Verdichtungsrate haben einen deutlich größeren Einfluss auf die Welligkeit, v. a. auf die Wellenhöhe, als die anderen untersuchten Einflussgrößen. In beiden Fällen nimmt die gedrückte Länge zu. Die Walzen sind entweder stärker im Eingriff, weil bei konstanter Verdichtungsrate mit höherer Massenbeladung absolut mehr Volumen verdichtet wird oder weil die Walzenanstellung zunimmt, um höhere Verdichtungsraten zu erreichen. Es werden höhere Walzkräfte benötigt und eine größere Volumenarbeit findet statt. MEYER (2019, S. 63 f.) macht die steigende Anzahl an Partikeln verantwortlich für den erhöhten Kraftbedarf, da die zu ‚verrichtende Arbeit‘ bei deren Umlagerung aufgrund der höheren Reibungskräfte zunimmt. Der Verdichtungswiderstand steigt linear mit der Massenbeladung (MEYER ET AL. 2018, S. 276 ff.). Die Linienlast hingegen steigt exponentiell mit der Verdichtungsrate an (MEYER ET AL. 2017, SCHREINER ET AL. 2019), was sich mit den unterschiedlichen Stufen des Verdichtungsvorgangs erklären lässt (vgl. Abschnitt 2.3.3). Die zur Verdichtung der Elektrode erforderliche Kraft führt auch zur Verformung der Substratfolie. Die Quer- und Längsdehnung der Schicht nimmt zu, wenn mehr Volumenarbeit stattfindet, wodurch die Substratfolie stärker gedehnt wird. Eine analytische Korrelation zwischen den Einflussgrößen und der Welligkeit ist nicht ohne weiteres möglich, da das Messverfahren lediglich die Längsdehnung misst und eine Querdehnung, auch wenn sie verhältnismäßig klein ist, nicht auszuschließen ist (vgl. MAYER ET AL. 2021). Ohnehin ließ sich zum Zeitpunkt der Versuche am Kalandrierer keine Linienlast messen. Die Partikeleindrücke in der Substratfolie sind als Ursache für die Dehnung eher unwahrscheinlich, da dies eher darauf hinweisen würde, dass die Dehnung der Folie in Längs- und Querrichtung vergleichbar ist.

Das Regressionsmodell erkennt zudem eine Wechselwirkung zwischen der Verdichtungsrate und der Massenbeladung in Bezug auf die Wellenlänge. Möglicherweise führen die starken Eigenspannungen in der Elektrode bei hoher Massenbeladung zu einer stärkeren Wellung des Bandes oder, anders ausgedrückt, zu einer stärkeren Stauchung der Wellenlänge. Die größere Umformung in der Schicht wirkt sich auf die gleiche Grenzfläche zur Substratfolie aus, wodurch die Elektrode größere Eigenspannungen aufweist. Wie eingangs beschrieben, kann das Wechselspiel zwischen Bahnspannung und Eigenspannung die gemessene Wellenlänge beeinflussen. Weiter wurden abwechselnde Schattierungen in Querrichtung beobachtet, deren Ursache in der Querdehnung des Materials vermutet



wird (vgl. Anhang A13). Diese ‚Querwellen‘ besaßen bei hoher Massenbeladung qualitativ eine größere Wellenlänge. Das würde bedeuten, dass dann mehr Material quer fließt und die Wellenlänge längs nicht in gleichem Maße zunimmt.

Die Zunahme der Foliendicke hat keinen signifikanten Einfluss auf die Elektrodenwelligkeit. Die Wellenlänge und -höhe werden zwar bei einer Erhöhung der Dicke von 15 µm auf 20 µm um -1 % bzw. -4 % gesenkt, der Effekt ist aber kleiner als die Streuung und damit nicht signifikant. Möglicherweise ist der Unterschied zwischen den Faktorstufen zu klein, um einen Unterschied zu erkennen (KLEPPMANN 2016, S. 27 f.). Außerdem kann die geringe Härte der gewählten Substratfolie dazu führen, dass die dickere Folie in gleichem Maße fließt. Zuletzt wird aufgrund der gewählten Formel für die Verdichtungsrate nach HASELRIEDER ET AL. (2013, S. 61) die Elektrode mit dickerer Substratfolie bei gleicher Beschichtungsdicke stärker verdichtet, was den positiven Einfluss einer dickeren Substratfolie etwas schmälert. I.Allg. sei an dieser Stelle auf die Wahl der Verdichtungsrate als Faktor zur Beschreibung der Verdichtung eingegangen. Zur Wahrung der Symmetrie ist die Verdichtungsrate im Vergleich zur Porosität aufgrund der Linearität vorteilhaft (vgl. Abbildung 6-3 und Abschnitt 6.2). Sie bildet aber nicht die Struktur der Beschichtung ab, die für das Verdichtungsverhalten ausschlaggebend ist. Die Ausgangsporosität ist bspw. nach dem Trocknen bei hoher Massenbeladung aufgrund des Setzverhaltens geringer. Die Verdichtungsrate als Faktor führt folglich zu einer niedrigeren Porosität, wodurch hier der Einfluss der Massenbeladung überschätzt werden könnte. Gleiches gilt für die Dichte.

Letztlich ist bemerkenswert, dass die Walzentemperatur, anders als in der Literatur beschrieben, keinen signifikanten Einfluss auf die Elektrodenwelligkeit hat. Es ist zu erwarten, dass die erhöhte Duktilität des Binders die zur Partikelumlagerung notwendige Kraft absenkt. Möglicherweise werden die beschichteten Bereiche dadurch weniger gedehnt, was in Summe die Elektrodenwelligkeit reduzieren würde. Dieser Zusammenhang muss in Folgeuntersuchungen experimentell überprüft werden. Hier sei auf Abschnitt 6.4 verwiesen.

### **Wellen am Beschichtungsrand**

Wie einleitend beschrieben, lieferte die statistische Analyse für die Wellen am Beschichtungsrand Regressionsmodelle mit unzureichender Güte. Diese konnten zwar durch die Anpassung<sup>41</sup> der Parameter des Hochpassfilters verbessert werden, aber ein hohes Bestimmtheitsmaß bescheinigt zunächst nur eine gute

---

<sup>41</sup> Die in Abschnitt 5.3.3 genannten Parameter wurden in einem Versuch systematisch variiert und die Wellenlängen und -höhe in Minitab ausgewertet.

Übereinstimmung zwischen den gefilterten und den Modelldaten. Damit wird nicht zwangsläufig bestätigt, dass das gefilterte Profil dem realen Oberflächenprofil (exkl. Primärprofil der Wellenhöhe) entspricht. Daher wurde eine Maximierung des Bestimmtheitsmaßes nicht in Betracht gezogen. Im Folgenden wird stattdessen eine qualitative Analyse ausgewählter, gefilterter Oberflächenprofile durchgeführt, um die Ursache für die geringe Modellgüte zu ergründen.

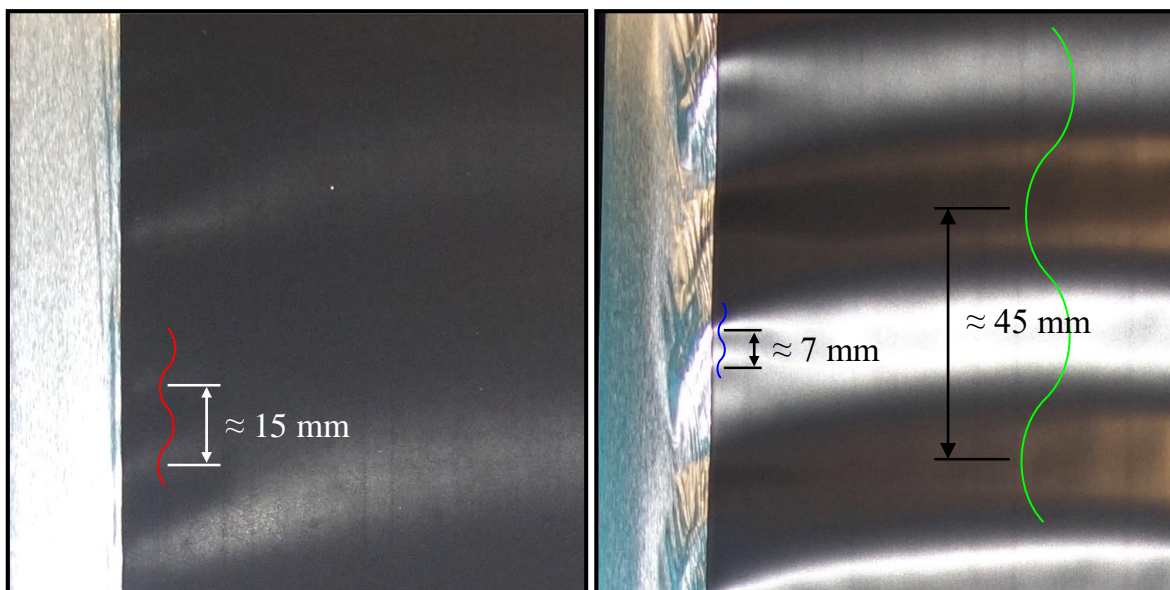
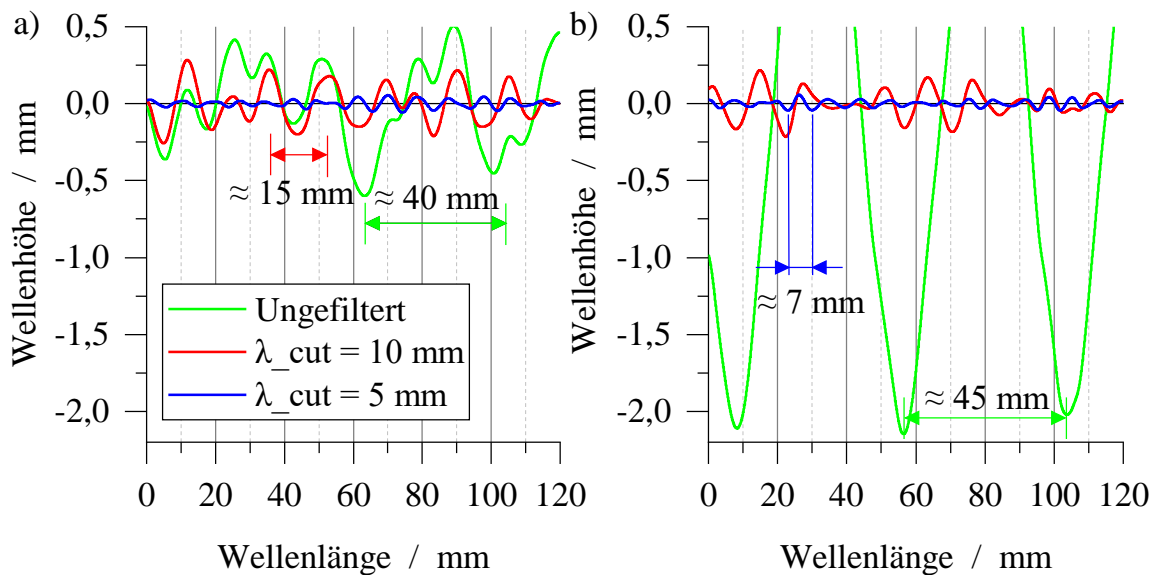


Abbildung 6-10: Oberflächenprofil mit und ohne Filterung sowie Bild in der Draufsicht der Elektroden der Versuche bei a) minimaler und b) maximaler Faktoreinstellung für die Verdichtungsrate und Massenbeladung, jeweils auf  $15 \mu\text{m}$  beschichtet und bei RT kalandriert.

Abbildung 6-10 zeigt basierend auf den Erkenntnissen aus der Auswertung zur Elektrodenwelligkeit die Oberflächenprofile der Versuche bei a) minimaler und b) maximaler Faktoreinstellung für die Verdichtungsrate und Massenbeladung, jeweils auf 15  $\mu\text{m}$  beschichtet und bei RT kalandriert. Das ungefilterte Primärprofil (grüne Kurven) unterscheidet sich stark. Links ist im Primärprofil auch ohne Filterung eine Signalüberlagerung zu erkennen, was in dem Graphen rechts nicht der Fall ist. Nach der Filterung ist das Sekundärprofil auch rechts zu erkennen. Profile, die mit einer Grenzwellenlänge von zehn Millimetern gefiltert wurden (rote Kurven), sind einheitlich in der Wellenlänge, streuen aber stark in der Wellenhöhe. Das deutet auf eine weitere Überlagerung mit Wellen geringerer Länge und Höhe hin. Durch Herabsetzen der Grenzwellenlänge, hier bspw. auf fünf Millimeter (blaue Kurven), können die kurzwelligeren Profile sichtbar gemacht werden. Es muss also schrittweise gefiltert werden, um das Oberflächenprofil vollständig zu unterteilen. In anderen Worten ist das Ergebnis vorrangig abhängig von der gewählten Grenzfrequenz. Der Benutzer entscheidet welche Anteile des Profils bzw. welche Wellenlänge analysiert wird. Bei der Entwicklung des Messverfahrens wurde nur von einem Sekundärprofil ausgegangen. Tatsächlich überlagern sich am Beschichtungsrand zusätzlich zur Elektrodenwelligkeit Wellen unterschiedlicher Größenordnung.

In Abbildung 6-10 sind unterhalb der Oberflächenprofile die entsprechenden Bilder der Elektrode in der Draufsicht zu sehen. Dabei wurden die Wellen kenntlich gemacht, die auch in den Profilen wiederzufinden sind. So lässt sich verifizieren, ob die Filterung die Profile abbildet, die der Benutzer analysieren will, und entsprechend zur Visualisierung die Grenzwellenlänge auswählen. Die Wellenlänge der Wellen am Beschichtungsrand beträgt etwa 15 mm und 7 mm. In der Ausprägung mit 15 mm Wellenlänge ähneln sie der von NEUSCHÜTZ (1987, S. 7-26) beschriebenen Randwelle, die beim Flachwalzen von Stahlprodukten auf „unterschiedliche Bandlängen über die Breite“ zurückgeführt wird (HINNEMANN 2018, S. 40). Die Eigenspannungsdifferenzen führen ab Erreichen der sog. kritischen Beulspannung zum Ausbeulen des Bandes (MÜCKE ET AL. 2002, S. 2). Da der beschichtete Bereich im Vergleich zum benachbarten Ableiter eine Längung erfährt, wellt sich der Beschichtungsrand auf. Die Ursache für die Wellen am Beschichtungsrand mit 7 mm Wellenlänge kann ein lokales Fließen der Beschichtung aufgrund von sog. *heavy edges* (vgl. Abschnitt 3.2.3) bzw. ein ungleichmäßiges Querprofil der Beschichtungskante sein. Im Grunde genommen handelt es sich um eine lokale Elektrodenwelligkeit deutlich kleineren Ausmaßes.

Das in dieser Arbeit entwickelte Auswertungsverfahren beruht auf der Mittelwertbildung von Wellenlänge und -höhe gemessener bzw. gefilterter Oberflächenprofile und auf deren statistischer Auswertung. Besteht das gefilterte Profil aus unterschiedlichen Oberflächenprofilen streuen die extrahierten Werte stark, was den Mittelwert beeinflusst. Je nach Einstellung der Filterparameter wird das eine oder das andere Oberflächenprofil stärker zum Ausdruck gebracht. Im Umkehrschluss werden mit festen Filterparametern die Messaufnahmen unterschiedlich gedämpft. Das erklärt die geringe Modellgüte bei den Wellen am Beschichtungsrand. Für die kritische Reflexion zum Messverfahren sei auf die technische Bewertung (vgl. Abschnitt 7.1) verwiesen.

Die Filterung ermöglicht letztlich die qualitative Analyse der Oberflächenprofile. Die gemessenen Oberflächenprofile bestätigen die Beobachtungen aus Abschnitt 4.2.1, dass sich die Wellen am Beschichtungsrand quasi-periodisch verhalten. Das liegt daran, dass das Oberflächenprofil nicht nur aus einem Primär- und Sekundärprofil besteht, sondern Profile unterschiedlicher Wellenlänge und -höhe beinhaltet.

### 6.3.3 Struktureigenschaften von Kathoden

Unter den strukturbedingten Fehlerbildern wurde auch für die Kathoden die **Schichtablösung** untersucht. Die entsprechende Antwortgröße ist die **Haftfestigkeit**  $\sigma_H$ . Wie in Abschnitt 6.2 beschrieben, wurden die Proben, anders als bei den Anoden, am Rand und in der Mitte des Beschichtungsstreifens entnommen. Der t-Test für verbundene Stichproben ergibt, dass sich die Stichproben nicht signifikant unterscheiden ( $t(33) = 0,64$ ,  $p = 0,523$ ); also wurden alle Einzelwerte eines Versuchs für die Mittelwertbildung herangezogen.

Die statistische Auswertung der Versuchsdaten mittels MLR ergibt ein Modell mit mäßigem Bestimmtheitsmaß ( $R^2 = 54,22\%$ ), was eine geringe Übereinstimmung zwischen den Messwerten und dem Modell ausdrückt. Daher wurden die Messwerte mittels deskriptiver Statistik genauer untersucht. Abbildung 6-11 a) zeigt die Mittelwerte und Standardabweichungen der einzelnen Beobachtungen in Durchlaufreihenfolge. Obwohl die relative Standardabweichung mit 4,66% für das verwendete Messverfahren erfahrungsgemäß gering ausfällt, unterscheiden sich die einzelnen Mittelwerte meistens nicht von der Standardabweichung anderer. Außerdem sind die Beobachtungen mit 2411,76 kPa Haftfestigkeit im arithmetischen Mittel im Vergleich zu Werten aus der Literatur hoch. Zur deutlicheren Darstellung der Verteilung der Messwerte, wurden diese grafisch in Abbildung 6-11 b) als Box-Plot zusammengefasst.

Die Spannweite des Datensatzes reicht von 1911,96 kPa bis 2592,93 kPa, wobei der kleinste Datenpunkt als Ausreißer erkannt wird. Die untere Antenne (sog. *Whisker*) entspricht 2211,78 kPa. Damit beschränkt sich das eineinhalbfache des Interquartilsabstands<sup>42</sup> (IQR) auf 2211,78 kPa bis 2592,93 kPa, wobei 50 % der Werte zwischen 2347,43 kPa und 2507,62 kPa liegen, was einer mittleren absoluten Abweichung vom arithmetischen Mittel von 36,47 kPa entspricht. Zuletzt fällt auf, dass der Versuch mit der niedrigsten Haftfestigkeit, der als Ausreißer deklariert wird, der Faktorkombination mit der höchsten Massenbeladung, der niedrigsten Verdichtungsrate und der niedrigsten Walzentemperatur entspricht. Im Vergleich zu den Versuchsergebnissen zu Anoden aus Abschnitt 6.3.1 handelt es sich um die schlechteste Einstellung hinsichtlich einer Maximierung der Haftfestigkeit.

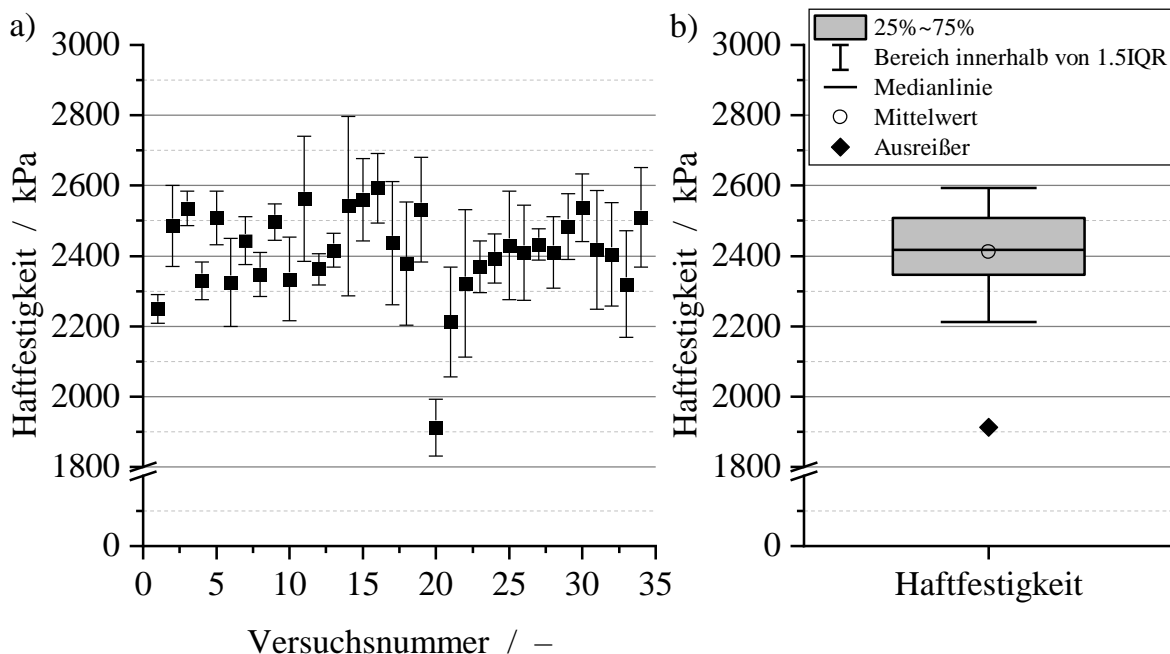


Abbildung 6-11: a) Mittelwerte der einzelnen Versuche in Durchlaufreihenfolge mit Angabe der Standardabweichung der Einzelmessungen und b) Box-Plot des Datensatzes

Zusammengefasst weisen die Messwerte einzeln eine geringe relative Standardabweichung auf, haben in Summe eine geringe Streubreite und die Faktorkombination des Versuchs mit der niedrigsten Haftfestigkeit ist bezogen auf die Schichthaftung ungünstig.

<sup>42</sup> Der IQR ist die Differenz zwischen dem oberen- und unteren Quartil und beschreibt die Ausdehnung der Box. Um die außerhalb der Box liegenden Werte zu beschreiben, wir oftmals das eineinhalbfache des IQR herangezogen (KRÄMER ET AL. 2008, S. 144).

Die qualitative Beurteilung der Bruchbilder ergab, dass es sich vornehmlich um Kohäsionsbrüche handelte. Dies könnte erklären, warum eine steigende Massenbeladung keinen signifikanten, negativen Einfluss auf die Haftfestigkeit hat. Diese würde sich an der Grenzfläche zwischen der Substratfolie und Beschichtung bemerkbar machen. Hingegen führte eine höhere Walzentemperatur ( $p = 0,030$ ) v. a. in Wechselwirkung mit der Verdichtungsrate ( $p = 0,049$ ) zu einer verbesserten Haftfestigkeit, was zu einer verbesserten Kohäsion geführt haben könnte. Des Weiteren versagte vereinzelt das Klebeband ohne Abriss des Verbunds. Möglicherweise kam das Messverfahren aufgrund der hohen Haftfestigkeiten an seine Grenzen, weshalb es die Effekte des Kalandrierens nicht beschreiben konnte. Auf mögliche Einschränkungen des Messverfahrens wird in der technischen Bewertung in Abschnitt 7.1 eingegangen.

Die hohe Haftfestigkeit, v. a. an der Grenzfläche, ist möglicherweise auf die Verwendung einer weichen Substratfolie mit dem Härtegrad ‚O‘ zurückzuführen, da dies eine verbesserte mechanische Verklammerung der Partikel ermöglicht. Wie in Abbildung 6-12 a) zu sehen, sind bereits bei der geringsten Verdichtungsrate und temperierten Walzen Partikeleindrücke in der Aluminiumfolie zu erkennen. Obwohl diese in Anzahl und Ausmaß weniger ausgeprägt sind als bei maximaler Verdichtungsrate und RT (vgl. Abbildung 6-12 b), begünstigen sie dennoch die Haftfestigkeit.

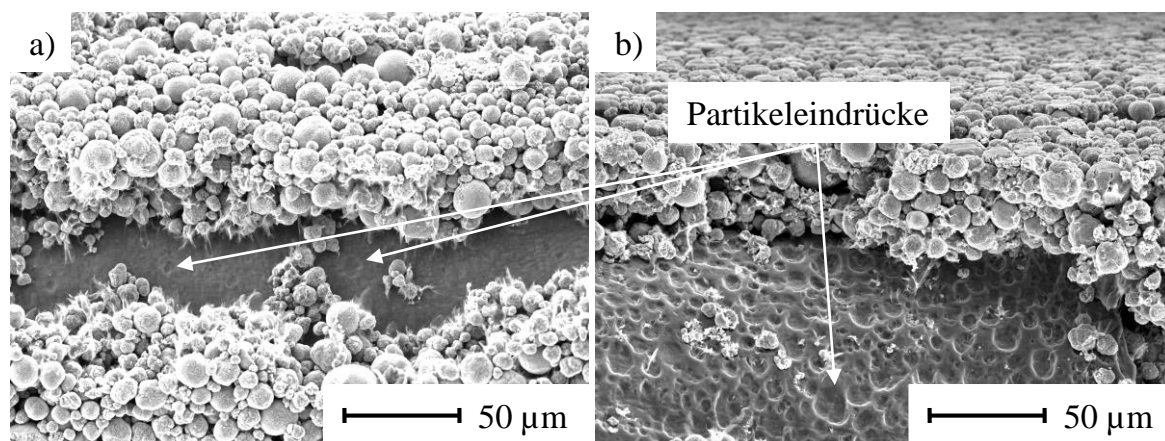


Abbildung 6-12: REM-Aufnahmen der Kathode mit a) 12% Verdichtungsrate und 80°C Walzentemperatur und mit b) 28% Verdichtungsrate und RT kalandriert, 500-fach vergrößert.

### Kontrollversuch

Um den Effekt einer weichen Substratfolie auszuschließen, wurde ein Kontrollversuch an Kathoden mit derselben Elektrodenformulierung geplant. Die Kathoden sind auf einer gehärteten Aluminiumfolie ‚H18‘ (Alloy 1070, TARGRAY TECHNOLOGY INTERNATIONAL INC.) einseitig beschichtet und wurden am Laborkalander des TEC verdichtet. Die Versuchsdaten wurden statistisch mittels MLR ausgewertet ( $R^2 = 82,84\%$ ). Der Parameter Porosität ist signifikant ( $p = 0,019$ ), zum Quadrat hoch signifikant ( $p < 0,001$ ) und in Wechselwirkung mit der Walzentemperatur sehr signifikant ( $p = 0,003$ ). Abbildung 6-13 a) zeigt den Einfluss der Porosität auf die Haftfestigkeit. Diese nimmt zunächst ab, erreicht bei ca. 34–35 % Porosität ein Minimum und steigt dann mit stärkerer Verdichtung wieder an.

In Abbildung 6-13 b) ist der Einfluss der Walzentemperatur auf die Haftfestigkeit zu beobachten. Es ist ein deutlicher Unterschied zwischen Kalandrieren bei RT und bei erhöhter Temperatur zu erkennen. Von 80 °C auf 100 °C Walzentemperatur steigt die Haftfestigkeit weiter an, bei 120 °C ist eine leichte Abnahme zu verzeichnen bzw. ein Plateau zu beobachten. Es sei daran erinnert, dass jeweils alle Porositätsstufen gemittelt sind, was die z.T. geringeren Haftfestigkeiten verglichen zu Abbildung 6-13 a) erklärt.

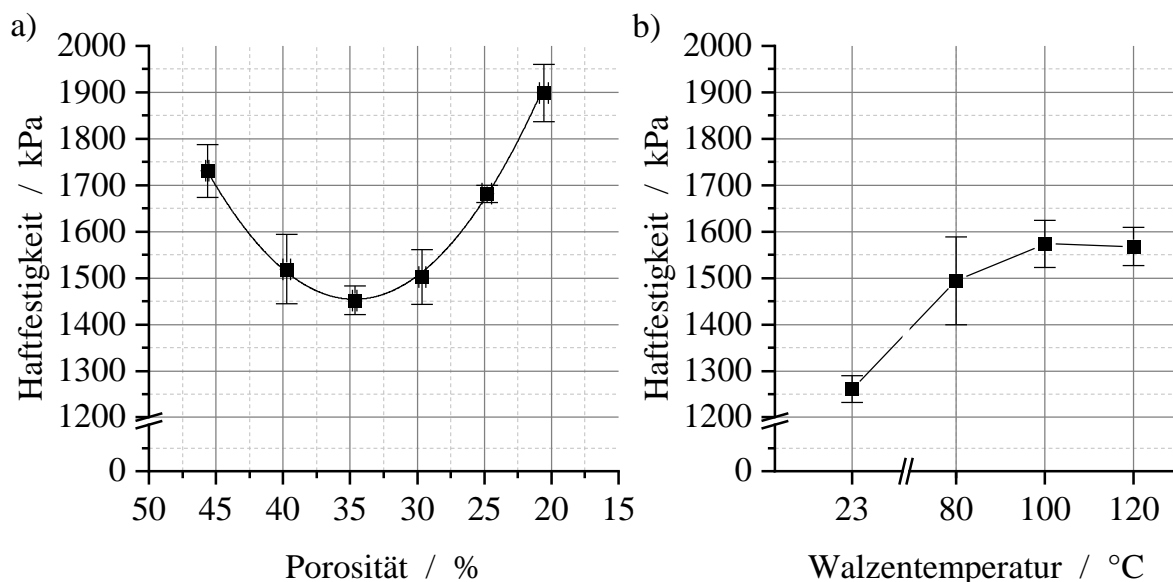


Abbildung 6-13: Verlauf der Mittelwerte mit Standardfehler für die Haftfestigkeit über a) der Porosität und b) der Walzentemperatur

Als Anlagenmerkmal wurde der Einfluss des Walzendurchmessers bei RT untersucht. Abbildung 6-14 zeigt den Einfluss der Porosität in Abhängigkeit vom Walzendurchmesser auf die Haftfestigkeit. Diese ist bei 400 mm im Mittel ca. 18 % höher als bei 200 mm Walzendurchmesser. Mit größerem Walzendurchmesser kann

die Haftfestigkeit bei höheren Verdichtungsraten bzw. bei niedrigerer Porosität wieder erhöht werden, was bei kleineren Durchmessern nicht der Fall ist.

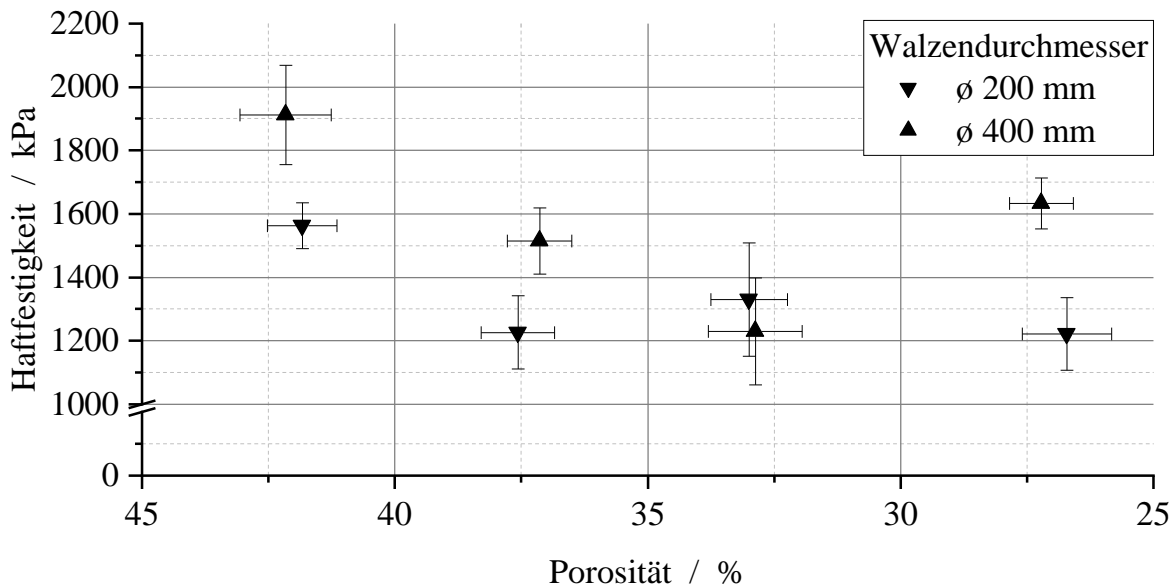


Abbildung 6-14: Mittelwert mit Standardfehler für die Haftfestigkeit in Abhängigkeit vom Walzendurchmesser.

Die Haftfestigkeit von Kathoden wurde in dieser Arbeit untersucht, weil in der Literatur ausschließlich von einseitig beschichteten Elektroden berichtet wurde. Da in mehrlagigen, großformatigen LIB doppelseitige Elektroden zum Einsatz kommen, sollte überprüft werden, ob die Erkenntnisse übertragbar sind. Wie zuvor erläutert, konnte kein eindeutiger Einfluss der untersuchten Faktoren festgestellt werden. Daher wurde ein Kontrollversuch zu einseitig beschichteten Kathoden durchgeführt, um zunächst die Gültigkeit der Zusammenhänge zu überprüfen und zusätzlich den Einfluss des Walzendurchmessers zu untersuchen.

Im Folgenden werden die Ergebnisse diskutiert. Im Vergleich mit Ergebnissen aus der Literatur fällt auf, dass der parabelförmige Kurvenverlauf der Haftfestigkeit in Abhängigkeit von der Porosität übereinstimmt (HASELRIEDER 2016, S. 213, MEYER 2019, 96, 99, 124, SCHILCHER ET AL. 2016, S. 1607). Obwohl Unterschiede hinsichtlich der absoluten Werte und der Kurvensteigung in Abhängigkeit von den Produkteigenschaften (Partikelgröße, Massenbeladung, usw.) zu erkennen sind, ist die Form der Kurve vergleichbar. Dies deutet auf ein ähnliches Verhalten von Kathodenpartikeln in Bezug auf die Haftfestigkeit hin. Außerdem wird in der Literatur ein Minimum der Haftfestigkeit zwischen 30% und 35% Porosität angegeben, was mit den Ergebnissen dieser Arbeit übereinstimmt. Der in dieser Arbeit beobachtete positive Einfluss des Warmkalandrierens bezogen auf die



Haftfestigkeit stimmt mit den Ergebnissen von MEYER (2019, S. 96) überein, der bei 40 °C und 90 °C Walzentemperatur höhere Haftfestigkeiten als bei RT gemessen hat.

Die Absenkung der Haftfestigkeit bei geringen Verdichtungsraten wird für Anoden und Kathoden in der Literatur gleichermaßen erläutert (vgl. Abschnitt 6.3.1). Der Wiederanstieg der Haftfestigkeit nach Erreichen des Minimums bei höheren Verdichtungsraten für Kathoden wird u.a. durch das Eindringen der Aktivmaterialpartikel in die Aluminiumfolie, was zu einer mechanischen Verklammerung führt, erklärt (HASELRIEDER 2016, S. 215, TRAN ET AL. 2012, S. 280). I. Allg. ist zu beobachten, dass der Wiederanstieg der Haftfestigkeit nach Erreichen des Minimums bei Kathoden früher eintritt als bei Anoden. In dieser Arbeit steigt die Haftfestigkeit bei Kathoden unter 35 % Porosität wieder an. Bei Anoden ist dies erst bei höheren Verdichtungen, die ca. 30 % bis 20 % Porosität entsprechen, der Fall. Dieser Zusammenhang lässt sich in dem Zusammenspiel zwischen den Beschichtungs- und Substrateigenschaften erklären. Die Oberfläche von Kathodenpartikeln ist rauer, was zu einer deutlich erhöhten Reibung im Vergleich zu Anodenpartikeln führt. Dadurch werden die Druckspannungen im Walzspalt früher in die Substratfolie eingeleitet, als dies bei Anoden der Fall ist. Der Bindungspunkt wandert in Richtung Walzspalteintritt. Hier sei auf die Ergebnisse von MEYER (2019, S. 125) verwiesen, der in einer Studie mit verschiedenen Kathodenpartikeln eine erneute Erhöhung der Haftfestigkeit für Partikel mit rauerer Oberflächen bereits bei höherer Porosität beobachtete. Ein weiterer Grund ist das Verdichtungsverhalten von partikulären Systemen. Zu Beginn des Verdichtungsvorgangs werden die Partikel umgeordnet, ohne dass der Verdichtungswiderstand stark ansteigt. Sobald diese aufeinandertreffen, steigt der E-Modul der Beschichtung stark an. Der E-Modul von NMC-111-Partikeln wird mit 113 GPa bzw. 199 GPa angegeben (CHENG ET AL. 2017, S. 3215, STERSHIC ET AL. 2015, S. 545) und übersteigt damit den E-Modul von Aluminium, der ca. 70 GPa beträgt. Die Aluminiumfolie beginnt zu Fließen, was dem Erreichen des Bindungspunktes entspricht. Auch hier ist ein Vergleich mit den Ergebnissen von MEYER (2019, S. 99) von Interesse. Mit zunehmendem Massenanteil des Binders in der Beschichtung verschiebt sich der Punkt, an dem die Haftfestigkeit wieder zunimmt, zu einer geringeren Porosität. Es empfiehlt sich also bei hohen Elektrodendichten den Binderanteil zu reduzieren, da die Haftfestigkeit durch das Kalandrieren ansteigt und ggf. die der unkalandrierten Elektrode übertrifft.

Wie bei den Anoden (vgl. Abschnitt 6.3.1) wirkt sich ebenfalls bei den Kathoden eine Erhöhung der Walzentemperatur positiv auf die Haftfestigkeit aus. Auch hier ist davon auszugehen, dass es während der Partikelumordnung aufgrund der erhöhten Duktilität des Binders weniger zum Reißen von Bindermolekülketten kommt. Die

Ergebnisse aus dieser Arbeit, die jene von MEYER komplettieren, zeigen auf, dass mit einer weiteren Erhöhung der Walzentemperatur keine weitere Verbesserung der Haftfestigkeit zu erzielen ist. Untersuchungen an PVDF im Zugversuch zeigen, dass die Bruchdehnung bei RT etwa 30 % beträgt, bei 50 °C auf über 50 % ansteigt und ab 100 °C bei über 500 % liegt (KALB ET AL. 1995, S. 60). Das erklärt warum die Haftfestigkeit ab 100 °C nicht wesentlich verbessert werden konnte und die Werte ein Plateau erreichen.

Ebenso bemerkenswert ist die Wechselwirkung zwischen der Walzentemperatur und der Porosität, wie auch bei den Anoden beobachtet (vgl. Abschnitt 6.3.1). PARRY & TABOR (1973, S. 626) berichteten von einem Zusammenhang zwischen dem hydrostatischen Druck und der Temperatur in Bezug auf die viskoelastischen Eigenschaften von PVDF. Die Relaxation der Struktur des PVDF könnte zwar einen Einfluss haben, dieser lässt sich aber nicht ohne Weiteres bestätigen. Ohnehin wurden die Elektroden lediglich in Normalenrichtung belastet. Um die wirkenden Haftungsmechanismen gesamthaft zu untersuchen, müssten die Elektroden zusätzlich auf Scherung und Biegung beansprucht werden. Für diese Arbeit kann festgehalten werden, dass die positive Wechselwirkung in der Kombination aus der mechanischen Verklammerung der Partikel in die Substratfolie und der schonenden Partikelumlagerung ohne Überschreitung der Bruchdehnung des PVDF liegt.

Die beobachtete Absenkung der Linienlast beim Warmkalandrieren (MEYER ET AL. 2020, SCHREINER ET AL. 2019, S. 3) könnte auch bedeuten, dass nicht nur die zur Verdichtung erforderliche Druckspannung, sondern auch die mittlere Schubspannung im Walzspalt sinkt. Dies würde auch einen Erklärungsansatz liefern, warum kleinere Walzendurchmesser aufgrund höherer Schubspannungen zu geringeren Haftfestigkeiten führen. Genauer betrachtet liegen diesem Effekt aber andere Ursachen zugrunde. HASELRIEDER (2016, S. 214) erläutert zwar, dass für kleinere Walzendurchmesser bei gleicher Walzkraft aufgrund der kleineren gedrückten Länge eine höhere Verdichtungsspannung vorliegt, was „größere Materialverformungen und höhere Schubspannungen an der Grenzfläche zum Substrat“ zur Folge hat. Das erklärt aber nicht die geringere Haftfestigkeit bei kleineren Kalandrierwalzen, da – wie in Abbildung 6-13 a) zu sehen – die Verdichtungsrate ohnehin einen Einfluss auf die Haftfestigkeit hat. Zusätzlich führt HASELRIEDER (2016, S. 214) aus, dass sich die maximale Druckspannung im Walzspalt „schlagartiger“ einstellt, was das „Adhäsions- bzw. Kohäsionsversagen“ fördert. Tatsächlich bilden, wie in Abschnitt 2.3.3 erläutert und in Abbildung 2-5 dargestellt, der Walzendurchmesser und die Elektrodendicke die gedrückte Länge aus. Für größere Walzendurchmesser geht die Verdichtung langsamer vonstatten. Beim Verdichten von Metallpulvern

macht sich das bspw. daran bemerkbar, dass die Luft in den Poren mehr Zeit zum Entweichen hat und damit eine geringere elastische Rückdehnung nach Verlassen des Walzspaltes erfolgt (PIETSCH 1987, S. 11), was auf Elektroden übertragbar sein könnte. Ein kleineres Verhältnis von Walzendurchmesser bzw. gedrückter Länge zur Spalthöhe bzw. Elektrodendicke verschiebt das Maximum der Druckspannung in die Rückstauzone (SCHMIDTCHEN & KAWALLA 2017, S. 95). Damit geht eine höhere Belastung mit einher, da weniger Zeit zur Partikelumordnung zur Verfügung steht, was zum Versagen der Partikel-Partikel- und Partikel-Substrat-Kontakte führt. Die Haftfestigkeit kann durch stärkere Verdichtung durch die Verschiebung der Lage des Druckmaximums nicht mehr verbessert werden, was den Kurvenverlauf von Abbildung 6-14 erklärt. Dabei sind Relativbewegungen bzw. Scherspannungen zwischen der Beschichtung und der Substratfolie möglich, welche die Haftfestigkeit schwächen.

#### 6.3.4 Mechanische Eigenschaften von Kathoden

Schließlich werden die Untersuchungen zum Einfluss des Kalandrierens auf die **Elektrodenversprödung** und den **Folienriss** an NMC-111-Kathoden vorgestellt. Die untersuchten Antwortgrößen sind im Biegeversuch die **Steigung der Ausgleichsgeraden  $m$**  und der **Biegemodul  $E_B$** . Im Scherversuch handelt es sich um die **Scherkraft  $F_{\max,S}$** , **Scherfestigkeit  $\tau_S$**  und den **Scherwinkel  $\theta_S$** .

Wie in Abbildung 12-10 beschrieben, wurden zur Beschreibung der mechanischen Eigenschaften der Kathoden Proben in Bahnmitte, am Rand sowie quer und längs zur MR entnommen. Mit einem t-Test für verbundene Stichproben wurde überprüft, ob sich das Messergebnis entsprechend der Position und Orientierung der Probe unterscheidet. Für den Biegeversuch ist das Ergebnis hinsichtlich der Orientierung nicht signifikant ( $t(67) = -1,18$ ,  $p = 0,878$ ). Bezogen auf die Entnahmeposition in der Mitte oder am Rand ergibt der t-Test hingegen, dass sich die Stichproben signifikant unterscheiden ( $t(67) = 3,18$ ,  $p = 0,002$ ). Bei näherer Betrachtung fällt auf, dass in 69,12 % der Fälle die Steigung der Ausgleichsgeraden des Biegeversuchs in der Mitte höher ist als am Rand. Ein weiterer t-Test mit der Alternativhypothese  $Mittelwerte_{\text{Mitte}} - Mittelwerte_{\text{Rand}} > 0$  bestätigt die Beobachtung statistisch durch einen verbesserten p-Wert ( $t(67) = 3,18$ ,  $p = 0,001$ ). Dieses Verhalten wird im Zuge der grafischen Analyse diskutiert. Für den Scherversuch konnte nicht festgestellt werden, dass sich die Stichproben hinsichtlich der Entnahmeposition signifikant unterscheiden ( $t(33) = 0,27$ ,  $p = 0,792$ ). Für die Orientierung der Probe beim Biegeversuch und die Positionierung beim Scherversuch wurden alle Einzelwerte

eines Versuchs jeweils zusammengeführt und vor der Mittelwertbildung einem Ausreißertest nach Grubbs unterzogen. Für die Positionierung der Probe beim Biegeversuch wurde zwischen Mitte und Rand unterschieden.

Tabelle 6-4: Übersicht der Ergebnisse der MLR-Analyse für den Biegeversuch

Antwortgrößen	R <sup>2</sup>	Signifikante Einflussgrößen	p-Wert	
Steigung Ausgleichsgerade	94,82 % (Mitte)	Massenbeladung	Mitte < 0,001 Rand < 0,001	
		Verdichtungsrate	Mitte < 0,001 Rand < 0,001	
	97,80 % (Rand)	Foliendicke	Mitte 0,003 Rand < 0,001	
		Verdichtungsrate·Massenbeladung	Rand < 0,001	
			Verdichtungsrate·Foliendicke	Rand 0,007
			Walzentemperatur	Mitte 0,019 Rand 0,049
	Biegemodul	96,36 % (Mitte)	Verdichtungsrate	Mitte < 0,001 Rand < 0,001
			Foliendicke	Mitte < 0,001 Rand < 0,001
		97,65 % (Rand)	Verdichtungsrate <sup>2</sup>	Mitte 0,006 Rand < 0,001
			Massenbeladung	Mitte 0,006
			Verdichtungsrate·Massenbeladung	Mitte 0,015
			Verdichtungsrate·Foliendicke	Mitte 0,040 Rand < 0,001

Anschließend wurden die Daten mittels MLR ausgewertet. In Tabelle 6-4 werden die Modelle für den Biegeversuch und in Tabelle 6-5 für den Scherversuch zusammengefasst. Das Bestimmtheitsmaß fällt für vier von fünf Antwortgrößen hoch aus ( $R^2 \geq 93,80\%$ ). Mit einem deutlich niedrigeren Bestimmtheitsmaß ( $R^2 = 78,13\%$ ) sticht die Scherkraft heraus. Eine genauere Betrachtung der Einflussgrößen zeigt, dass die Verdichtungsrate einen signifikanten Einfluss auf alle Antwortgrößen außer der Scherkraft hat. Die Versuchsergebnisse lassen keinen Zusammenhang zwischen der Verdichtungsrate und der Scherkraft erkennen. Die geringere Modellgüte der Scherkraft lässt sich dadurch erklären, dass ein hohes Maß an Streuung ohne die Verdichtungsrate als Modellfaktor nicht dargestellt werden kann.

Tabelle 6-5: Übersicht der Ergebnisse der MLR-Analyse für den Scherversuch

Antwortgrößen	R <sup>2</sup>	Signifikante Einflussgrößen	p-Wert
		Foliendicke	< 0,001
Scherkraft	78,13 %	Massenbeladung·Foliendicke	< 0,001
		Walzentemperatur	0,024
		Massenbeladung	< 0,001
		Verdichtungsrate	< 0,001
Scherfestigkeit	93,80 %	Foliendicke	< 0,001
		Massenbeladung·Foliendicke	< 0,001
		Walzentemperatur	0,014
		Foliendicke	< 0,001
Scherwinkel	94,67 %	Verdichtungsrate	< 0,001
		Massenbeladung·Foliendicke	0,005

Wie in den Tabelle 6-4 und 6-5 an den p-Werten zu erkennen, sind alle untersuchten Parameter für den Biege- und Scherversuch statistisch signifikant. Bezogen auf die spezifischen Antwortgrößen und v. a. darauf, ob diese auf die Dicke normiert sind, unterscheiden sich die Ergebnisse der schrittweisen Regressionsanalyse jedoch. Die Einflussstärke der Parameter ändert sich und deren Rangfolge sortiert sich um. Wie in Abschnitt 5.2.2 diskutiert, kommt es bspw. zu einer stärkeren Wirkung der Verdichtung durch Abnahme der Schichtdicke. Weiter sind Interaktionen zwischen

der Verdichtung und den Produkteigenschaften und auch zwischen der Schicht- und Foliendicke zu erkennen. Die signifikanten Einflussgrößen werden im Folgenden anhand von grafischen Analysen beschrieben und diskutiert.

Abbildung 6-15 a) zeigt den Einfluss der Massenbeladung auf die Steigung der Ausgleichsgeraden und den Biegemodul. Mit der Zunahme der Massenbeladung ist eine deutlich steilere Steigung der Ausgleichsgeraden zu beobachten. Diese verdoppelt sich bei Anstieg der Massenbeladung von  $13 \text{ mg}_{\text{NMC}}/\text{cm}^2$  und  $19,5 \text{ mg}_{\text{NMC}}/\text{cm}^2$  für Rand und Mitte der Elektrode, was einem stärkeren Kraftanstieg entspricht und ein steiferes Biegeverhalten beschreibt. Die Mitte der Elektrode ist steifer, wobei mit höherer Massenbeladung der Unterschied geringer ausfällt. Der Biegemodul ändert sich für den Elektrodenrand zwischen  $13 \text{ mg}_{\text{NMC}}/\text{cm}^2$  und  $19,5 \text{ mg}_{\text{NMC}}/\text{cm}^2$  kaum. Für die Elektrodenmitte ist eine Abnahme des Biegemoduls um ca. 14,97% zu beobachten.

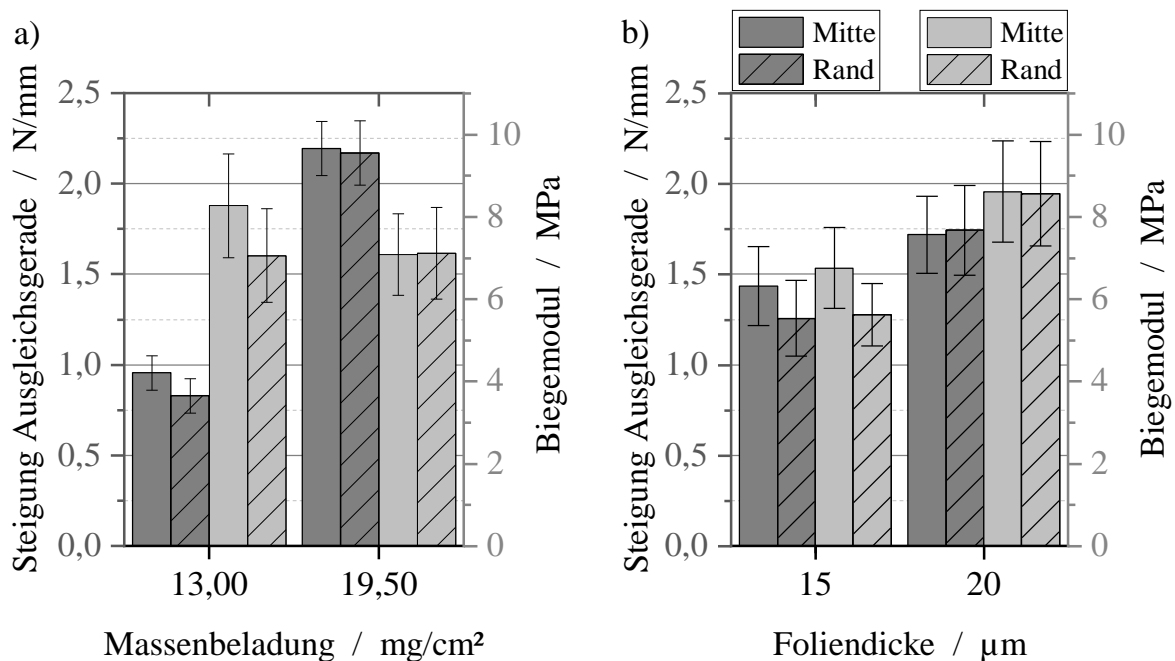


Abbildung 6-15: Mittelwerte mit Standardfehler für die Steigung der Ausgleichsgeraden und den Biegemodul über a) der Massenbeladung und b) der Foliendicke

Abbildung 6-15 b) zeigt die Lage der Mittelwerte für die Steigung der Ausgleichsgeraden und den Biegemodul in Abhängigkeit von der Foliendicke. In beiden Fällen verhalten sich die Elektroden bei Zunahme der Foliendicke von  $15$  auf  $20 \mu\text{m}$  steifer. Für die Elektrodenmitte und den Rand nimmt die Steigung der Ausgleichsgeraden um 19,75% bzw. 38,73% zu. Außerdem gleichen sich die Mittelwerte für Elektrodenrand und -mitte mit der dickeren Substratfolie an. Der

Biegemodul ist trotz Normierung auf die Elektrodendicke höher, da die steilere Ausgleichsgerade einen größeren Einfluss als die Dickenzunahme durch die Substratfolie hat. Hier steigen die Werte für die Elektrodenmitte und den Rand um 27,52 % bzw. 52,50 %.

Die Ergebnisse zeigen einen starken Einfluss der Produkteigenschaften Massenbeladung und Foliendicke auf die Biegeeigenschaften von Elektroden. Die kombinierte Auswertung der Steigung der Ausgleichsgeraden und des Biegemoduls erlaubt eine differenzierte Analyse. Die Tatsache, dass die Ausgleichsgerade bei höheren Massenbeladungen steiler verläuft, ist nicht überraschend. Dies bestätigt, dass bei Elektroden oder porösen Beschichtungen eine Zunahme der Materialdicke mit der Biegesteifigkeit einhergeht. Der Biegemodul kann trotz der porösen Beschichtung durch Normierung auf die Elektrodendicke auch zur Abschätzung der Materialeigenschaften verwendet werden. Dabei fällt die Inkonsistenz für den Biegemodul in Elektrodenmitte auf. Sind die der Berechnung zugrundeliegenden Werte, v. a. die Elektrodendicke, ungenau, ist der Einfluss groß. Die Elektrodendicke wurde nur während des Kalandrierens gemessen, um den experimentellen Aufwand zu verringern. Im Prozess kann sie nur am Rand gemessen werden, da der Bügel der Messschraube eine Messung in der Elektrodenmitte nicht zulässt. Für die Berechnung wurde der Messwert für den Elektrodenrand eingesetzt. Ist die Elektrode in der Mitte bspw. aufgrund der Walzendurchbiegung dicker als angenommen, wird der Biegemodul überschätzt. Bei geringeren Schichtdicken hat der Fehler proportional einen größeren Einfluss. Nichtsdestotrotz ist bereits die Steigung der Ausgleichsgeraden in der Mitte für  $13 \text{ mg}_{\text{NMC}}/\text{cm}^2$  Massenbeladung im Mittel höher. Jene wird nicht berechnet, sondern direkt gemessen, was auch den Unterschied im Biegemodul erklären kann.

Die Auswertung der Foliendicke zeigt, dass der Biegemodul generell für dickere Substratfolien höher ausfällt. Die in dieser Arbeit angewandte Formel zur Berechnung der Verdichtungsrate nach HASELRIEDER ET AL. (2013, S. 61) kann zwar dazu führen, dass für dickere Folien die Beschichtung stärker verdichtet wird, was die Biegesteifigkeit beeinflussen würde (vgl. Abbildung 6-17 a). Die Zunahme des Biegemoduls ist aber zu groß, um allein darüber erklärt zu werden. Die Biegeeigenschaften der Elektrode werden daher maßgeblich von den Substrateigenschaften auf der Produktseite bestimmt. Wenn der Unterschied zwischen Rand und Mitte auf eine ungleichmäßige Beschichtung oder Verdichtung zurückzuführen ist, anders als zur Vereinfachung angenommen, würde dies erklären, warum es bei der dickeren Folie keinen Unterschied mehr zwischen Elektrodenmitte und -rand gibt.

Abbildung 6-16 fasst grafisch den Einfluss der Produkteigenschaften auf die Schereigenschaften zusammen. Im Bereich a) der Abbildung ist zu erkennen, dass durch Erhöhung der Foliendicke von 15  $\mu\text{m}$  auf 20  $\mu\text{m}$  die Scherkraft und -festigkeit in ähnlichem Maße zunehmen, nämlich um 19,45 % bzw. 16,26%. Wird der Scherwinkel im Bereich b) betrachtet, der die Reißdehnung im Scherversuch beschreibt, ist ein Anstieg um 32,85% von 26,88° auf 35,71° zu beobachten. Theoretisch sind bis zu 90° möglich. Zusammenfassend lässt sich sagen, dass die Verwendung einer dickeren Folie dazu führt, dass der Stempelweg bis zum Folienriss und die dafür erforderliche Kraft zunehmen.

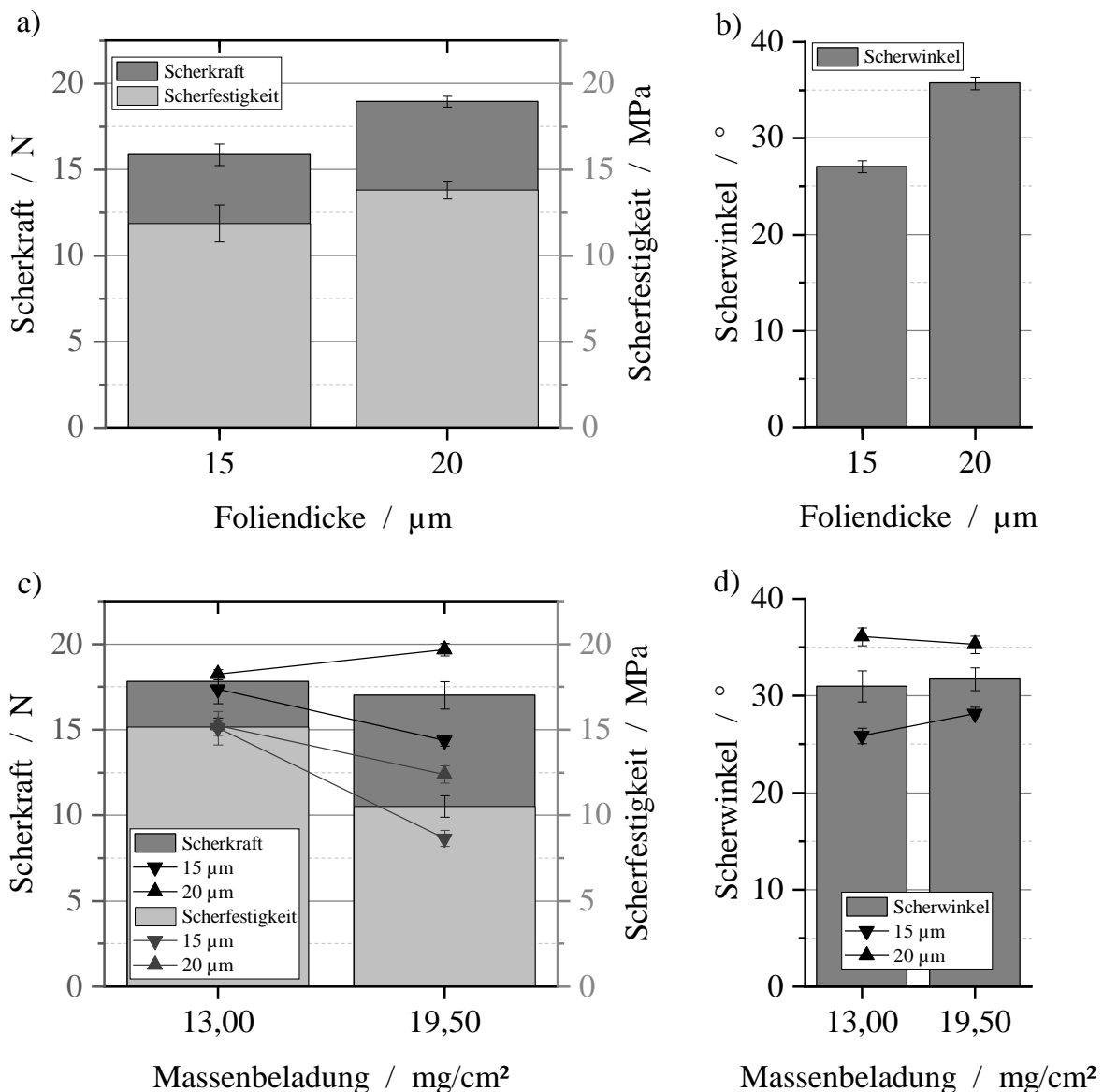


Abbildung 6-16: Mittelwerte mit Standardfehler für die Scherkraft und die Scherfestigkeit sowie den Scherwinkel über der Foliendicke (a, b) und der Massenbeladung inkl. der Wechselwirkungen mit der Foliendicke (c, d)



Die untere Hälfte von Abbildung 6-16 zeigt die Veränderung der Schereigenschaften, wenn die Massenbeladung erhöht wird. Wie in Tabelle 6-5 zu sehen, sind v. a. Wechselwirkungen mit der Foliendicke signifikant. Diese sind als verbundene Punkte in den Graphen dargestellt. Die Erhöhung der Massenbeladung hat statistisch gesehen lediglich einen Einfluss auf die Scherfestigkeit. Der Grund dafür ist, dass eine höher beladene Elektrode nicht zwingend zu höheren Scherkräften führt, was normiert auf die Dicke eine Abnahme der Scherfestigkeit bedeutet. Interessanter ist jedoch das Verhalten in Bezug auf die Foliendicke. Wird eine dickere Substratfolie eingesetzt, steigt bei Erhöhung der Massenbeladung die Scherkraft. Die Kraftzunahme reicht für eine Erhöhung der Scherfestigkeit aber nicht aus. Hier hat die Dickenzunahme einen größeren Einfluss. Kommt die dünnere Folie zum Einsatz, sinken beide Antwortgrößen deutlich, nämlich um 42,67 % bzw. 18,69 %.

Der Scherwinkel bleibt nahezu unverändert, wenn die Massenbeladung steigt. Diese Änderung ist statistisch nicht signifikant, wohl aber die Wechselwirkung mit der Foliendicke. Der Anstieg des Scherwinkels ist nur bei dünner Folie zu beobachten. Bei dicker Folie und hoher Massenbeladung sinkt der Scherwinkel.

Die Ergebnisse zeigen, dass die Foliendicke nicht nur die Biege-, sondern auch die Schereigenschaften maßgeblich beeinflusst. Sowohl die Kraft als auch die Dehnung beim Riss nehmen mit höherer Foliendicke zu. Im Sinne der Weiterverarbeitung sind dickere Folien also weniger anfällig auf Bahnrisse, die einen Produktionsstopp zur Folge hätten. Entgegen den Erwartungen führt die Massenbeladung und damit die Elektrodendicke nicht zu einer Erhöhung der Scherkraft. Dies kann auf die porösen Eigenschaften der Beschichtung zurückzuführen sein. Sobald der Riss an der Beschichtungsoberfläche eingeleitet wurde, breitet er sich durch die Beschichtung aus und bricht die Kohäsion auf, ohne dass die Dicke im untersuchten Bereich einen signifikanten Einfluss hat. Die maximale Kraft entspricht weiterhin dem Durchstoßen der Folie. In dieser Hinsicht ist interessant, dass bei hoher Massenbeladung und geringer Foliendicke die benötigte Scherkraft sinkt. Das könnte darauf hindeuten, dass die Folie aufgrund des Kalandrierens stark verformt und durch Partikeleindrücke und Dehnung stärker geschwächt ist, als dies bei geringerer Massenbeladung oder dickerer Folie der Fall ist.

Bei der Interpretation der Wechselwirkungen muss beachtet werden, dass einerseits unterschiedliche Beschichtungseigenschaften nicht auszuschließen sind. Wie auch von MEYER (2019, S. 96 f.) bereits beschrieben, wird bei der Fertigung von Elektroden mit unterschiedlichen Massenbeladungen der Vergleich dadurch erschwert, dass die Trocknungsbedingungen sich unterscheiden können. Als Bsp. sei

erwähnt, dass allein die Elektroden mit  $13 \text{ mg}_{\text{NMC}}/\text{cm}^2$  Massenbeladung, die auf  $15 \mu\text{m}$  Folie beschichtet wurden, einen konkaven Anstieg der Kraft-Weg-Kurve aufweisen. Alle anderen Elektroden besitzen hingegen einen konvexen Kurvenverlauf (vgl. Abbildung 5-5 rechts). Andererseits sind Messartefakte möglich, da das Verfahren nicht standardisiert ist und in dieser Arbeit prototypisch umgesetzt erprobt wurde. Als Bsp. seien der Einfluss der Probendicke und des Scherspalts zu nennen (vgl. Abschnitt 5.2.2), da bei hoher Massenbeladung und dicker Folie der Scherwinkel sinkt, obwohl generell dickere Folien zu einer Zunahme des Scherwinkels führen. Die Gesamtdicke könnte zu weiteren Belastungen im Scherspalt führen. Nichtsdestotrotz werden für jede Wechselwirkung von 34 bis zu 36 Beobachtungen gemittelt, was eine ausreichende statistische Grundlage bietet.

Im Weiteren wird der Einfluss der Prozessparameter Verdichtungsrate und Walzentemperatur auf die mechanischen Eigenschaften von Elektroden aufgezeigt. Abbildung 6-17 stellt zunächst die Ergebnisse des Biegeversuchs dar. Erwartungsgemäß ist ein Anstieg des Biegemoduls aufgrund der Reduktion der Elektrodendicke durch die Verdichtung zu verzeichnen. Der Kurvenverlauf ist jedoch polynomiell. Dies lässt sich dadurch erklären, dass bereits die Steigung der Ausgleichsgeraden mit der Verdichtungsrate linear zunimmt. Die Elektrode wird aufgrund der Verdichtung biegesteifer. Von 12 % auf 28 % Verdichtungsrate nimmt die Steigung der Ausgleichsgeraden im Durchschnitt für die Mitte und den Rand um 75,63 % zu und der Biegemodul erhöht sich um 232,68 %. Ein Einfluss der Walzentemperatur konnte nur für die Steigung der Ausgleichsgeraden statistisch belegt werden. Diese nimmt zwischen RT und  $120^\circ\text{C}$  Walzentemperatur um 26,05 % zu. Die Elektroden werden biegesteifer, der Anstieg ist jedoch geringer als für die Verdichtungsrate.

Abbildung 6-17 c) und d) zeigen die Wechselwirkungen zwischen der Verdichtungsrate und der Massenbeladung bzw. Foliendicke.<sup>43</sup> Diese werden im Folgenden durch die Differenz zwischen den Mittelwerten bei hoher und niedriger Verdichtungsrate für eine hohe und niedrige Massenbeladung bzw. Foliendicke ausgedrückt. Am Rand der Elektroden mit hoher Massenbeladung nimmt die Steigung der Ausgleichsgeraden mit zunehmender Verdichtungsrate schneller zu, die Differenz beträgt bei niedriger Verdichtungsrate  $0,94 \text{ N/mm}$  gegenüber  $1,73 \text{ N/mm}$  bei hoher Verdichtungsrate. Für die Elektrodenmitte ist für den Biegemodul das Gegenteil zu beobachten. Während sich die Mittelwerte des Biegemoduls zwischen der niedrigen und hohen Massenbeladung mit einer Differenz von  $-0,02 \text{ MPa}$  bei

---

<sup>43</sup> Die Wechselwirkungen sind auf den Graphen teilweise nur für die Mitte oder den Rand dargestellt. Das liegt, wie eingangs beschrieben, am Signifikanzniveau. Es werden nur signifikante Wechselwirkungen angezeigt.

12% Verdichtungsrate kaum unterscheiden, steigt die Differenz für 28% Verdichtungsrate auf 2,49MPa an. Der Biegemodul der Elektrode mit niedriger Massenbeladung nimmt in der Mitte stärker zu.

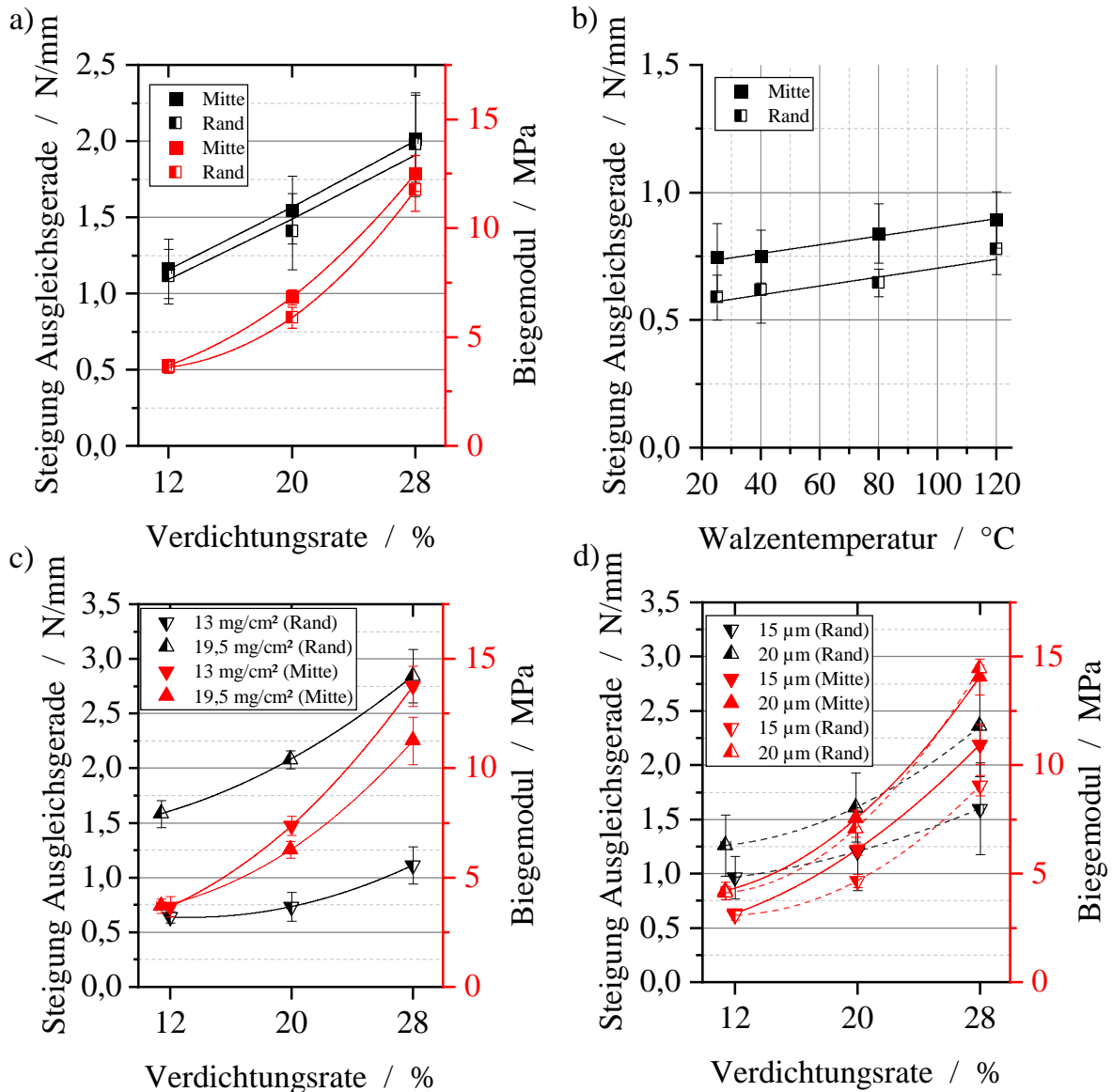


Abbildung 6-17: Mittelwerte mit Standardfehler für die Steigung der Ausgleichsgeraden und den Biegemodul über der a) Verdichtungsrate, b) Walzentemperatur und Wechselwirkungen der Verdichtungsrate und c) Massenbeladung sowie d) Foliendicke

Zuletzt sind in Abbildung 6-17 d) die Wechselwirkungen der Verdichtungsrate mit der Foliendicke im Biegeversuch zu beobachten. I.Allg. zeigt sich, dass eine steigende Verdichtungsrate gepaart mit einer dickeren Substratfolie einen verstärkenden Effekt auf die Biegesteifigkeit hat. Die Differenz der Steigung der Ausgleichsgeraden am Elektrodenrand steigt von 12% auf 28% Verdichtungsrate

von 0,30 N/mm auf 0,76 N/mm an. Gleiches ist für den Biegemodul an beiden Entnahmepositionen zu beobachten. Wenn die Foliendicke von 15  $\mu\text{m}$  auf 20  $\mu\text{m}$  erhöht wird, ist für den Rand eine Zunahme von 1,03 MPa auf 5,40 MPa und für die Mitte von 1,05 MPa auf 3,11 MPa zu verzeichnen.

An den Ergebnissen zum Einfluss der Prozessparameter auf die Biegeeigenschaften ist erneut deutlich zu erkennen, dass die Elektrodenmitte sich biegesteifer verhält. Dies könnte darin begründet sein, dass im Zuge der Verdichtung die Elektrode nicht nur plastisch verformt wird, sondern Eigenspannungen verbleiben. Diese können den Biegeversuch beeinflussen und müssen nicht gleichmäßig verteilt sein, da Elektroden ggf. ein anisotropes Verhalten aufweisen können (HASELRIEDER 2016, S. 88). Beim Trocknen kann sich bspw. örtlich eine unterschiedliche Elektrodenstruktur einstellen, da beschichtete Bereiche, die an nicht beschichtete Bereiche angrenzen, schneller trocknen, weil die Energie direkt zur Erwärmung der Folie führt. Bei der vorliegenden Elektrodengeometrie würde die Elektrodenmitte langsamer trocknen als der Rand.

Im Gegensatz zu kontinuierlichen Materialien wie Metallfolien führt die Reduzierung der Dicke bei Elektroden nicht zu einer Verringerung der Biegesteifigkeit – die Steigung der Ausgleichsgeraden nimmt mit zunehmender Verdichtung sogar zu. Das liegt an der Abnahme der Porosität in der partikulären Beschichtung. Beim Biegen werden Druckspannungen in der Beschichtungsobenseite und Zugspannungen in der -unterseite erzeugt, die von der durch die Substratfolie verlaufende neutrale Faser getrennt sind. Die Partikel drücken aufeinander und reiben aneinander, wenn das Leervolumen in der Beschichtung zurückgeht, wodurch die Druckspannung steigt, und die Biegefestigkeit zunimmt.

Für die Zunahme der Steigung der Ausgleichsgeraden mit steigender Walztemperatur sind zwei Ursachen zu nennen. Einerseits ist davon auszugehen, dass durch die Abnahme der zur Verdichtung erforderlichen Linienlast beim Warmkalandrieren auch die Dehnung der Substratfolie abnimmt, da die Verdichtungsspannungen geringer ausfallen. Damit nimmt die Foliendicke weniger ab, was zu einem steiferen Biegeverhalten führt (vgl. Abbildung 6-15 b). Andererseits bestimmt die Elektrodenstruktur, wie zuvor erläutert, die Biegeeigenschaften. Beim Warmkalandrieren wird, wie in Abschnitt 6.3.3 erläutert, der Binder duktiler, was das Aufbrechen von Molekülketten und eine reduzierte Partikelanbindung aufgrund der Umlagerung mindert. Da die Partikel nicht lose voneinander sind, erhöhen sich dadurch die Zugspannungen und damit verbunden die Biegesteifigkeit.

Die Ausführungen zeigen, dass die Biegeeigenschaften maßgeblich von der eingestellten Porenstruktur und der Foliendicke bestimmt werden. Von den

Wechselwirkungen ist diejenige zwischen der Verdichtungsrate und der Foliendicke deutlicher als diejenige mit der Massenbeladung. Wie eingangs beschrieben, werden die Elektroden mit dicker Substratfolie aufgrund der Berechnung der Verdichtungsrate (vgl. Gleichung 2-5) stärker verdichtet – und zwar umso stärker, je höher die Verdichtungsrate ist. Unter der Annahme, dass die Substratfolie nicht verformt wird, kann an bereinigten Daten dennoch ein verstärkender Effekt beobachtet werden. Dieser kann folgendermaßen erklärt werden: Im Zuge der Verdichtung nimmt die Substratfolie einen größeren Anteil an der Dicke des Komposits ein, da die Dickenabnahme der Beschichtung deutlich größer ist. Dadurch wird das Komposit biegesteifer. Die Wechselwirkung zwischen der Verdichtungsrate und der Massenbeladung ist weniger deutlich. Es wäre zu erwarten, dass die größere Umformung in der Schicht aufgrund höherer Druckspannungen sich stärker in Form von Partikeleindrücken auf die Substratfolie auswirkt und so zu einer Versteifung des Komposits führt. Das suggeriert die Wechselwirkung zwischen der Verdichtungsrate und der Massenbeladung bezogen auf die Steigung der Ausgleichsgeraden am Elektrodenrand. Denn der Zusammenhang ist hoch signifikant ( $p < 0,001$ ). Hinsichtlich des Biegemoduls in der Elektrodenmitte könnten tatsächlich abweichende Beschichtungseigenschaften der Grund sein, warum hier eine geringere Massenbeladung zu einem stärkeren Anstieg des Biegemoduls führt. Bereits in Abbildung 6-15 a) ist zu beobachten, dass der Biegemodul in der Elektrodenmitte für  $13 \text{ mg}_{\text{NMC}}/\text{cm}^2$  höher ist. Außerdem ist der Zusammenhang lediglich signifikant ( $p = 0,015$ ). Aufgrund der widersprüchlichen Ergebnisse ist bei der Interpretation also Vorsicht geboten, auch weil Gleichung 2-5 bei höheren Massenbeladungen zu geringeren Verdichtungen der Beschichtung führt.

Abbildung 6-18 a) zeigt den Einfluss der Verdichtungsrate auf die Schereigenschaften. Die Scherkraft ist nicht abgebildet, da kein signifikanter Einfluss der Verdichtungsrate festgestellt wurde. Es ist die einzige Antwortgröße, bei der dies der Fall ist. Die Mittelwerte der Scherkraft unterscheiden sich bei Änderung der Verdichtungsrate nicht signifikant voneinander. Beim Scherwinkel ist dies der Fall. Die Mittelwerte sinken mit steigender Verdichtungsrate zwischen 12 % und 28 % um 12,32 %. Die Elektrode wird bei einem kürzeren Weg durchstoßen bzw. reißt früher, wenn sie verdichtet ist. Die dafür notwendige Kraft ändert sich nicht wesentlich. Die Scherfestigkeit dagegen steigt mit zunehmender Verdichtung aufgrund der Dickenabnahme der Elektrode zwischen 12 % und 28 % um 22,82 %. Zusammenfassend lässt sich sagen, dass der Verlauf der Mittelwerte für die Antwortgrößen gegenläufig ist.

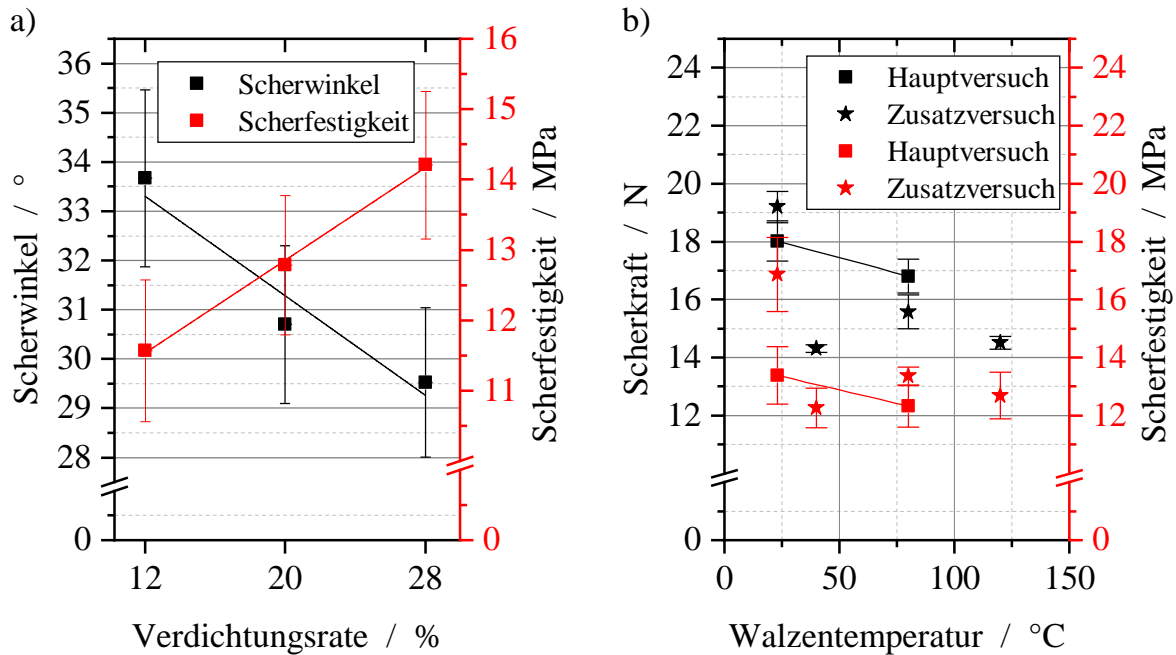


Abbildung 6-18: Mittelwerte und Standardfehler für a) den Scherwinkel und die Scherfestigkeit über der Verdichtungsrate und b) die Scherkraft und -festigkeit über der Walzentemperatur

Schließlich wurde der Einfluss der Walzentemperatur auf die Scherkraft und -festigkeit untersucht. In Abbildung 6-18b) sind jeweils die Mittelwerte des Haupt- und Zusatzversuchs ‚Kathode‘ dargestellt. Im Hauptversuch ist zwischen RT und 80°C eine Abnahme beider Antwortgrößen um 6,72% bzw. 7,89% zu verzeichnen. Der Effekt ist für die Scherkraft ( $p = 0,024$ ) und -festigkeit ( $p = 0,014$ ) signifikant. Der Zusatzversuch zeigt ergänzend die Zusatzpunkte (bei 40°C und 120°C zu sehen). I. Allg. ist auch ein sinkender Verlauf zu beobachten. Beide Antwortgrößen nehmen einen ähnlichen Verlauf an. Bei 40°C Walzentemperatur wurden die geringsten Scherkräfte bzw. -festigkeiten gemessen. Ob es sich hierbei um einen Ausreißer handelt oder sich ein Plateau bildet, kann anhand der vorliegenden experimentellen Daten nicht belegt werden. Diesen Punkt ausgeblendet, deuten die Mittelwerte der Versuche bei RT, 80°C und 120°C auf einen linearen, sinkenden Verlauf hin.

Zuletzt werden die Ergebnisse zum Einfluss der Prozessparameter Verdichtungsrate und Walzentemperatur auf die Schereigenschaften diskutiert. Zunächst fällt auf, dass es keine Wechselwirkungen zwischen den Prozessparametern und den Produkteigenschaften gibt. Das liegt vermutlich daran, dass das Kalandrieren als Prozess stärker die Eigenschaften der Beschichtung als die der Folie verändert, die Schereigenschaften aber eher von den Folieneigenschaften beeinflusst werden. Die Abnahme des Scherwinkels im Zuge des Kalandrierens erinnert an den Rückgang der

Dehnung, den HASELRIEDER (2016, S. 164 ff.) in Zugversuchen an Anoden beobachtet. Wie in Abschnitt 3.2.1 beschrieben, wird beim Kalandrieren der plastische Anteil der Verformung in der Beschichtung reduziert. Die Beschichtung ist „weniger verformbar bzw. steifer“. Es kommt nach Überschreiten der Elastizitätsgrenze zum Bruch. Das von der Folie ausgehende Reservoir an plastischer Verformung scheint eine untergeordnete Rolle zu spielen bzw. ist bei hohen Verdichtungsraten durch Längs- und Querdehnung sogar ausgeschöpft. Die Zunahme der Scherfestigkeit, die übertragen auf den Zugversuch von ZHENG ET AL. (2012A, S. 54 f.) auch beobachtet wurde, wird in dieser Arbeit über die Abnahme der Scherfläche begründet. Ob dies dort auch der Fall ist, lassen die publizierten Daten nicht erkennen. Bei HASELRIEDER ist an Anoden mit zunehmender Verdichtungsrate eine Abnahme der Zugfestigkeit trotz Abnahme des Probenquerschnitts zu verzeichnen. I.Allg. ist ein stärkerer Kraftanstieg zu beobachten, der mit der zunehmenden Härte der Beschichtung zu erklären ist. Aufgrund der Versprödung kommt es aber bei geringeren Scherkräften zum Elektrodenriss.

Auffällig ist die Abnahme der Scherkraft und -festigkeit beim Warmkalandrieren. Die verbesserte Kohäsion und die geringere Dehnung der Trägerfolie würden eher für erhöhte Scherkräfte sprechen. Nachteile des Warmkalandrierens im Hinblick auf eine nicht auftretende Kaltverfestigung wären nur für den Binder zu erwarten, da die anderen Materialien weit unterhalb ihrer Rekristallisationstemperatur verarbeitet werden und nicht betroffen sein sollten.

### 6.4 Qualitative Validierung der Versuchsergebnisse

Zur qualitativen Validierung der Ergebnisse zur **Elektrodenwelligkeit** aus Abschnitt 6.3.2 und zur **Haftfestigkeit** aus Abschnitt 6.3.4 an Kathoden wurden Folgeversuche durchgeführt.

Wie in Abschnitt 6.3.2 beschrieben, konnte der Einfluss der Walzentemperatur auf die Elektrodenwelligkeit nicht statistisch belegt werden. Vermutlich war die Streuung im Vergleich zum Effekt zu hoch. Nichtsdestotrotz war mit steigender Walzentemperatur ein sinkender Verlauf der Mittelwerte für die Wellenlänge und -höhe zu beobachten (vgl. Abbildung 6-9b). Zudem ist bekannt, dass mit steigender Temperatur die erforderliche Linienlast sinkt (vgl. Abschnitt 3.3) und damit die Druckspannungen, was theoretisch zu einer geringeren Dehnung der Substratfolie führen müsste. Daher wurde ein Versuch durchgeführt, der den Einfluss der Walzentemperatur fokussiert.

Tabelle 6-6: Eingesetzte Kathodenmaterialien

Produkt	Hersteller	Massenanteil
<b>Aktivmaterial</b> NMC-622	BASF SE	95,5
<b>Binder</b> PVDF (Solef <sup>®</sup> 5130)	SOLVAY SA	1,5
<b>Leitruß</b> Super C65	TIMCAL LTD.	2,25
<b>Leitgrafit</b> SFG6L	TIMCAL LTD.	0,75
<b>Substratfolie</b> Aluminiumfolie (20 µm)	KORFF AG	–

Für die Versuche wurden Elektroden, die an der Forschungsproduktionslinie (FPL) am Zentrum für Sonnenenergie- und Wasserstoff-Forschung (ZSW) in Ulm beschichtet wurden, eingesetzt. Mit 285 mm Beschichtungsbreite und 325 mm Folienbreite waren die Elektroden größer dimensioniert als die am *iwb*. Die Massenbeladung betrug ca. 14 mg/cm<sup>2</sup>. Als Aktivmaterial wurde NMC-622 eingesetzt. Die Elektrodenformulierung ist in Tabelle 6-6 angegeben.

Diese Änderung ermöglicht nicht nur die Validierung des neuartigen Messverfahrens an einem weiteren Elektrodendesign, sondern auch einen Blick auf den Einfluss der Dimensionierung der Elektrode auf die Ausprägung der Elektrodenwelligkeit. Denn wie in Abschnitt 4.2.1 beschrieben, könnte die Dimensionierung der Elektrode einen Einfluss auf die Ausprägung der Elektrodenwelligkeit haben. Damit würde der Effekt verglichen zur Streuung größer ausfallen. Außerdem wurde die Verdichtungsrate, deren Einfluss nachgewiesen wurde, konstant auf 20 % gehalten, um den Einfluss der Temperatur nicht zu überdecken. Für die Walzentemperatur wurden weiterhin die Faktorstufen RT und 80 °C gewählt und das Experiment jeweils drei Mal wiederholt. Zusammengefasst handelt es sich um einen Versuch mit der Walzentemperatur als einzigen Faktor, um den großen Einfluss von Massenbeladung und Verdichtungsrate auszuschließen. Die Messaufnahmen wurden nach dem in Abschnitt 5.3.3 beschriebenen Vorgehen ausgewertet. Das Messsignal wurde z. T. extrapoliert, da aufgrund der größeren Wellenhöhe der Messbereich vereinzelt überschritten wurde. Die Wellen am Beschichtungsrand wurden mit einer Grenzwellenlänge von 15 mm gefiltert und haben keine Extrapolation benötigt.

Abbildung 6-19 gibt den Einfluss der Walzentemperatur auf die Wellenlänge und -höhe der Elektrodenwelligkeit sowie Wellen am Beschichtungsrand wieder. Beide Antwortgrößen sind deutlich ausgeprägter als in Abschnitt 6.3.2 beschrieben. Mit  $\lambda = [117,29 \text{ mm}, 149,48 \text{ mm}]$  und  $f = [6,50 \text{ mm}, 8,90 \text{ mm}]$  entsprechen die



gemessenen Wertebereiche der Elektrodenwelligkeit ca. drei- bis viermal die des Hauptversuchs. Bei einer Erhöhung der Walzentemperatur von RT auf 80 °C nimmt die Wellenlänge um ca. 10% und die -höhe um ca. 18% ab. Die Abnahme der Wellenhöhe ist deutlicher und geht über die Streuung hinaus. Allgemein ist zu beobachten, dass die Streuung bei temperierten Walzen deutlich höher ausfällt. Grund hierfür könnte eine ungleichmäßige Temperierung sowie die Materialanisotropie sein. Die ausgeprägtere Streuung könnte auch erklären, warum der Faktor Walzentemperatur im Hauptversuch nicht statistisch signifikant war (vgl. Abschnitt 6.3.2). Bei den Wellen am Beschichtungsrand ist ebenfalls eine Abnahme zu beobachten, wenn die Walzentemperatur erhöht wird, und zwar um 7% für die Wellenlänge und 26% für die -höhe. Die Änderungen übertreffen aber nicht die Standardabweichung, weshalb der Einfluss nicht eindeutig ist. Ohnehin sind die Ergebnisse abhängig von der Filterung, wie in Abschnitt 6.3.2 diskutiert.

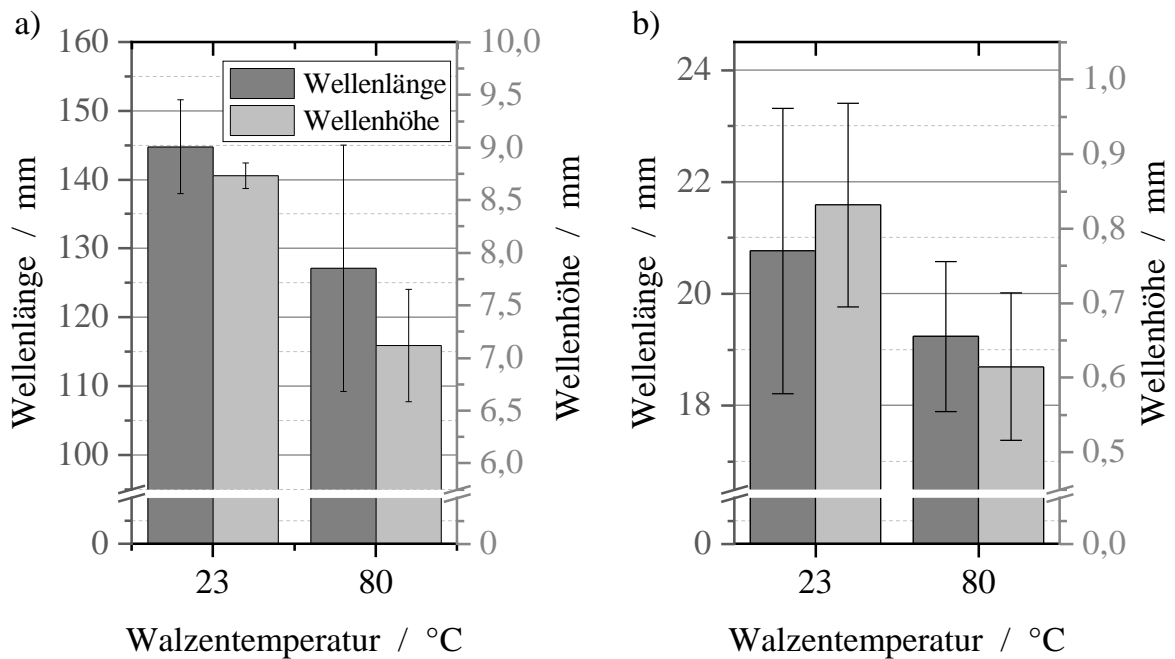


Abbildung 6-19: Mittelwerte und Standardabweichung für die Wellenlänge und -höhe a) der Elektrodenwelligkeit und b) der Wellen am Beschichtungsrand in Abhängigkeit von der Walzentemperatur

Zusammengefasst kann der Einfluss der Walzentemperatur auf die Elektrodenwelligkeit in diesem Versuch bestätigt werden. Die Abnahme der Wellenhöhe ist größer als die Streuung und somit signifikant. Zudem wurde die Annahme bestätigt, dass die Abweichungen von der Ebenheit an breiteren Beschichtungen deutlich ausgeprägter sind.

Im Folgenden werden Versuche zur qualitativen Validierung der Versuchsergebnisse zur Haftfestigkeit von Kathoden (vgl. Abschnitt 6.3.3) vorgestellt. Da im Stand der Technik und Forschung keine Ergebnisse zur Haftfestigkeit von doppelseitig beschichteten Kathoden präsentiert werden, was Industriestandard ist, sollte dies in dieser Arbeit untersucht werden. Leider konnten keine wesentlichen Unterschiede in der Haftfestigkeit festgestellt werden. Daher wurden zum Vergleich mit der Literatur zunächst Versuchsergebnisse mit einseitig beschichteten Kathoden präsentiert. Um zu überprüfen, ob die Ergebnisse übertragbar sind, werden nun Ergebnisse von Zusatzversuchen an doppelseitig beschichteten Elektroden vorgestellt. Diese wurden in SCHREINER ET AL. (2019, S. 4 f.) publiziert. Darüber hinaus sollen die Erkenntnisse zum Einfluss des Walzendurchmessers an einer weiteren Elektrodenformulierung validiert werden.

Die Versuche wurden im Rahmen des Forschungsclusters *ProZell* durchgeführt. Dabei kamen zusätzlich zum Kalender EA102 (vgl. Anhang A11) die Kalender des Battery LabFactory Braunschweig (BLB) an der Technischen Universität Braunschweig und der FPL (KEPPELER ET AL. 2020, S. 12) zum Einsatz. Dabei handelt es sich jeweils um Technikums- bzw. Pilotkalender. In dem BLB wird ein Glättkalender des Typs GKL 400 (SAUERESSIG GMBH & CO. KG) eingesetzt (vgl. Abschnitt 3.2.1). Der Kalender der FPL (BREYER GMBH MASCHINENFABRIK) besitzt mit jeweils 600 mm Walzendurchmesser und Ballenbreite größere Walzen. Da die Kalenderwalzen maximal bis 100 °C bzw. 155 °C temperiert werden können, wurden die Elektroden temperiert bei 40 °C und 90 °C Walzentemperatur kalandriert. Am *iwb* wurden zusätzlich die Walzentemperaturen 120 °C und 150 °C untersucht. An der FPL wurden, anders als am *iwb* und dem BLB, keine Elektroden bei RT kalandriert. Für alle Versuche betrug die Bahngeschwindigkeit 1 m/min. Die Porosität der unkalandrierten Kathoden betrug 47 %. Diese wurden davon ausgehend auf 40 % und dann in 5 %-Schritten auf maximal 20 % Porosität je nach Temperatur und erforderlicher Linienlast verdichtet. Es handelte sich um die gleiche Elektrodenformulierung wie bei den Validierungsversuchen zur Elektrodenwelligkeit (vgl. Tabelle 6-6). Die Haftfestigkeit wurde am *iwb* gemessen (vgl. Abschnitt 5.2). Der Versuch wurde nicht nach der SVM geplant und wird im Folgenden nicht statistisch, sondern lediglich grafisch ausgewertet.

Abbildung 6-20 gibt die Ergebnisse wieder. Angegeben ist der Mittelwert und die Standardabweichung der Haftfestigkeit in Abhängigkeit von der Porosität für unterschiedliche Walzendurchmesser und -temperaturen. Ausgehend von der unkalandrierten Elektrode folgt die Haftfestigkeit einer parabelförmigen Kurve. Der Kurvenverlauf stimmt mit den Beobachtungen aus Abschnitt 6.3.3 und der Literatur

überein. Die Haftfestigkeit beträgt 1510 kPa unkalandriert, fällt dann auf etwa 1000 kPa für verschiedene Parameterkombinationen, bevor sie wieder auf maximal 1914,24 kPa für eine Temperatur von 90 °C und einen Walzendurchmesser von 600 mm ansteigt. Bei RT und 40 °C liegt das Minimum der Haftfestigkeit bei 35 %, was ca. 16% Verdichtungsrate entspricht. Wird die Walzentemperatur auf 90 °C angehoben, verschiebt sich dieser charakteristische Punkt der Kurve auf 40% Porosität und der Wiederanstieg der Haftfestigkeit beginnt nach Erreichen des Minimums früher. Die Haftfestigkeit nimmt zwischen RT und 90 °C Walzentemperatur kontinuierlich zu. Das zeigen die Kurvenverläufe der am *iwb* und BLB kalandrierten Elektroden. Die Zusatzversuche mit 120 °C und 150 °C zeigen auf, dass die Haftfestigkeit über 90 °C Walzentemperatur hinaus nicht weiter verbessert werden kann. Die Haftfestigkeit folgt für 90 °C und 150 °C Walzentemperatur der gleichen Kurve.

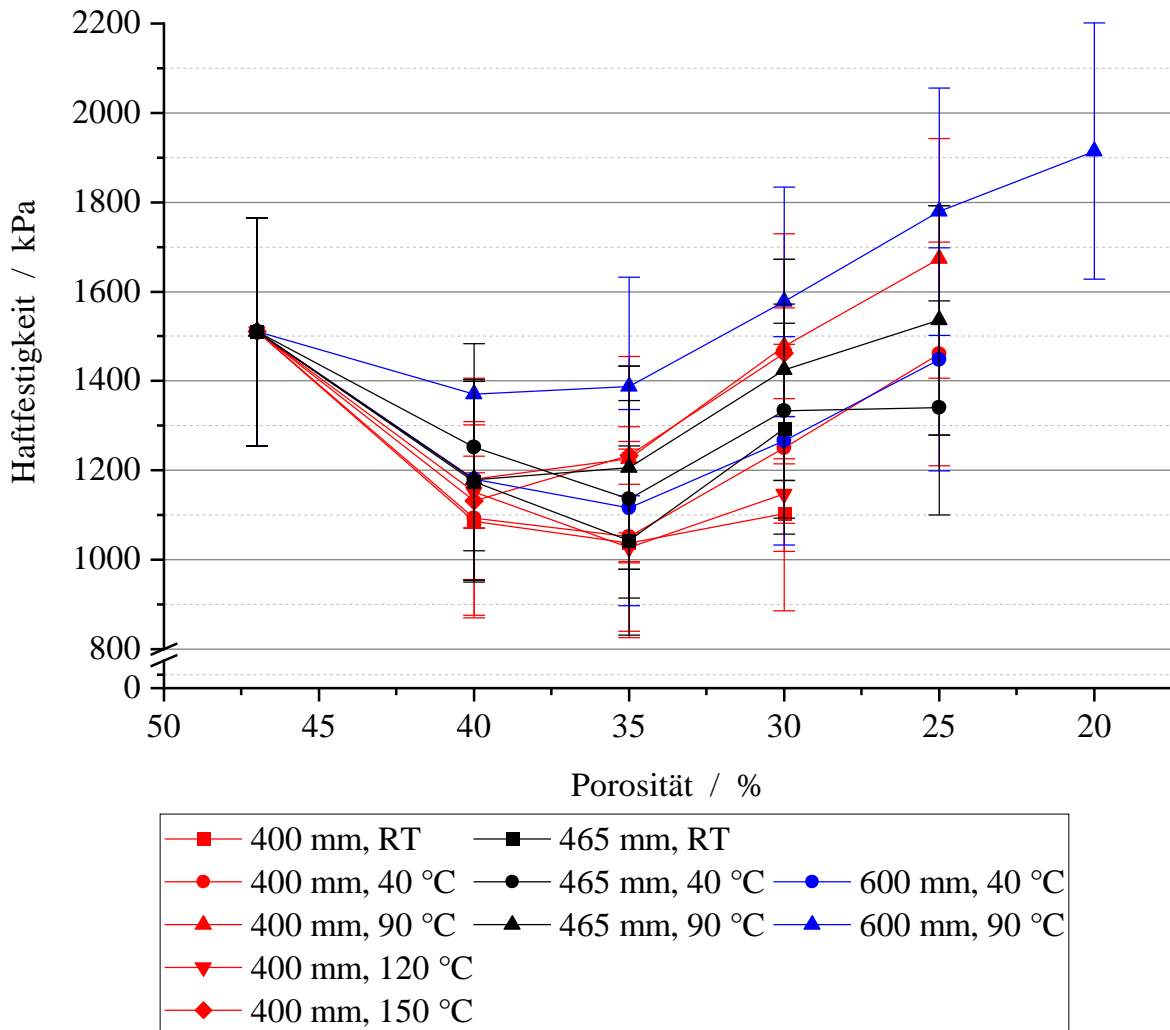


Abbildung 6-20: Mittelwerte und Standardabweichung der Haftfestigkeit in Abhängigkeit von der Porosität für unterschiedliche Walzendurchmesser und -temperaturen

Die Ergebnisse sind im Einklang mit den Beobachtungen an einseitig beschichteten Elektroden aus Abschnitt 6.3.3. Die Haftfestigkeit fällt bei 120 °C sogar unter das Niveau von allen anderen temperierten Versuchen und folgt ca. dem Verlauf der Kurve bei RT. Dies ist bemerkenswert, da auch in Abbildung 6-13 b) ein Abfall der Haftfestigkeit bei 120 °C Walzentemperatur zu verzeichnen war. Die Kurvenverläufe der Elektroden, die mit 90 °C Walzentemperatur kalandriert wurden, deuten auf ein Maximum der Verbesserung der Haftfestigkeit hin, da die Steigung hin zu niedriger Porosität wieder abnimmt. Zusammenfassend wird bei 40 °C Walzentemperatur noch nicht das volle Verbesserungspotenzial des Warmkalandrierens erschlossen, da die Haftfestigkeit nur mäßig ansteigt und dies erst ab 35 % Porosität. Bei der untersuchten Bahngeschwindigkeit ist eine Erhöhung über 90 °C hinaus nicht sinnvoll, da die Haftfestigkeit nicht weiter gesteigert werden kann.

Zuletzt bestätigen die Ergebnisse, dass größere Walzendurchmesser hinsichtlich einer Maximierung der Haftfestigkeit vorteilhaft sind. Vereinzelt ist jedoch die Haftfestigkeit bei kleineren Walzendurchmessern höher. Das ist z.B. an den Elektroden zu beobachten, die bei 40 °C Walzentemperatur am BLB und an der FPL kalandriert wurden. Teilweise ist die Haftfestigkeit der Elektroden, die mit dem Kalandrierer des BLB verdichtet wurden, höher. Für den Vergleich muss aber vorausgesetzt sein, dass u.a. die gemessene Temperatur der tatsächlichen Walzentemperatur entsprach und die Walzenoberfläche vergleichbar war.

Zusammenfassend wurden die höchsten Haftfestigkeiten bei 90 °C Walzentemperatur und 600 mm Walzendurchmesser am Kalandrierer der FPL erzielt. Die Zusammenhänge, die an einseitig beschichteten Elektroden beobachtet wurden, sind auch für doppelseitige Beschichtungen gültig. Neben dem Walzendurchmesser, der nicht ohne Weiteres angepasst werden kann, ist es möglich, mit der Walzentemperatur und der Verdichtungsrate Einfluss auf die Haftfestigkeit zu nehmen.

## 6.5 Modellgestützte Zusammenfassung der Versuchsergebnisse und Anwendung

Im Folgenden werden die Versuchsergebnisse zusammengefasst und als grafisches Modell dargestellt. An die Zusammenfassung des Kapitels schließt sich nach dem Prinzip *vom Deskriptiven ins Präskriptive* eine Handlungsanweisung zur Anwendung des gewonnenen Wissens an.

Die Zusammenfassung der Ergebnisse stützt sich auf die in Abschnitt 6.1 vorgeschlagene Modellierungsbasis. Die untersuchten **Produkteigenschaften**, **Prozessparameter** und **Anlagenmerkmale** werden genannt und deren Einfluss beschrieben. Tabelle 6-7 fasst die untersuchten Einflussgrößen zusammen.

Tabelle 6-7: Übersicht der untersuchten Einflussgrößen der Modelldomänen

Abschnitt	Domänen		
	Produkteigenschaften	Prozessparameter	Anlagenmerkmale
6.3.1 (Anoden)	Schichtdicke	Porosität Walzentemperatur Bahngeschwindigkeit	Walzendurchmesser Tandem-Kalander
6.3.2, 6.3.3 & 6.3.4 (Kathoden)	Massenbeladung Foliendicke Folienhärte <sup>44</sup>	Verdichtungsrate Walzentemperatur	Walzendurchmesser

Abschnitt 6.3.1 befasst sich mit den Ergebnissen der Untersuchungen zu Struktureigenschaften von **Anoden**. Die Haftfestigkeit wurde untersucht, um das Fehlerbild **Schichtablösung** zu verhindern. Auf Seiten der Produkteigenschaften wurde beobachtet, dass eine Erhöhung der Schichtdicke die Haftfestigkeit absenkt. An der Grenzfläche wirkt eine höhere mechanische Belastung, was zu Schichtablösungen führen kann. Die verminderte Haftfestigkeit ist bereits vor dem Kalandrieren zu beobachten. Neben den Produkteigenschaften wurden Prozessparameter untersucht, wobei festgestellt wurde, dass die Porosität der Elektrode und die Walzentemperatur die Haftfestigkeit beeinflussen. Diese wird bei moderaten Verdichtungsraten zunächst abgesenkt, erreicht bei ca. 35–40 % ein

<sup>44</sup> Ausschließlich in Abschnitt 6.3.3 Struktureigenschaften von Kathoden.

Minimum und steigt darüber hinaus wieder an. Wurden die Walzen temperiert, kam es zur Wechselwirkung mit der Verdichtungsrate und die Haftfestigkeit konnte deutlich gesteigert werden. Ein Einfluss der Bahngeschwindigkeit konnte hingegen nicht festgestellt werden. Um Anlagenmerkmale zu variieren, kamen Kalandrierer mit unterschiedlichen Walzendurchmessern zum Einsatz. Außerdem wurde das sog. Tandem-Kalandrieren mit zwei Walzstufen simuliert, indem in zwei Schritten kalandriert wurde. Lediglich der Faktor Walzendurchmesser ist signifikant. Die Haftfestigkeit von Elektroden, die in Kalandern mit größeren Walzen verdichtet wurden, ist höher.

In Abschnitt 6.3.3 wurde zudem die Haftfestigkeit von **Kathoden** beschrieben. Mit dem eingesetzten Substrat, eine walzweiche Aluminiumfolie, konnte kein Einfluss der Massenbeladung festgestellt werden. Mit REM-Aufnahmen wurde gezeigt, dass es zur mechanischen Verklammerung der Partikel kommt, was die Grenzfläche stärkt und dem Auftreten von **Schichtablösungen** entgegenwirkt. Die Verbesserung der Haftfestigkeit durch Partikeleindrücke in der Substratfolie kompensiert die bei höheren Massenbeladungen zunehmenden mechanischen Belastungen an der Grenzfläche. Hinsichtlich der Prozessparameter bestätigte sich der Einfluss der Verdichtungsrate auf die Haftfestigkeit. Diese folgt einer parabelförmigen Kurve mit zunächst abnehmendem Verlauf. Nach Erreichen des Minimums steigt die Haftfestigkeit wieder an, teils über das Niveau der unkalandrierten Elektroden. Die Temperierung der Walzen wirkt sich positiv aus. Mit der Verdichtungsrate besteht eine Wechselwirkung, was bei niedrigerer Porosität und erhöhter Walzentemperatur zu höheren Haftfestigkeiten als bei RT führt. Ab ca. 90–100 °C Walzentemperatur stellt sich ein Plateau ein und die Einflussstärke nimmt ab. Es wurde außerdem gezeigt, dass die Lage des Minimums der Haftfestigkeit und damit die höchste Anfälligkeit für Schichtablösungen nicht generell bei einer Porosität von 35 % angegeben werden kann, da sich die Lage mit Variation von Produkteigenschaften (bspw. Binderanteil) oder Prozessparametern (bspw. Walzentemperatur) verschiebt. Es empfiehlt sich daher die Kurve zur Qualifizierung einer gegebenen Elektrodenformulierung aufzunehmen. Ferner können die Einflussgrößen als Faktoren einer mathematischen Funktion aufgenommen werden, die sich parametrieren lässt. Als Anlagenmerkmal wurde der Walzendurchmesser untersucht. Auch bei der Kathode sind für größere Walzendurchmesser höhere Haftfestigkeiten zu beobachten. Dies ist nicht unerheblich, da der Walzendurchmesser die Anlagengröße und -kosten maßgeblich beeinflusst und nicht ohne Weiteres angepasst werden kann (PIETSCH 1987, S. 11).

An Kathoden wurden zusätzlich geometrische und mechanische Eigenschaften untersucht. Zur Beschreibung der geometrischen Fehlerbilder **Elektrodenwelligkeit** und **Wellen am Beschichtungsrand** wurden die Wellenlänge und -höhe gemessen. Die Regressionsmodelle für die Wellen am Beschichtungsrand sind unzureichend, was mit der Auswertung der Messungen in Verbindung gebracht wurde und in Abschnitt 7.1 diskutiert wird. Für die Elektrodenwelligkeit können hingegen Abhängigkeiten festgestellt werden. Von den untersuchten Produkteigenschaften konnte ein deutlicher Einfluss der Massenbeladung festgestellt werden. Die Foliendicke hingegen ist nicht signifikant, was bemerkenswert ist, da von einer Erhöhung der Foliendicke erwartet wurde, dass sie die Elektrodenwelligkeit reduziert. Dieser Effekt könnte vom geringen Härtegrad der Folie überlagert worden sein. Hier empfiehlt sich eine fokussierte Studie mit unterschiedlichen Folieneigenschaften (v. a. Dehngrenze) durchzuführen. Bei den Prozessparametern konnte eine deutliche Zunahme der Welligkeit mit steigender Verdichtungsrate und eine leichte Abnahme mit temperierten Walzen festgestellt werden. Der Einfluss der Walzentemperatur konnte nicht statistisch belegt werden, ließ sich aber, wie in Abschnitt 6.4 gezeigt, in einem weiteren Versuch validieren.

Zur Beschreibung der mechanischen Fehlerbilder **Elektrodenversprödung** und **Folienriss** wurden die Biege- und Schereigenschaften untersucht. Elektroden verhalten sich biegesteifer, wenn die Massenbeladung steigt. Der Einsatz dickerer Substratfolien macht die Elektrode ebenso biegesteifer. Obwohl die Substratfolie deutlich dünner ist, scheint ihr Einfluss verhältnismäßig groß zu sein. Im Scherversuch rissen Elektroden mit dickerer Substratfolie hingegen später, d. h. bei einem größeren Weg. Das ist vorteilhaft, da diese weniger anfällig auf Folienrisse sind. Es wurde auch beobachtet, dass mehr Kraft benötigt wurde, um die Elektrode zu durchstechen. Elektroden mit dickerer Substratfolie verhalten sich also weniger spröde als die mit dünneren. Durch das Kalandrieren werden die Elektroden i. Allg. biegesteifer. Mit steigender Verdichtungsrate nimmt die Biegesteifigkeit deutlich zu. Für eine Elektrodenversprödung spricht zusätzlich, dass der Scherwinkel mit steigender Verdichtungsrate sinkt. Die Elektroden lassen sich weniger dehnen und es kommt früher zum Folienriss. Bedingt durch die Dickenabnahme infolge des Kalandrierens nimmt die Scherfestigkeit zu. Eine Erhöhung der Walzentemperatur führt zu einer Zunahme der Biegesteifigkeit, die aber mit einer Erhöhung der Scherfestigkeit einhergeht. Der Einfluss der Walzentemperatur ist geringer als der der Verdichtungsrate. Die mechanischen Eigenschaften werden stark von den Eigenspannungen in der Elektrode bestimmt. Bei einer vorgegebenen Verdichtungsrate sollte daher die Temperatur genauer untersucht werden, um die

Elektrodeneigenschaften gezielt einzustellen. Dabei sollte eine Temperierung vor Eintreten und nach Verlassen des Walzspaltes untersucht werden, da die Eigenspannungen in der Elektrode beeinflusst werden könnten.

Abbildung 6-21 fasst die Versuchsergebnisse als grafisches Modell zusammen. Dabei wird der Einfluss bei Erhöhung einer Stellgröße aus den unterschiedlichen Domänen auf die Prüfmerkmale der Fehlerbilder gezeigt. Die Prüfmerkmale wurden z.T. aggregiert, um die Komplexität zu reduzieren und die Übersichtlichkeit zu erhöhen. Die Wellenlänge und -höhe sind als Welligkeit zusammengeführt. Die Scherkraft, die Scherfestigkeit und der Scherwinkel sind als Schereigenschaften und der Biegemodul sowie die Steigung der Ausgleichsgeraden als Biegeeigenschaften zusammengefasst. Die Pfeildicke gibt qualitativ die Einflussstärke wieder. Dabei kann es sich um einen positiven oder negativen Einfluss handeln, d.h. die Fehlerentstehung wird verhindert oder gefördert. Zur Vereinfachung sind nur die wesentlichen Wechselwirkungen dargestellt und es erfolgt keine Unterscheidung zwischen Elektrodenrand und -mitte. Die Abbildung hebt die zentrale Rolle der Massenbeladung und der Verdichtungsrate hervor. Das ist bemerkenswert, da diese Einflussgrößen die maßgeblichen Merkmale des Elektrodendesigns sind. Über die Massenbeladung wird primär die Kapazität und über die Verdichtungsrate wird die volumetrische Energiedichte der Zelle eingestellt. Zudem zeigt die Abbildung, dass Stellgrößen einen gegenläufigen Einfluss haben können. So ist bspw. der Einsatz harter Folien einerseits vorteilhaft, um die Dehnung und damit die Elektrodenwelligkeit zu reduzieren. Andererseits wurde in dieser Arbeit gezeigt, dass weiche Folien die Haftfestigkeit erheblich steigern können. Der Anwender muss also einen Kompromiss zwischen den Stellgrößen eingehen, um ein globales Optimum zu finden. Hier sei erneut auf die Relevanz der Domänen und deren Bedeutung bei der Prozessoptimierung hingewiesen. Die Anlagenmerkmale sind weitestgehend fixiert und können nicht ohne Aufwand angepasst werden. Die Produkteigenschaften werden üblicherweise von der Entwicklung vorgegeben und können nur in Abstimmung in geringem Maße angepasst werden. Die Prozessparameter können eingestellt werden, solange die Zellperformance und Ausbeute nicht beeinträchtigt werden. Die Modelldomänen sind also nicht nur zur Strukturierung der Einflussgrößen in Klassen, sondern auch als Leitfaden zur Prozessoptimierung gedacht, welcher eine Reihenfolge nach dem Grad der Anpassbarkeit (ökonomisch, zeitlich, organisatorisch, usw.) darstellt.



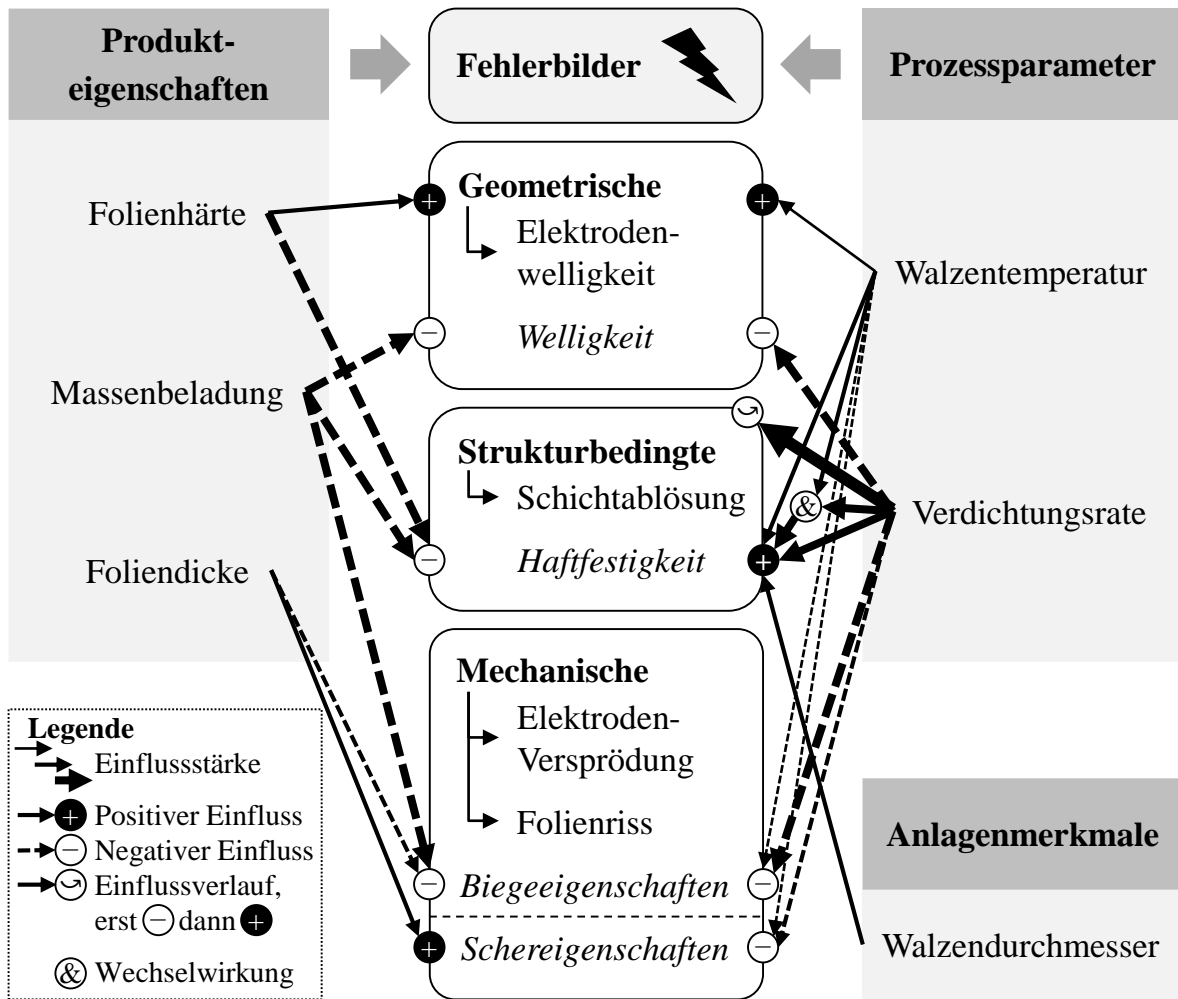


Abbildung 6-21: Grafische Zusammenfassung

Zur Unterstützung des Produktionsanlaufs bzw. bei der Befähigung einer neuen Elektrodenformulierung wird in Anlehnung an RÖTHEMEYER & SOMMER (2013, S. 651 ff.) in Tabelle 6-8 die Betriebspraxis vorgeschlagen und am Bsp. von in den experimentellen Untersuchungen dieser Arbeit gewonnenen Erkenntnissen exemplarisch befüllt. Die Betriebspraxis stellt den Übergang von der angewandten Produktionsforschung in die industrielle Anwendung dar. Sie beinhaltet „Praxisprobleme des Kalandrierens und Ansätze zu deren Lösung“ (RÖTHEMEYER & SOMMER 2013, S. 651). Die Tabelle liest sich von links nach rechts und ist hierarchisch gegliedert. Einem Fehlerbild werden verschiedene Ursachen zugeordnet, die dann wiederum mit verschiedenen Maßnahmen behandelt werden können. Sie ist eine Methode der Fehlerbehebung (engl. *troubleshooting*).

*Tabelle 6-8: Betriebspraxis Kalandrieren von Lithium-Ionen-Elektroden in Anlehnung an RÖTHEMEYER & SOMMER (2013, S. 651 ff.)*

<b>Fehlerbild</b>	<b>Mögliche Ursachen</b>	<b>Maßnahmen</b>
1 Elektrodenwelligkeit	1.1 Unterschiedliche Längung von Beschichtung und Substratfolie	1.1.1 Massenbeladung senken 1.1.2 Substratfolie mit höherer Dehngrenze einsetzen 1.1.3 Verdichtungsrate senken 1.1.4 Walzentemperatur erhöhen
2 Schichtablösung	2.1 Adhäsionsbruch (Versagen an der Grenzfläche zur Substratfolie)	2.1.1 Massenbeladung senken 2.1.2 Weichere Substratfolie einsetzen 2.1.3 Verdichtungsrate erhöhen (Bedingung: Kurvenverlauf berücksichtigen) 2.1.4 Größere Walzendurchmesser einsetzen
	2.2 Kohäsionsbruch (Versagen in der Beschichtung)	2.2.1 Binderanteil erhöhen 2.2.2 Walzentemperatur erhöhen
3 Folienriss	3.1 Elektrodenversprödung	3.1.1 Siehe 4
	3.2 Beschädigung der Substratfolie durch Partikeleindrücke	3.2.1 Substratfolie mit höherer Dehngrenze einsetzen 3.2.2 Dickere Substratfolie einsetzen 3.2.3 Verdichtungsrate senken 3.2.4 Walzentemperatur anpassen
4 Elektrodenversprödung	4.1 Zu hohe Linienlast zur Erreichung hoher Dichten	4.1.1 Massenbeladung senken 4.1.2 Verdichtungsrate senken 4.1.3 Walzentemperatur anpassen

## 7 Technische und wirtschaftliche Bewertung

Im Folgenden werden nur die in Kapitel 5 vorgestellten und in Kapitel 6 diskutierten Messverfahren einer technischen und wirtschaftlichen Bewertung unterzogen. Grund hierfür ist, dass der Nutzen der in Abschnitt 4.1.2 beschriebenen Methode zur Sammlung der Fehlerbilder bedingt quantifizierbar ist. Diese muss bei einem Zellhersteller für großformatige LIB angewandt werden, die sich erst zum Zeitpunkt der Fertigstellung dieser Arbeit in Deutschland und Europa ansiedeln. Auch das im Rahmen der Experimente gewonnene und in Kapitel 6 präsentierte Wissen zur Beeinflussung der Fehlerbilder durch das Kalandrieren ist nicht direkt quantifizierbar, da ein Fehlerbild nicht zwangsläufig zu Ausschuss führt (vgl. Abschnitt 4.1.1). Erst dann ließen sich die Kosten einer Fehlproduktion abschätzen. Insgesamt sind die Themen mit viel Unschärfe verbunden, was eine technische und ökonomische Betrachtung erschwert. Im Gegensatz dazu bieten sich die entwickelten Messverfahren zur Bewertung an, da es sich um technische Produkte handelt.

### 7.1 Technische Bewertung

Zunächst wird das Ergebnis der anforderungsbezogenen Bewertung dargestellt. Diese wurde in Anlehnung an das Vorgehen der Prüfplanung durchgeführt. Anschließend werden Nutzen und Einschränkungen der Verfahren kritisch diskutiert.

#### 7.1.1 Anforderungsbezogene Bewertung

Für die Messverfahren wurden in Abschnitt 5.1 allgemeine Anforderungen gestellt und Verfahren aus dem Stand der Technik und Forschung entsprechend diskutiert und ausgewählt oder gar neu entwickelt. Die Anforderungen werden nun zur Bewertung der Messverfahren hinsichtlich ihres Erfüllungsgrades herangezogen. Das Ergebnis ist in Tabelle 7-1 dargestellt und wird im Folgenden erläutert.

Die wichtigste Anforderung richtet sich an die Prüfmerkmale selbst – die Messverfahren sollen eine repräsentative **Beschreibung der Fehlerbilder** ermöglichen. Hier wird zwischen dem Ausmaß, wenn das Fehlerbild bereits vorliegt, und der gezielten Beanspruchung nach dem Belastungsfall unterschieden. Das gewählte Vorgehen ermöglicht eine Zuordnung zu den Fehlerbildern und den entsprechenden Prüfmerkmalen. Die Elektrodenwelligkeit wird bspw. über die Wellenlänge und -höhe in ihrem Ausmaß beschrieben. Für die Schichtablösung wird z. B. die Haftfestigkeit entsprechend einer Normalbeanspruchung herangezogen. Es darf **keine Eigenschaftsveränderung durch die Probenpräparation** vorliegen.

Dies ist meist der Fall, muss aber für die mechanischen Fehlerbilder geprüft werden. Der Probenzuschnitt könnte eine Spannungsrelaxation verursachen, die das Ergebnis beeinflussen kann. Alle **Prüfmerkmale sind quantitativ** und die Messungen liefern als Prüfergebnis einen **Zahlenwert zur statistischen Auswertung**. Die Anforderungen sind vollständig erfüllt und liefern die Basis für die SVM bzw. Prozessregelung. Für die Probengeometrie wurde ein Kompromiss eingegangen: Einerseits sollen die Proben möglichst groß sein, um das Elektrodenverhalten abzubilden. Andererseits dürfen diese nicht zu groß sein, um **flexibel hinsichtlich der Elektrodengeometrie** zu sein. Rundzellen können bspw. schmale Beschichtungstreifen besitzen. Die kompakten Abmessungen (max. 30 x 25 mm) erfüllen die Anforderung einer **orts aufgelösten Probenentnahme**, um bspw. die Materialanisotropie zu untersuchen.

Zum Prüfumfang bzw. -ort ist eine Anforderung die **Inline-Fähigkeit des Messverfahrens**. Dies konnte lediglich für die Planheitsmessung umgesetzt werden. Es ist zugleich Nutzen aus dem und Anforderung an das Messverfahren, da zum einen **zerstörungsfrei** gemessen und eine 100 %-Prüfung ermöglicht wird. Zum anderen werden großen Datenmengen aufgenommen, was die Qualität des Messergebnisses steigert. Die mechanischen Versuche und der Abreißversuch sind nicht zerstörungsfrei. Das Fehlerbild muss herbeigeführt werden, um den Versagenszeitpunkt vorhersagen zu können. Wie zuvor erläutert, ist der **Materialbedarf** aber **gering** (vgl. Abbildung 12-10) und die Probenentnahme durch weitgehende **Vereinheitlichung der Probengeometrie** vereinfacht. Dafür wurde eigens eine Probenentnahmesystematik entwickelt. Die Messungen sind in einer UPM umgesetzt, die *de facto* zur Standardausstattung eines produzierenden Betriebes gehört, was eine **Atline-Prüfung** ermöglicht.

So können im Hinblick auf den **Prüfungszeitpunkt** alle Messungen **unmittelbar nach dem Kalandrieren** des Elektrodenwickels oder nach Fertigstellung des Loses durchgeführt werden. Dazu trägt auch der **geringe Zeitaufwand für die Probenpräparation** bei, da durch den Einsatz von Stanzen und instrumentierter Prüfung außer dem Einlegen der Prüflinge wenig manuelle Arbeit erforderlich ist.

Tabelle 7-1: Erfüllungsgrad der allgemeinen Anforderungen an die Messverfahren

Anforderungen		Erfüllungsgrad
Prüfmerkmal	Beschreibung der Fehlerbilder (Ausmaß bzw. Belastungsfall)	
	Keine Eigenschaftsänderungen durch Probenpräparation	
	Quantitative Prüfmerkmale mit Zahlenwert als Prüfergebnis zur statistischen Auswertung	
	Probengeometrie bzw. <i>inline</i> -Verfahren flexibel hinsichtlich der Elektrodengeometrie	
	Ortsaufgelöste Prüfung bzw. Probenentnahme (Untersuchung der Materialanisotropie)	
Prüfumfang und -ort	<i>Inline</i> -Fähigkeit ( <i>Kann</i> -Anforderung)	
	<i>Atline</i> -Prüfung ( <i>Muss</i> -Anforderung)	
	Zerstörungsfreiheit ( <i>Kann</i> -Anforderung)	
	Geringer Materialbedarf ( <i>Muss</i> -Anforderung)	
	Einheitliche Probengeometrie	
Prüfungszeitpunkt	Prüfungszeitpunkt unmittelbar nach Kalandrieren	
	Geringer Zeitaufwand für Probenpräparation	
Anforderung vollständig erfüllt          Anforderung kaum erfüllt		
Anforderung überwiegend erfüllt          Anforderung nicht erfüllt		
Anforderung teilweise erfüllt		

### 7.1.2 Nutzenpotenziale und Einschränkungen

Die Anforderungen wurden größtenteils umgesetzt. Auf entsprechende Nutzenpotenziale bzw. verbleibende Einschränkungen der Messverfahren wird im Folgenden eingegangen. Es sei darauf hingewiesen, dass diese als prototypische Umsetzung aufgebaut sind. Verbesserungen in Hardware und Software sind möglich, nachdem der Machbarkeitsnachweis erbracht wurde. Zu nennen ist der Einsatz eines Extensometers, um bei Scherversuchen die Dehnung genauer bestimmen zu können.

Im Abreißversuch versagte, wie in Abschnitt 6.3.3 beschrieben, vereinzelt das Klebeband, das eigentlich die Beschichtung abziehen sollte. Dies ist auf den ersten Blick nachteilhaft, da kein Wert für die Haftfestigkeit gewonnen werden kann. Die Praxiserfahrung zeigt aber, dass in diesem Wertebereich ( $\sigma_H > 2500 \text{ kPa}$ ) die Haftfestigkeit für eine Weiterverarbeitung mehr als ausreichend ist. Die Ausgabe eines genauen Schwellwertes ist nicht sinnvoll, da die Belastung der Beschichtung abhängig von den eingesetzten Folgeprozessen ist. In dieser Hinsicht ist zu hinterfragen, ob die Normalbeanspruchung für die Weiterverarbeitung generell repräsentativ ist. Um bspw. das Wickeln abzubilden, müsste die Eignung im Vergleich zum Dornbiegeversuch bewertet werden. Für die am *iwb* umgesetzten Stapelbildungsprozesse ist der Abreißversuch jedoch geeignet, weil er die Beanspruchung durch das Greifen der Elektroden nachempfinden kann. Weiter können auch einseitig beschichtete Elektroden untersucht werden. Der Dornbiegeversuch könnte ungeeignet sein, da die Beschichtung aufgrund der Position der neutralen Faser höheren Belastungen ausgesetzt wäre. Hinsichtlich der Versagensart selbst haben die Ergebnisse zur Haftfestigkeit von Kathoden mit weicher Substratfolie (vgl. Abschnitt 6.3.3) gezeigt, dass der Abreißversuch bei kohäsivem Versagen nur eingeschränkte Möglichkeiten zur Analyse bietet. Die Modellgüte ist für experimentelle Daten gering. Hier müsste überprüft werden, ob eine sich anschließende 2-D-Bildanalyse mehr Differenzierungspotenzial liefert. Um eine 3-D-Tiefeninformation zu gewinnen, bietet sich die Methode SAICAS an (vgl. Abschnitt 3.1). Ihre Eignung für Kathoden wurde in der Literatur noch nicht belegt und muss deshalb nachgewiesen werden. Es sei aber an dieser Stelle bzgl. einer produktionsnahen Implementierung an den Kostenrahmen erinnert.

Die in Abschnitt 5.2.2 beschriebene Auswertung des Biegeversuchs hat sich als robust und flexibel erwiesen. Die Auswertung der Steigung der Ausgleichsgeraden und des Biegemoduls bietet differenzierte Analysemöglichkeiten. Es wurde beobachtet, dass sich die Kathode in der Mitte biegesteifer verhält als am Rand. So können lokal Informationen gewonnen werden, um bspw. Ungleichmäßigkeiten in

den mechanischen Eigenschaften aufzudecken. Die Steigung der Ausgleichsgeraden gibt dabei den direkten Messwert ohne Normierung auf die Elektrodendicke wieder. Es wird die tatsächliche Biegesteifigkeit abgebildet, wie sie im Prozess vorliegt. Der Biegemodul hingegen wird zur Wiedergabe der Materialeigenschaften berechnet. So kann bspw. durch Umstellen der Formel die Biegesteifigkeit für eine beliebige Elektrodendicke abgeschätzt werden. Die Versuche haben bestätigt, dass Elektroden mit zunehmender Verdichtungsrate die Eigenschaften eines Komposits annehmen. Die Steigung der Ausgleichsgeraden drückt dabei die ‚absolute‘ Biegesteifigkeit aus. Mit der Berechnung des Biegemoduls kann der Anteil von Beschichtung und Substratfolie an der Biegesteifigkeit ermittelt werden. Ferner hat sich die der vorliegenden Arbeit entwickelte Auswertungsmethode der Rohdaten bewährt, die sich von der Norm DIN EN ISO 178 und NOELLE ET AL. (2018) unterscheidet. Sie ist robust gegenüber Messartefakten und erfordert keine manuellen Eingriffe, was eine hohe Vergleichbarkeit der Daten gewährleistet. Darüber hinaus haben die Versuche (vgl. Abschnitt 6.3.4) gezeigt, dass sich die Elektroden mit zunehmender Verdichtung steifer verhalten, was sich möglicherweise mit den oben genannten Auswertungsmethoden nicht zeigen würde. Nach der Norm DIN EN ISO 178 würde der Biegemodul bei einer höheren Durchbiegung berechnet, bei der die Steigung aufgrund der logarithmischen Form der Kurve ggf. bereits abgenommen hätte. Die Auswertung nach NOELLE ET AL. (2018) berücksichtigt den Kurvenverlauf nicht. Die Kraft wird pauschal bei 0,1 mm angegeben, ohne die Steigung zu berücksichtigen.

Großes Potenzial zur Weiterentwicklung steckt im Scherversuch. Die Versuche in Abschnitt 6.3.4 haben die haptische Sinneswahrnehmung wiedergegeben und v. a. mess- bzw. quantifizierbar gemacht. Zwischen dem Scher- und Zugversuch wurden ähnliche Trends aufgezeigt (vgl. HASELRIEDER 2016, S. 164 f.). Durch Variation von Scherspalt, Stempelgeometrie, usw. kann das Verfahren weiter optimiert werden. Ferner sind weitere Auswertungsmethoden denkbar, wie bspw. Integralrechnungen oder anderweitige Kurvenanalysen. Nachdem in der vorliegenden Arbeit der Funktionsnachweis erbracht wurde, können das Reißverhalten und die Sprödigkeit der Elektroden in weiterführenden Studien beschrieben werden.

Die Übereinstimmung der Messdaten mit den Modelldaten war für die Wellen am Beschichtungsrand am geringsten (vgl. Abschnitt 6.3.2). Bei ihrer Beschreibung anhand des Mittelwerts für Wellenlänge und -höhe wurden Einschränkungen festgestellt. Die große Streuung, die „klein im Vergleich zu den tatsächlichen Unterschieden sein“ (KLEPPMANN 2016, S. 23) sollte, sowie die Abhängigkeit des Profils von der gewählten Grenzfrequenz erschweren eine statistische Auswertung mittels MLR, die auf repräsentative Mittelwerte angewiesen ist. Die große

Streubreite, v. a. in der Wellenhöhe, könnte durch längere Messaufnahmen und Wiederholungen kompensiert werden, um den Mittelwert nicht zu verfälschen. Außerdem muss die ausgewählte Grenzfrequenz eine Vergleichbarkeit zwischen den Profilen gewährleisten. Vermutlich besteht aber ein Zusammenhang zwischen den Einflussgrößen und der Wellenlänge, was bei einer festen Grenzwellenlänge dazu führen würde, dass die Oberflächenprofile bei der Filterung unterschiedlich gedämpft würden. Eine adaptive Grenzwellenlänge, die aus der Wellenlänge der Elektrodenwelligkeit berechnet wird, wurde in dieser Arbeit zwar untersucht, aber nicht diskutiert, weil sie mit den durchgeführten Experimenten nicht validiert werden konnte. Evtl. ist weiterhin zu prüfen, ob die Filterung nur die Elektrodenwelligkeit von der Mitte ausblendet oder ob sie zusätzlich zu einer Eigenschaftsveränderung führt und damit gegen den Anforderungskatalog (vgl. Abschnitt 7.1.1) verstößt. Schließlich können die Methoden der SVM zur Auswertung der Wellen am Beschichtungsrand eingeschränkt sein. Hier sollte auf das Potenzial der künstlichen Intelligenz zur Erkennung von Mustern hingewiesen werden. Genauer würde eine 3-D-Messung Eingangsdaten für künstliche neuronale Netze liefern. Zugleich könnten Positionier-Ungenauigkeiten der Linearachse kompensiert werden, die für die Wellen am Beschichtungsrand sicherlich von größerer Bedeutung sind. Es ist aber von einem höheren Rechenaufwand auszugehen, was für die Echtzeitfähigkeit des Systems zu berücksichtigen ist.

Bewährt hat sich dagegen das Messverfahren zur Beschreibung der Elektrodenwelligkeit, obwohl es auf demselben physikalischen Messprinzip beruht und die Auswertungsmethode weitgehend teilt. Gründe dafür sind, dass für die Primärwelle keine Filterung erforderlich ist, Positionier-Ungenauigkeiten weniger ins Gewicht fallen und die Effekte meist größer sind als die Streuung. Die Integration der *Inline*-Messtechnik in Kalandern wurde in der vorliegenden Arbeit beschrieben. Dadurch ergeben sich Nutzenpotenziale hinsichtlich der Prozessüberwachung und ggf. sogar der Prozessregelung. Dafür sprechen die rechenarme Auswertung und die einfache, zweidimensionale Beschreibung der Elektrodenwelligkeit in Wellenlänge und -höhe. Das Verfahren kann die Verformung von Elektroden über ein geeignetes Verfahren erkennen und verhindern und wird somit dem Standard IEEE 1725:2011 gerecht. Aktuelle Marktrecherchen haben ergeben, dass Kalandhersteller bis *dato* keine derartigen Systeme anbieten. Dadurch leitet sich der Bedarf ab, das Messverfahren nach Erbringung des Machbarkeitsnachweises in dieser Arbeit wirtschaftlich zu bewerten.

Zunächst lässt sich zusammenfassen, dass die Messverfahren den größten Nutzen entfalten, wenn sie die Belastung der Elektroden in den Folgeprozessen simulieren,



wie am Bsp. des Abreißversuches erläutert wurde. Dies sollte bei der Auswahl der Messverfahren berücksichtigt werden. Mit der prototypischen Umsetzung der Messverfahren wurde die Machbarkeit nachgewiesen, zur Maximierung des Nutzens sollte die Methodenentwicklung fortgesetzt werden.

## 7.2 Wirtschaftliche Bewertung

Es folgt der Anwendungsfall, der einer exemplarischen wirtschaftlichen Bewertung zugrunde liegt. Fehlerbilder können sich in ihrem Auftreten unterscheiden, obwohl sie auf denselben Ursachen beruhen. Das trifft für die Elektrodenwelligkeit und den Bandsäbel zu. Wenn beim Längsschneiden die Beschichtungstreifen zugeschnitten werden, bildet sich der Bandsäbel aus. Der Grund dafür sind die durch das Kalandrieren eingebrachten Längenunterschiede (vgl. Abschnitt 4.2.1 und Abschnitt 6.3.2), die zuvor in der Elektrodenwelligkeit erkennbar waren. Die Elektrodenwelligkeit ist somit als Vorbote des Bandsäbels zu verstehen.

Bisher wird der Bandsäbel nach der in Abschnitt 5.1.2 beschriebenen Methode o. ä. gemessen. Mathematisch ausgedrückt, wird die Segmenthöhe  $h_C$  eines Bogens  $l_{C,1}$  für eine gegebene Kreissehne  $l_{C,0}$  gemessen (vgl. Abbildung 5-1 rechts). Bei der Elektrodenwelligkeit kann unter Annahme sinusförmiger Wellenverläufe basierend auf der Wellenlänge und -höhe die Bogenlänge  $l_{E,1}$  berechnet werden. Die Annahme  $l_{C,1} = l_{E,1}$  ist vermutlich vereinfacht, da in der Elektrode trotz Zuschnitts anderorts residuale Spannungen vorliegen. Dennoch kann angenommen werden, dass  $l_{C,1}$  steigt, wenn sich der Wert für  $l_E$  erhöht. Die Werte folgen dem gleichen Trend. Da das Ergebnis der Messung des Bandsäbels lediglich Prüfmerkmal eines Zwischenprodukts und kein Qualitätsmerkmal der finalen LIB ist, könnte die manuelle *Offline*-Messung des Bandsäbels durch die automatisierte *Inline*-Messung der Elektrodenwelligkeit substituiert werden. Der hieraus entstandene wirtschaftliche Nutzen soll im Folgenden bewertet werden.

Einsatzfeld ist eine Massenfertigung für großformatige LIB. Basierend auf dem in Abschnitt 5.3.2 umgesetzten Prüfstand wird unter Berücksichtigung der Skalierbarkeit von zwei Sensoren ausgegangen, da zweistreifig beschichtet wird. Das Messsystem wird im Kathodenkalender zwischen Zugwerk<sup>45</sup> und Aufwickler integriert. Die Produktionsgeschwindigkeit des Kalenders beträgt 65 m/min (KWADE ET AL. 2018, S. 293). Die Kosten für den Kalender werden nicht berücksichtigt, da das Messsystem als Zusatzmodul in eine bestehende Anlage integriert wird. Die

---

<sup>45</sup> Zugentkopplungen sind üblich, um den Bahnzug beim Aufwickeln unabhängig einstellen bzw. reduzieren zu können.

einmaligen Investitions- und Installationskosten des Messsystems werden mit 96.000€ angesetzt. Darin inbegriffen sind die Kosten für zwei Lasertriangulationssensoren inkl. Linearachse, die Integration in die Bahnregelung, die Prüfstandssoftware, die Programmierung sowie die Inbetriebnahme. Darüber hinaus entstehen laufende Kosten für Wartung und Pflege in Höhe von 10% der Investitionskosten. Des Weiteren beträgt nach der Richtlinie für die Nutzungsdauer von Vermögensgegenständen die Abschreibungsdauer für Materialprüfstände sechs Jahre (BUNDESMINISTERIUM DER FINANZEN 2001). Der kalkulatorische Zinssatz wird mit 5% angenommen.

Wie in Tabelle 7-2 zu sehen, entstehen somit jährliche Kosten von 30.400€.

Tabelle 7-2: Exemplarische Kostenkalkulation für die Planheitsmessung

<b>Jährliche Kosten des Messsystems</b>			
Investitionskosten	$I_{MS}$	96.000	€
Nutzungsdauer	$T_{MS}$	6	a
Kalkulatorische Abschreibung	$AfA_{MS} = \frac{I_{MS}}{T_{MS}}$	16.000	€/a
Kalkulatorischer Zinssatz	$Z_{MS}$	5	%
Kalkulatorische Zinsen	$K_{MS} = Z_{MS} \cdot I_{MS}$	4.800	€/a
Wartungs- und Pflegekosten	$W_{MS}$	9.600	€
Jährliche Kosten	$F_{MS} = AfA_{MS} + K_{MS} + W_{MS}$	30.400	€/a

Die jährlichen Kosten werden im Folgenden mit dem wirtschaftlichen Nutzen verglichen, der sich aus der Substitution der manuellen Messung des Bandsäbels ergibt (vgl. Tabelle 7-3).

Folgende Annahmen und Vereinfachungen werden getroffen: Eine Hilfskraft entnimmt einen ca. 1,5 m langen Bandabschnitt aus einer der vier Tochterrollen. Die benachbarten Bandabschnitte zählen nicht als Ausschuss, da sie weiterverarbeitet werden können. Jede Mutterrolle wird gemessen. Die Zeit für die Probenentnahme, Messung und Ergebnisdokumentation wurde auf 300 Sekunden geschätzt. Zur Erreichung der Produktionskapazität werden bei der betrachteten BEV-Zelle (Norm DIN 91252, S. 9) und NMC-811-Zellchemie ca. 10.000 Mutterrollen pro Jahr hergestellt. Für die Abschätzung wurden neben den Personalkosten nur die

Materialkosten berücksichtigt. Nach SCHÜNEMANN (2015, S. 96) entfallen 72 % der Herstellkosten einer LIB auf das Material. Es ist davon auszugehen, dass der Anteil der Materialkosten bis zum Längsschneiden noch weit höher ist. Daher wurden die Fertigungskosten vernachlässigt. Weitere Annahmen und Zwischenschritte zur Berechnung sind in Anhang A14 zu finden.

Folglich fallen für das automatisierte Messsystem jährlich Kosten von 30.400€ an. Dem stehen jährliche Kosten für die manuelle Bandsäbelmessung in Höhe von 51.275,85€ gegenüber. Damit beträgt der jährliche monetäre Vorteil 20.875,85€. Die statische Amortisationszeit des Messsystems beläuft sich auf ca. 1,43 Jahre.

Tabelle 7-3: Exemplarische Nutzenkalkulation für die Planheitsmessung

<b>Jährlicher Nutzen des Messsystems</b>			
Materialkosten Probe Bandsäbel	$K_{BS}$	2,16	€
Anzahl Mutterrollen pro Jahr	$A_{MR}$	10.005	–
Materialkosten pro Jahr	$K_a = K_{BS} \cdot A_{MR}$	21.563,04	€/a
Stundensatz	$K_h$	35,64	€/h
Dauer Bandsäbelmessung	$T_{BS}$	300	s
Personalkosten	$K_P = A_{MR} \cdot T_{BS} \cdot K_h$	29.712,81	€/a
Jährliche Kosten	$S_{BS} = K_a + K_P$	51.275,85	€/a
Jährlicher monetärer Vorteil vor Zins	$G_{VZ} = S_{BS} - F_{MS}$	20.875,85	€/a
Amortisationszeit (statisch)	$T_A = \frac{I_{MS}}{Af A_{MS} + S_{BS}}$	1,43	a

Im Folgenden wird das Ergebnis der Wirtschaftlichkeitsbewertung diskutiert. Wie aus Tabelle 7-2 und 7-3 zu entnehmen ist, entsprechen die Personalkosten für die Bandsäbelmessung in etwa den gesamten jährlichen Kosten des automatisierten Messsystems. Die Mehrkosten der Bandsäbelmessung resultieren aus den Materialkosten, die beim automatisierten Messsystem entfallen, da Letzteres zerstörungsfrei ist. Das in Form von Proben entnommene Material wird eingespart. Es ist bemerkenswert, dass die Materialkosten der Bandsäbelmessung in einer ähnlichen Größenordnung liegen wie die Personalkosten (vgl. Tabelle 7-3), obwohl

der Anwendungsfall am Hochlohnstandort Deutschland berechnet wurde. Das unterstreicht den hohen Stellenwert der Materialkosten.

Außerdem bietet das automatisierte Messsystem eine weitere Einsparmöglichkeit. Die Verformung der Elektrode wird bereits im Kalander bei ihrer Entstehung gemessen. Sollte es zu einem Fehler kommen, würde er nicht erst nach dem Längsschneiden erkannt werden. Kosten durch Fehlproduktion lassen sich so reduzieren.

Die wirtschaftliche Bewertung ist im doppelten Sinn exemplarisch. Einerseits liegt ihr eine exemplarische Berechnung zugrunde, die alle relevanten Kenngrößen berücksichtigt. Andererseits wurde ein exemplarischer Datensatz zur Berechnung herangezogen. Natürlich könnten zur Bewertung weitere Anwendungsfälle wie z. B. der Einsatz des Messsystems im Technikum betrachtet werden und andere Daten (z. B. Dauer der Bandsäbelmessung oder Probenanzahl) zur Berechnung herangezogen werden. Dadurch ergäben sich wahrscheinlich andere Rechenergebnisse. Dennoch lassen sich aus der hier vorgestellten exemplarischen wirtschaftlichen Bewertung allgemeine Schlüsse ziehen:

- Aufgrund des hohen Anteils der Materialkosten an den Herstellungskosten einer LIB sind zerstörungsfreie Prüf- bzw. Messsysteme, bei denen kein Ausschuss durch Probenentnahme entsteht, wirtschaftlich. Die getroffenen Annahmen und die gewählten Eingangsdaten bei der Berechnung beeinflussen zwar das Ergebnis und damit die Amortisationszeit, aber nicht in einem solchen Ausmaß, dass das Messsystem unwirtschaftlich wird.
- Es ist nicht zu erwarten, dass der Anteil der Materialkosten an den Herstellungskosten in den nächsten Jahren sinkt. Vielmehr steigen die Materialkosten (BLOOMBERGNEF 2021) aufgrund verknappender Rohstoffe und hoher Nachfrage. Damit bleibt die Relevanz zerstörungsfreier Messsysteme bestehen.
- Außerdem reduzieren automatisierte Messsysteme die Personalkosten. Der manuelle Aufwand bei der Probenentnahme, Messung, Dokumentation des Prüfergebnisses usw. entfällt.

Die exemplarische wirtschaftliche Bewertung unterstreicht schließlich die große wirtschaftliche Relevanz automatisierter *inline*-Messsysteme nicht nur bei der Herstellung von LIB, sondern allgemein in der Produktion von Gütern, die mit hohen Materialkosten verbunden sind.

## 8 Schlussbetrachtung

Im Folgenden werden eine Zusammenfassung der vorliegenden Dissertation und ein Ausblick auf mögliche, darauf aufbauende Arbeiten gegeben.

### 8.1 Zusammenfassung

Das Kalandrieren ist Teil einer fertigungstechnischen Prozesskette. Als abschließender Prozess der Elektrodenherstellung hat das Kalandrieren einen maßgeblichen Einfluss auf die physikalischen Eigenschaften von Elektroden. Über das Kalandrieren wird u. a. die volumetrische Energiedichte der LIB eingestellt. Hohe Dichten können aber zugleich die mechanischen Eigenschaften der Elektroden beeinträchtigen, was die Ausbeute einschränkt. Es herrscht ein Zielkonflikt.

Übergeordnetes Ziel der vorliegenden Arbeit war die Reduzierung von Ausschuss in Folgeprozessen durch die Betrachtung kalandrierbedingter Fehlerbilder, um die Energiedichte von LIB zu erhöhen, ohne die Produktionsausbeute zu senken. Erstmals wurde der Kalandrierprozess aus der produktionstechnischen Perspektive betrachtet, um nicht nur Einfluss auf die Zelleigenschaften, sondern auch auf ihre Fertigbarkeit zu nehmen. Leitgedanke bei der Ausfertigung der Arbeit war das *Design for Manufacturing* (DFM), also die technische Praxis, Produkte so zu entwerfen, dass sie leicht herzustellen sind.

Um dieses Ziel zu erreichen, wurde das in Abschnitt 1.3 vorgestellte Vorgehen ausgearbeitet. Um die Weiterverarbeitungseigenschaften stärker in den Fokus zu nehmen, wurden in Kapitel 4 Fehlerbilder definiert. Diesen Fehlerbildern wurden anschließend in Kapitel 5 physikalische, messtechnisch erfassbare Eigenschaften zugewiesen. Schließlich wurden entsprechende Messverfahren ausgewählt, kombiniert und angepasst oder neu entwickelt. So konnten die Fehlerbilder mess- und quantifizierbar gemacht werden. Kapitel 6 hat ein duales Ziel. Einerseits trägt es zur Zielerreichung bei, indem durch Variation von Einflussgrößen UWB aufgedeckt wurden, welche die Fehlerursachen und deren Entstehung nachvollziehen lassen. Eine Zusammenfassung der Erkenntnisse wurde in Abschnitt 6.5 gegeben. Andererseits ermöglichen die empirischen Untersuchungen, die Messverfahren zur Beschreibung der Fehlerbilder aus Kapitel 5 zu erproben. Schließlich wurde in Kapitel 7 deren technische und wirtschaftliche Bewertung vorgestellt.

Die in dieser Dissertation erarbeitete Klassifikation der Fehlerbilder beim Kalandrieren von Elektroden ist die erste ihrer Art. Umfassende und LIB-spezifische Beschreibungen von Fehlern, deren Ursachen sowie Vermeidungsmaßnahmen waren

in der Literatur bisher nicht zu finden. Die der Wissensakquisition und Interpretation zugrundeliegende Methode ist allgemeingültig, reproduzierbar und erlaubt eine Erweiterung der Fehlerbilder über die *iwb*-Forschungsproduktionslinie hinaus.

Die zur Erfassung der Fehlerbilder entwickelten Messverfahren erfüllen in den meisten Fällen die gestellten Anforderungen (vgl. Kapitel 7). Zudem wurde experimentell der Funktions- und Eignungsnachweis erbracht. Lediglich die Anwendbarkeit der Planheitsmessung bzw. der entwickelten Datenverarbeitung und -auswertung zur Beschreibung der Wellen am Beschichtungsrand konnte in dem durchgeführten Versuch nicht bestätigt werden (vgl. Kapitel 6). Die Konzeption als zerstörungsfreies Messsystem ermöglicht jedoch die Erfassung großer Datenmengen ohne Beeinträchtigung des Prozesses, was in Zukunft Korrelationen sichtbar machen könnte.

Durch den Einsatz der untersuchten Messverfahren konnten wichtige Erkenntnisse über den Einfluss des Kalandrierens auf die Elektroden gewonnen werden.

### **Produkteigenschaften**

- *Eine Erhöhung der Massenbeladung ist für die Weiterverarbeitung nachteilig.*

Die Haftfestigkeit von Anoden sinkt um ca. 50%. Kathoden verhalten sich im Biegeversuch in etwa doppelt so steif und die Wellenhöhe der Elektrodenwelligkeit nimmt um ca. 48% zu. Es ist eine Abwägung zwischen der gravimetrischen und volumetrischen Energiedichte zu treffen.

- *Die Elektroden nehmen die Eigenschaften eines Komposits an.*

Die Versuche zeigten, dass nicht nur Anoden (HASELRIEDER 2016), sondern auch Kathoden die Eigenschaften eines Komposits annehmen. Beschichtung und Substratfolie tragen zu den Eigenschaften der Elektrode bei. Der Beitrag der Substratfolie zu den mechanischen Eigenschaften steigt mit zunehmender Verdichtung.

- *Die Substratfolie beeinflusst alle Fehlerklassen.*

Studien zur Performance von LIB konzentrierten sich auf die Beschichtung, sodass der Substratfolie wenig Aufmerksamkeit geschenkt wurde (vgl. Abschnitte 3.2.1 und 3.2.2). Die vorliegende Arbeit zeigt jedoch, dass die Eigenschaften der Substratfolie die Verarbeitung der Elektrode bestimmen. Weichere Folien begünstigten die Adhäsion durch mechanische Verklammerung der Partikel, führen aber aufgrund der niedrigen Dehngrenze

zu einer erhöhten Welligkeit. Darüber hinaus verringert die Verwendung dickerer Folien die Flexibilität der Elektroden, macht sie aber reißfester.

### Prozessparameter

- *Die Verdichtungsrate hat den größten Einfluss.*

Gemessen an der Anzahl der betroffenen Fehlerbilder und der Einflussstärke spielt die Verdichtungsrate die größte Rolle. In Bezug auf die Weiterverarbeitung ist der Einfluss weitgehend negativ. In den untersuchten Grenzen nimmt die Wellenhöhe der Elektrodenwelligkeit um die Hälfte zu, und im Biegeversuch verdoppelt sich die Steigung der Ausgleichgeraden. Eine Ausnahme bildet die Haftfestigkeit, wo eine starke Verdichtung zu einer Erhöhung führen kann.

- *Die Walzentemperatur ermöglicht Feineinstellungen.*

Die Einflussstärke der Walzentemperatur ist deutlich geringer als die der Verdichtungsrate. An Kathoden reduziert sich die Wellenlänge der Elektrodenwelligkeit um ca. 10%. Weiter verhalten sich Kathoden um ein Viertel biegesteifer und reißen bereits bei ca. 5–10% geringeren Scherkräften. Am stärksten lässt sich die Haftfestigkeit beeinflussen mit einer Steigerung um ein Viertel bei Kathoden und sogar bis zu der Hälfte bei Anoden.

### Anlagenmerkmale

- *Der Einsatz größerer Walzen fördert die Haftfestigkeit.*

Ein größerer Walzendurchmesser wirkt sich positiv aus, wobei der Einfluss bei Anoden mit ca. 44% im Vgl. zu Kathoden mit ca. 18% höher ist. Im Hinblick auf die Massenfertigung ist das günstig, weil mit der Ballenbreite der Durchmesser zunimmt.

Letzen Endes ebnet die Betriebspraxis (vgl. Tabelle 6-8) den Weg für die Anwendung der Ergebnisse. Im nächsten Abschnitt werden Folgearbeiten und verbleibende Herausforderungen genannt.

## 8.2 Ausblick

Die vorliegende Arbeit liefert methodische und technische Werkzeuge, um die Untersuchungen zu Fehlerbildern beim Kalandrieren von Elektroden auf weitere Materialsysteme auszuweiten. Neben einer stärkeren Fokussierung der Substratfolie sollte auch das Verhalten anderer Aktivmaterialien betrachtet werden. Diese können zu weiteren Fehlerbildern führen bzw. die Ausprägung existierender Fehlerbilder

beeinflussen, wie bspw. SCHREINER ET AL. (2021) von überlithiierten, manganreichen NMC-Kathoden berichteten. Aufgrund fehlender Messverfahren wurden die Beobachtungen jedoch qualitativ vorgenommen. Die in dieser Dissertation erarbeiteten Methoden ermöglichen nun eine Quantifizierung.

SCHREINER ET AL. (2021) nutzen die Quecksilberporosimetrie, um Ursachen für die schlechte Verarbeitbarkeit zu ergründen. Das Analyseverfahren ist aufgrund der aufwändigen Probenpräparation *atline* nicht anwendbar, dennoch bietet es die Möglichkeit, das makroskopische Erscheinen der Fehlerbilder mit der Mikrostruktur der Beschichtung zu verknüpfen. So kann diese Methode in Zukunft mit den in dieser Arbeit entwickelten Messverfahren kombiniert werden, um den Einfluss der eingesetzten Partikel und der Vorprozesse zu untersuchen.

Im Allg. kann die vorliegende Arbeit als Leitfaden genutzt werden, um die Einführung neuer Materialsysteme zu begleiten – und zwar auch über die ‚konventionellen‘ LIB hinaus. Der Trend geht zu Feststoffbatterien, die aufgrund ihres Aufbaus Elektroden mit niedrigster Porosität fordern (SCHNELL ET AL. 2018), was zu stark ausgeprägten Fehlerbildern führen kann.

Unter den Prozessparametern konnte die Bahnspannung mit der vorhandenen Anlagentechnik nicht untersucht werden. Das Nachrüsten eines Zugwerks am Kalandar des *iwb* wird dies zukünftig ermöglichen. Es wird ein großes Potenzial zur Reduzierung der Elektrodenwelligkeit vermutet. Weiter wird die Rolle der Walzentemperatur noch nicht vollumfänglich verstanden. Große Abhängigkeiten sind hinsichtlich der Elektrodenformulierungen zu erwarten. Der in dieser Arbeit eingetretene ‚Plateau-Effekt‘ (vgl. Abschnitt 6.3.3) eröffnet weitere Forschungsmöglichkeiten unter Berücksichtigung des Energiebedarfes.

Schließlich ist auf die Weiterentwicklung der Messverfahren hinzuweisen. Als Bsp. sei der Einsatz von optischen 3-D-Sensoren zur Planheitsmessung genannt. Die Aufzeichnung von Punktwolken könnte es ermöglichen, die Wellen am Beschichtungsrand tiefergehend zu untersuchen und durch Messung der gesamten Bahnbreite mit der Elektrodenwelligkeit in Beziehung zu setzen.



---

## 9 Literaturverzeichnis

ANDRE ET AL. 2015

Andre, D.; Kim, S.-J.; Lamp, P.; Lux, S. F.; Maglia, F.; Paschos, O.; Stiaszny, B.: Future generations of cathode materials: an automotive industry perspective. *Journal of Materials Chemistry A* 3 (2015) 13, S. 6709-6732. DOI: 10.1039/C5TA00361J.

ANTARTIS ET AL. 2015

Antartis, D.; Dillon, S.; Chasiotis, I.: Effect of porosity on electrochemical and mechanical properties of composite Li-ion anodes. *Journal of Composite Materials* 49 (2015) 15, S. 1849-1862. DOI: 10.1177/0021998314568653.

ANTONOVA 2009

Antonova, N. M.: The mechanical properties of a composite coating with a polymer matrix based on sodium carboxymethylcellulose and aluminum powder. *Russian Journal of Non-Ferrous Metals* 50 (2009) 4, S. 419-423. DOI: 10.3103/S1067821209040221.

ARKEMA INC. 2012: Kynar® and Kynar Flex®. Polyvinylidene Fluoride (PVDF) Resins For Batteries. <<https://dokumen.tips/embed/v1/kynar-and-kynar-flex-polyvinylidene-fluoride-pvdf-fluoride-pvdf-resins.html>> - 28.02.2022.

AURBACH 2002

Aurbach, D.: The Role of Surface Films on Electrodes in Li-Ion Batteries. In: van Schalkwijk, W. A. et al. (Hrsg.): *Advances in Lithium-Ion Batteries*. Boston, MA: Springer US 2002, S. 7-77. ISBN: 978-0-306-47356-2. DOI: 10.1007/0-306-47508-1\_2.

BABINEC ET AL. October 29-November 3, 2006

Babinec, S. J.; Tang, H.; Meyers, G.; Stajdl, J.: Cathode Structure/Property Relationships: Electrochemistry and Mechanics. (Hrsg.): *ECS Transactions*, 210th ECS Meeting. Cancun, Mexico, October 29-November 3, 2006: ECS, S. 233-242. DOI: 10.1149/1.2793595.

BABINEC ET AL. 2007

Babinec, S.; Tang, H.; Talik, A.; Hughes, S.; Meyers, G.: Composite cathode structure/property relationships. *Journal of Power Sources* 174 (2007) 2, S. 508-514. DOI: 10.1016/j.jpowsour.2007.06.071.

BAUNACH ET AL. 2016

Baunach, M.; Jaiser, S.; Schmelzle, S.; Nirschl, H.; Scharfer, P.; Schabel, W.: Delamination behavior of lithium-ion battery anodes: Influence of drying

temperature during electrode processing. *Drying Technology* 34 (2016) 4, S. 462-473. DOI: 10.1080/07373937.2015.1060497.

BERGER & KLOOS 2011

Berger, C.; Kloos, K. H.: Werkstoffprüfung. In: Grote, K.-H. et al. (Hrsg.): *Dubbel*. Berlin, Heidelberg: Springer-Verlag 2011, E24-E32. ISBN: 978-3-642-17305-9. DOI: 10.1007/978-3-642-17306-6\_135.

BERGMANN & ZABLER 2006

Bergmann, R. B.; Zabler, E.: Methoden der zerstörungsfreien Prüfung. In: Gevatter, H.-J. et al. (Hrsg.): *Handbuch der Mess- und Automatisierungstechnik in der Produktion*. Berlin, Heidelberg: Springer-Verlag 2006. ISBN: 3-540-21207-8. (VDI-Buch).

BILLOT ET AL. 2020

Billot, N.; Günther, T.; Schreiner, D.; Stahl, R.; Kranner, J.; Beyer, M.; Reinhart, G.: Investigation of the Adhesion Strength along the Electrode Manufacturing Process for Improved Lithium-Ion Anodes. *Energy Technology* 8 (2020) 2, S. 1801136. DOI: 10.1002/ente.201801136.

BILLOT 2021

Billot, N.: *Modeling of Adhesion Mechanisms of Lithium-ion Cell Anodes*. (Dissertation). Institut für Werkzeugmaschinen und Betriebswissenschaften, Technische Universität München. München (2021).

BISCHOF & POSSART 1983

Bischof, C.; Possart, W.: *Adhäsion : theoretische und experimentelle Grundlagen*. Berlin: Akademie Verlag 1983.

BITSCH ET AL. 2015

Bitsch, B.; Willenbacher, N.; Wenzel, V.; Schmelzle, S.; Nirschl, H.: Einflüsse der mechanischen Verfahrenstechnik auf die Herstellung von Elektroden für Lithium-Ionen-Batterien. *Chemie Ingenieur Technik* 87 (2015) 4, S. 466-474. DOI: 10.1002/cite.201400093.

BITSCH 2017

Bitsch, B.: *Verwendung von Kapillarsuspensionen zur Prozessierung von Lithium-Ionen Batterieelektroden*. (Dissertation). Institut für Mechanische Verfahrenstechnik und Mechanik, Karlsruher Institut für Technologie. Karlsruhe (2017). DOI: 10.5445/IR/1000064637.

---

BLECHSCHMIDT 2013

Blechs Schmidt, J.: Papierverarbeitungstechnik. München: Carl Hanser Verlag 2013. ISBN: 9783446431669.

BLEHER 2014

Bleher, N.: Konzeption und Auswertung der empirischen Forschung. In: Bleher, N. (Hrsg.): Produktionssysteme erfolgreich einführen. Wiesbaden: Springer Fachmedien 2014, S. 151-196. ISBN: 978-3-658-05274-4. DOI: 10.1007/978-3-658-05275-1\_5.

BLESSING & CHAKRABARTI 2009

Blessing, L. T.M.; Chakrabarti, A.: DRM, a Design Research Methodology. London: Springer-Verlag 2009. ISBN: 978-1-84882-586-4. DOI: 10.1007/978-1-84882-587-1.

BLOOMBERGNEF 2021: Battery Pack Prices Fall to an Average of \$132/kWh, But Rising Commodity Prices Start to Bite. <<https://about.bnef.com/blog/battery-pack-prices-fall-to-an-average-of-132-kwh-but-rising-commodity-prices-start-to-bite/>> - 01.11.2022.

BOCKHOLT ET AL. 2013

Bockholt, H.; Haselrieder, W.; Kwade, A.: Intensive Dry and Wet Mixing Influencing the Structural and Electrochemical Properties of Secondary Lithium-Ion Battery Cathodes. ECS Transactions 50 (2013) 26, S. 25-35. DOI: 10.1149/05026.0025ecst.

BOCKHOLT ET AL. 2016

Bockholt, H.; Indrikova, M.; Netz, A.; Golks, F.; Kwade, A.: The interaction of consecutive process steps in the manufacturing of lithium-ion battery electrodes with regard to structural and electrochemical properties. Journal of Power Sources 325 (2016), S. 140-151. DOI: 10.1016/j.jpowsour.2016.05.127.

BOGNER 2020

Bogner, A.: Experteninterviews. Theorien, Methoden, Anwendungsfelder. 4. Auflage. Wiesbaden: VS Verlag für Sozialwissenschaften 2020. ISBN: 978-3-531-18050-2.

BOLD & FLEISCHER 2018

Bold, B.; Fleischer, J.: Kalandrieren von Elektroden für Li-Ionen-Batterien. ZWF Zeitschrift für wirtschaftlichen Fabrikbetrieb 113 (2018) 9, S. 571-575. DOI: 10.3139/104.111968.

BONNET 2009

Bonnet, M.: Kunststoffe in der Ingenieur Anwendung. Verstehen und zuverlässig auswählen. 1. Aufl. Wiesbaden: Vieweg+Teubner Verlag 2009. ISBN: 978-3-8348-0349-8. DOI: 10.1007/978-3-8348-9303-1.

BRECHER ET AL. 2007

Brecher, C.; Büttgenbach, S.; Denkena, B.; Hemmelmann, J.; Herfurth, K.; Kempa, B.; Kiesewetter, L.; Ladwig, J.; Niemann, J.; Seliger, G.; Siegert, K.; Spur, G.; Stolz, M.; Tönshoff, H. K.; Uhlmann, E.; Warnecke, H.-J.; Weck, M.; Westkämper, E.: Fertigungsverfahren. In: Grote, K.-H. et al. (Hrsg.): Dubbel. Berlin, Heidelberg: Springer-Verlag 2007, S1-S114. ISBN: 978-3-540-49714-1. DOI: 10.1007/978-3-540-68191-5\_18.

BRÉGER & PERRONCEL 2014

Bréger, J.; Perroncel, D.: Electrode Calendering. (Hrsg.): Electrodes and Cell Manufacturing White Paper, S. 58-63.

BRODD & TAGAWA 2002

Brodd, R. J.; Tagawa, K.: Lithium-Ion Cell Production Processes. In: van Schalkwijk, W. A. et al. (Hrsg.): Advances in Lithium-Ion Batteries. Boston, MA: Springer US 2002, S. 267-288. ISBN: 978-0-306-47356-2. DOI: 10.1007/0-306-47508-1\_10.

BROWNING 2001

Browning, T. R.: Applying the design structure matrix to system decomposition and integration problems: a review and new directions. IEEE Transactions on Engineering Management 48 (2001) 3, S. 292-306. DOI: 10.1109/17.946528.

BROWNING 2016

Browning, T. R.: Design Structure Matrix Extensions and Innovations: A Survey and New Opportunities. IEEE Transactions on Engineering Management 63 (2016) 1, S. 27-52. DOI: 10.1109/TEM.2015.2491283.

BRÜGGEMANN & BREMER 2012

Brüggemann, H.; Bremer, P.: Grundlagen Qualitätsmanagement. Wiesbaden: Vieweg+Teubner Verlag 2012. ISBN: 978-3-8348-1309-1. DOI: 10.1007/978-3-8348-8301-8.

BÜHLER & BUCHHOLTZ 1973

Bühler, H.; Buchholtz, O. W.: Eigenspannungsmessungen an planem und unplanem Kaltband. Archiv für das Eisenhüttenwesen 44 (1973) 12, S. 907-912. DOI: 10.1002/srin.197302500.

---

BUNDESMINISTERIUM DER FINANZEN 06.12.2001: AfA-Tabelle für den Wirtschaftszweig "Maschinenbau". (Hrsg.): Einkommensteuergesetz.

BURR & HARSCH 2011

Burr, A.; Harsch, G.: Kunststoffe Kunststoffe. In: Grote, K.-H. et al. (Hrsg.): Dubbel. Berlin, Heidelberg: Springer-Verlag 2011, E71-E85. ISBN: 978-3-642-17305-9. DOI: 10.1007/978-3-642-17306-6\_137.

BUSÀ ET AL. 2021

Busà, C.; Belekoukia, M.; Loveridge, M. J.: The effects of ambient storage conditions on the structural and electrochemical properties of NMC-811 cathodes for Li-ion batteries. *Electrochimica Acta* 366 (2021), S. 137358. DOI: 10.1016/j.electacta.2020.137358.

CAO ET AL. 2015

Cao, C.; Yuan, X.; Zhao, S.; Wu, Y.; van Ree, T.: Assembly Processes for Lithium-Ion Batteries. In: Wu, Y. (Hrsg.): *Lithium-ion batteries. Fundamentals and applications*. Boca Raton, FL: CRC Press 2015, S. 479-506. ISBN: 978-1-4665-5734-5. (Electrochemical energy storage and conversion).

CASTAGNET ET AL. 2000

Castagnet, S.; Gacougnolle, J.-L.; Dang, P.: Correlation between macroscopical viscoelastic behaviour and micromechanisms in strained  $\alpha$  polyvinylidene fluoride (PVDF). *Materials Science and Engineering: A* 276 (2000) 1-2, S. 152-159. DOI: 10.1016/S0921-5093(99)00320-2.

CHEN ET AL. 2003a

Chen, Z.; Christensen, L.; Dahn, J. R.: Comparison of PVDF and PVDF-TFE-P as Binders for Electrode Materials Showing Large Volume Changes in Lithium-Ion Batteries. *Journal of The Electrochemical Society* 150 (2003) 8, A1073. DOI: 10.1149/1.1586922.

CHEN ET AL. 2003b

Chen, Z.; Christensen, L.; Dahn, J. R.: Large-volume-change electrodes for Li-ion batteries of amorphous alloy particles held by elastomeric tethers. *Electrochemistry Communications* 5 (2003) 11, S. 919-923. DOI: 10.1016/j.elecom.2003.08.017.

CHEN ET AL. 2006

Chen, L.; Xie, X.; Xie, J.; Wang, K.; Yang, J.: Binder effect on cycling performance of silicon/carbon composite anodes for lithium ion batteries. *Journal of Applied Electrochemistry* 36 (2006) 10, S. 1099-1104. DOI: 10.1007/s10800-006-9191-2.

CHEN ET AL. 2010

Chen, Y.-H.; Wang, C.-W.; Zhang, X.; Sastry, A. M.: Porous cathode optimization for lithium cells: Ionic and electronic conductivity, capacity, and selection of materials. *Journal of Power Sources* 195 (2010) 9, S. 2851-2862. DOI: 10.1016/j.jpowsour.2009.11.044.

CHEN ET AL. 2013

Chen, J.; Liu, J.; Qi, Y.; Sun, T.; Li, X.: Unveiling the Roles of Binder in the Mechanical Integrity of Electrodes for Lithium-Ion Batteries. *Journal of The Electrochemical Society* 160 (2013) 9, A1502-A1509. DOI: 10.1149/2.088309jes.

CHENG ET AL. 2017

Cheng, E. J.; Hong, K.; Taylor, N. J.; Choe, H.; Wolfenstine, J.; Sakamoto, J.: Mechanical and physical properties of LiNi<sub>0.33</sub>Mn<sub>0.33</sub>Co<sub>0.33</sub>O<sub>2</sub> (NMC). *Journal of the European Ceramic Society* 37 (2017) 9, S. 3213-3217. DOI: 10.1016/j.jeurceramsoc.2017.03.048.

CHINNATHAI ET AL. 2017

Chinnathai, M. K.; Günther, T.; Ahmad, M.; Stocker, C.; Richter, L.; Schreiner, D.; Vera, D.; Reinhart, G.; Harrison, Robert: An Application of Physical Flexibility and Software Reconfigurability for the Automation of Battery Module Assembly. *Procedia CIRP* 63 (2017), S. 604-609. DOI: 10.1016/j.procir.2017.03.128.

CHU ET AL. 2012

Chu, C.-M.; Liu, C.-Y.; Wang, Y.-Y.; Wan, C.-C.; Yang, C.-R.: On the evaluation of the factors influencing the rate capability of a LiCoO<sub>2</sub>|Li battery. *Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers* 43 (2012) 2, S. 201-206. DOI: 10.1016/j.jtice.2011.10.015.

COUBE ET AL. 2008

Coube, Olivier; Doremus, Pierre; Tweed, James H. (Hrsg.): *Modelling of powder die compaction*. London: Springer 2008. ISBN: 978-1-84628-098-6. (Engineering materials and processes).

DAHN & EHRLICH 2019

Dahn, J.; Ehrlich, G. M.: Chapter 17: Lithium Secondary Cells. In: Beard, K. W. et al. (Hrsg.): *Linden's Handbook of batteries*. Fifth edition Aufl. New York: McGraw-Hill Education 2019, S. 757-824. ISBN: 978-1-260-11592-5.

DANILOVIC & BROWNING 2007

Danilovic, M.; Browning, T. R.: Managing complex product development projects with design structure matrices and domain mapping matrices. *International Journal*

---

of Project Management 25 (2007) 3, S. 300-314. DOI:  
10.1016/j.ijproman.2006.11.003.

DAVOODABADI ET AL. 2019

Davoodabadi, A.; Li, J.; Zhou, H.; Wood, D. L.; Singler, T. J.; Jin, C.: Effect of calendring and temperature on electrolyte wetting in lithium-ion battery electrodes. Journal of Energy Storage 26 (2019) 11, S. 101034. DOI:  
10.1016/j.est.2019.101034.

Norm DIN 55350-12:1989-03

DIN Deutsches Institut für Normung e. V. DIN 55350-12:1989-03: Begriffe der Qualitätssicherung und Statistik. Berlin: Beuth Verlag GmbH 03.1989. DOI:  
10.31030/2319422.

Norm DIN 1319-1:1995-01

DIN Deutsches Institut für Normung e. V. DIN 1319-1:1995-01: Grundlagen der Meßtechnik. Berlin: Beuth Verlag GmbH 01.1995. DOI: 10.31030/2713411.

Norm DIN EN 10202

DIN Deutsches Institut für Normung e. V. DIN EN 10202: Kaltgewalzte Verpackungsblecherzeugnisse - Elektrolytisch verzinnter und spezialverchromter Stahl. Berlin: Beuth Verlag GmbH 07.2001. DOI: 10.31030/9120786.

Norm DIN 8580

DIN Deutsches Institut für Normung e. V. DIN 8580, 01.040.25; 25.020: Fertigungsverfahren - Begriffe, Einteilung. Berlin: Beuth Verlag GmbH 00.09.2003. DOI: 10.31030/9500683.

Norm DIN EN ISO 14577-1

DIN Deutsches Institut für Normung e. V. DIN EN ISO 14577-1: Metallische Werkstoffe - Instrumentierte Eindringprüfung zur Bestimmung der Härte und anderer Werkstoffparameter. Berlin: Beuth Verlag GmbH 11.2005. DOI:  
10.31030/2055269.

Norm DIN EN 10140

DIN Deutsches Institut für Normung e. V. DIN EN 10140: Kaltband - Grenzabmaße und Formtoleranzen. Berlin: Beuth Verlag GmbH 09.2006. DOI:  
10.31030/9708467.

Norm DIN EN 10131

DIN Deutsches Institut für Normung e. V. DIN EN 10131: Kaltgewalzte Flacherzeugnisse ohne Überzug und mit elektrolytischem Zink- oder Zink-Nickel-Überzug aus weichen Stählen sowie aus Stählen mit höherer Streckgrenze zum

Kaltumformen - Grenzabmaße und Formtoleranzen. Berlin: Beuth Verlag GmbH 09.2006. DOI: 10.31030/9708466.

Norm DIN EN ISO 8510-2

DIN Deutsches Institut für Normung e. V. DIN EN ISO 8510-2: Klebstoffe - Schälprüfung für flexibel/starr geklebte Proben. Berlin: Beuth Verlag GmbH 12.2010. DOI: 10.31030/1720845.

Norm DIN EN ISO 1519

DIN Deutsches Institut für Normung e. V. DIN EN ISO 1519: Beschichtungsstoffe - Dornbiegeversuch (zylindrischer Dorn). Berlin: Beuth Verlag GmbH 04.2011. DOI: 10.31030/1728339.

Norm DIN EN ISO 14125

DIN Deutsches Institut für Normung e. V. DIN EN ISO 14125: Faserverstärkte Kunststoffe -Bestimmung der Biegeeigenschaften. Berlin: Beuth Verlag GmbH 05.2011. DOI: 10.31030/1753441.

Norm DIN EN 10251

DIN Deutsches Institut für Normung e. V. DIN EN 10251: Magnetische Werkstoffe - Verfahren zur Bestimmung der geometrischen Kenngrößen von Elektroblech und -band. Berlin: Beuth Verlag GmbH 11.2015. DOI: 10.31030/2342897.

Norm DIN EN ISO 9000

DIN Deutsches Institut für Normung e. V. DIN EN ISO 9000: Qualitätsmanagementsysteme. Berlin: Beuth Verlag GmbH 11.2015. DOI: 10.31030/2325650.

Norm DIN EN 10106

DIN Deutsches Institut für Normung e. V. DIN EN 10106: Kaltgewalztes nicht kornorientiertes Elektrobund und -blech im schlussgeglühten Zustand. Berlin: Beuth Verlag GmbH 03.2016. DOI: 10.31030/2315581.

Norm DIN EN ISO 7438

DIN Deutsches Institut für Normung e. V. DIN EN ISO 7438: Metallische Werkstoffe - Biegeversuch. Berlin: Beuth Verlag GmbH 07.2016. DOI: 10.31030/2417891.

Norm DIN EN ISO 4624

DIN Deutsches Institut für Normung e. V. DIN EN ISO 4624: Beschichtungsstoffe - Abreißversuch zur Bestimmung der Haftfestigkeit. Berlin: Beuth Verlag GmbH 08.2016. DOI: 10.31030/2360041.



---

Norm DIN 91252

DIN Deutsches Institut für Normung e. V. DIN 91252: Elektrische Straßenfahrzeuge - Batteriesysteme. Berlin: Beuth Verlag GmbH 11.2016. DOI: 10.31030/2541952.

Norm DIN EN ISO 20502

DIN Deutsches Institut für Normung e. V. DIN EN ISO 20502: Hochleistungskeramik - Bestimmung der Haftung von keramischen Schichten mit dem Ritztest. Berlin: Beuth Verlag GmbH 11.2016. DOI: 10.31030/2475545.

Norm DIN 50125

DIN Deutsches Institut für Normung e. V. DIN 50125: Prüfung metallischer Werkstoffe - Zugproben. Berlin: Beuth Verlag GmbH 12.2016. DOI: 10.31030/2577390.

Norm DIN EN ISO 178

DIN Deutsches Institut für Normung e. V. DIN EN ISO 178: Kunststoffe - Bestimmung der Biegeeigenschaften. Berlin: Beuth Verlag GmbH 08.2019. DOI: 10.31030/3030985.

Norm DIN 55350

DIN Deutsches Institut für Normung e. V. DIN 55350: Begriffe zum Qualitätsmanagement. Berlin: Beuth Verlag GmbH 10.2021. DOI: 10.31030/3270647.

DOEGE & BEHRENS 2016

Doege, E.; Behrens, B.-A.: Handbuch Umformtechnik. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg 2016. ISBN: 978-3-662-43890-9. DOI: 10.1007/978-3-662-43891-6.

DREGER ET AL. 2019

Dreger, H.; Haselrieder, W.; Kwade, A.: Influence of dispersing by extrusion and calendaring on the performance of lithium-ion battery electrodes. *Journal of Energy Storage* 21 (2019), S. 231-240. DOI: 10.1016/j.est.2018.11.028.

DU ET AL. 2014

Du, Z.; Dunlap, R. A.; Obrovac, M. N.: High Energy Density Calendered Si Alloy/Graphite Anodes. *Journal of The Electrochemical Society* 161 (2014) 10, A1698-A1705. DOI: 10.1149/2.0941410jes.

DU PASQUIER ET AL. 2001

Du Pasquier, A.; Zheng, T.; Amatucci, G. G.; Gozdz, A. S.: Microstructure effects

in plasticized electrodes based on PVDF–HFP for plastic Li-ion batteries. *Journal of Power Sources* 97-98 (2001), S. 758-761. DOI: 10.1016/S0378-7753(01)00650-4.

EICHGRÜN 2003

Eichgrün, K.: Prozesssicherheit in fertigungstechnischen Prozessketten. (Dissertation). Lehrstuhl für Fertigungstechnik und Betriebsorganisation, Technische Universität Kaiserslautern. Kaiserslautern (2003).

ELWAZRI ET AL. 2006

Elwazri, A. M.; Varano, R.; Wanjara, P.; Yue, S.: Effect of Specimen Thickness and Punch Diameter in Shear Punch Testing. *Canadian Metallurgical Quarterly* 45 (2006) 1, S. 33-40. DOI: 10.1179/cmqr.2006.45.1.33.

EUROPÄISCHE UNION 19.10.2016: Übereinkommen von Paris. (Hrsg.): Amtsblatt der Europäischen Union, S. 4-18.

EUROPÄISCHE ZENTRALBANK 2021: Reference rates - US dollar (USD). Change from 4 January 2021 to 5 November 2021.

<[https://www.ecb.europa.eu/stats/policy\\_and\\_exchange\\_rates/euro\\_reference\\_exchange\\_rates/html/eurofxref-graph-usd.de.html](https://www.ecb.europa.eu/stats/policy_and_exchange_rates/euro_reference_exchange_rates/html/eurofxref-graph-usd.de.html)> - 08.11.2021.

FASSE 1997

Fasse, H.: Verfahrenstechnischer Beitrag zur Elektrodenherstellung für Brennstoffzellen. (Dissertation) Technische Universität Clausthal. Clausthal (1997).

FISCHER-CRIPPS 2011

Fischer-Cripps, A. C.: Nanoindentation. New York, NY: Springer 2011. ISBN: 978-1-4419-9871-2. DOI: 10.1007/978-1-4419-9872-9.

FONT ET AL. 2018

Font, F.; Protas, B.; Richardson, G.; Foster, J. M.: Binder migration during drying of lithium-ion battery electrodes: Modelling and comparison to experiment. *Journal of Power Sources* 393 (2018), S. 177-185. DOI: 10.1016/j.jpowsour.2018.04.097.

FRITZ 2018

Fritz, A. H.: Umformen. In: Fritz, A. H. (Hrsg.): *Fertigungstechnik*. Berlin, Heidelberg: Springer 2018, S. 133-223. ISBN: 978-3-662-56534-6. (Springer-Lehrbuch). DOI: 10.1007/978-3-662-56535-3\_3.

FROST 2017

Frost, I.: *Statistische Testverfahren, Signifikanz und p-Werte*. Wiesbaden: Springer Fachmedien Wiesbaden 2017. ISBN: 978-3-658-16257-3. (essentials). DOI: 10.1007/978-3-658-16258-0.

---

GNANARAJ ET AL. 2001

Gnanaraj, J.S.; Cohen, Y. S.; Levi, M.D.; Aurbach, D.: The effect of pressure on the electroanalytical response of graphite anodes and LiCoO<sub>2</sub> cathodes for Li-ion batteries. *Journal of Electroanalytical Chemistry* 516 (2001) 1-2, S. 89-102. DOI: 10.1016/S0022-0728(01)00663-5.

GRAF 2018

Graf, C.: Cathode materials for lithium-ion batteries. In: Korthauer, R. (Hrsg.): *Lithium-Ion Batteries: Basics and Applications*. Berlin, Heidelberg: Springer 2018, S. 29-41. ISBN: 978-3-662-53069-6. DOI: 10.1007/978-3-662-53071-9\_4.

GUDURU ET AL. 2005

Guduru, R. K.; Darling, K. A.; Kishore, R.; Scattergood, R. O.; Koch, C. C.; Murty, K. L.: Evaluation of mechanical properties using shear-punch testing. *Materials Science and Engineering: A* 395 (2005) 1-2, S. 307-314. DOI: 10.1016/j.msea.2004.12.048.

GUDURU ET AL. 2007

Guduru, R. K.; Nagasekhar, A. V.; Scattergood, R. O.; Koch, C. C.; Murty, K. L.: Thickness and Clearance Effects in Shear Punch Testing. *Advanced Engineering Materials* 9 (2007) 3, S. 157-160. DOI: 10.1002/adem.200600255.

GUIGON ET AL. 2007

Guigon, P.; Simon, O.; Saleh, K.; Bindhumadhavan, G.; J. Adams, M.; Seville, J. P.K.: Chapter 5 Roll pressing. In: Salman, A. D. et al. (Hrsg.): *Granulation*: Elsevier 2007, S. 255-288. ISBN: 9780444518712. (Handbook of Powder Technology). DOI: 10.1016/S0167-3785(07)80040-6.

GULBINSKA 2014

Gulbinska, M. K.: Lithium-ion Cell Materials in Practice. In: Gulbinska, M. K. (Hrsg.): *Lithium-ion Battery Materials and Engineering*. London: Springer 2014, S. 1-29. ISBN: 978-1-4471-6547-7. (Green Energy and Technology). DOI: 10.1007/978-1-4471-6548-4\_1.

GUNDLACH 2004

Gundlach, C.: Entwicklung eines ganzheitlichen Vorgehensmodells zur problemorientierten Anwendung des statistischen Versuchsplanung. (Dissertation). Fachgebiet für Leichtbau-Konstruktion, Universität Kassel. Kassel (2004).

GÜNTER ET AL. 2020

Günter, F. J.; Rössler, S.; Schulz, M.; Braunwarth, W.; Gilles, R.; Reinhart, G.:

Influence of the Cell Format on the Electrolyte Filling Process of Lithium-Ion Cells. *Energy Technology* 8 (2020) 2, S. 1801108. DOI: 10.1002/ente.201801108.

GÜNTHER ET AL. 2016

Günther, T.; Billot, N.; Schuster, J.; Schnell, J.; Spingler, F. B.; Gasteiger, H. A.: The Manufacturing of Electrodes: Key Process for the Future Success of Lithium-Ion Batteries. *Advanced Materials Research* 1140 (2016), S. 304-311. DOI: 10.4028/www.scientific.net/AMR.1140.304.

GÜNTHER ET AL. 2020

Günther, T.; Schreiner, D.; Metkar, A.; Meyer, C.; Kwade, A.; Reinhart, G.: Classification of Calendering-Induced Electrode Defects and Their Influence on Subsequent Processes of Lithium-Ion Battery Production. *Energy Technology* 8 (2020) 2, S. 1900026. DOI: 10.1002/ente.201900026.

GUPTA ET AL. 2020

Gupta, P.; Üçel, İ. B.; Gudmundson, P.; Olsson, E.: Characterization of the Constitutive Behavior of a Cathode Active Layer in Lithium-Ion Batteries Using a Bending Test Method. *Experimental Mechanics* 60 (2020) 6, S. 847-860. DOI: 10.1007/s11340-020-00613-5.

GUTOFF ET AL. 2006

Gutoff, E. B.; Cohen, E. d.; Kheboian, G. I.: Coating and drying defects. Troubleshooting operating problems. ebrary, Inc. 2nd ed. Hoboken, N.J: Wiley-Interscience 2006. ISBN: 9780470044131. DOI: 10.1002/0470044136.

HABEDANK ET AL. 2019

Habedank, J. B.; Günter, F. J.; Billot, N.; Gilles, R.; Neuwirth, T.; Reinhart, G.; Zaeh, M. F.: Rapid electrolyte wetting of lithium-ion batteries containing laser structured electrodes: in situ visualization by neutron radiography. *The International Journal of Advanced Manufacturing Technology* 102 (2019) 9-12, S. 2769-2778. DOI: 10.1007/s00170-019-03347-4.

HABENICHT 2009

Habenicht, G.: Kleben. Grundlagen, Technologien, Anwendungen. 6. Aufl. Berlin, Heidelberg: Springer 2009. ISBN: 978-3-540-85264-3. DOI: 10.1007/978-3-540-85266-7.

HANKIN ET AL. 2000

Hankin, G. L.; Toloczko, M. B.; Johnson, K. I.; Khaleel, M. A.; Hamilton, M. L.; Garner, F. A.; Davies, R. W.; Faulkner, R. G.: An Investigation into the Origin and Nature of the Slope and x-axis Intercept of the Shear Punch-Tensile Yield Strength

---

Correlation using Finite Element Analysis. In: Hamilton, M. L. et al. (Hrsg.): Effects of Radiation on Materials: 19th International Symposium. West Conshohocken, PA: ASTM International 2000, S. 1018-1028. ISBN: 978-0-8031-5419-3. DOI: 10.1520/STP12448S.

HASELRIEDER ET AL. 2013

Haselrieder, W.; Ivanov, S.; Christen, D. K.; Bockholt, H.; Kwade, A.: Impact of the Calendering Process on the Interfacial Structure and the Related Electrochemical Performance of Secondary Lithium-Ion Batteries. ECS Transactions 50 (2013) 26, S. 59-70. DOI: 10.1149/05026.0059ecst.

HASELRIEDER ET AL. 2015

Haselrieder, W.; Westphal, B.; Bockholt, H.; Diener, A.; Höft, S.; Kwade, A.: Measuring the coating adhesion strength of electrodes for lithium-ion batteries. International Journal of Adhesion and Adhesives 60 (2015), S. 1-8. DOI: 10.1016/j.ijadhadh.2015.03.002.

HASELRIEDER 2016

Haselrieder, W.: Kalandrierung zur gezielten Einstellung der Batterieelektroden-Performance. (Dissertation). Institut für Partikeltechnik, Technische Universität Carolo-Wilhelmina Braunschweig. Braunschweig (2016).

HECKEL 1961

Heckel, R. W.: Density-Pressure Relationships in Powder Compaction. Transactions of the Metallurgical Society of AIME 221 (1961), S. 671-675.

HEMMING & WAGNER 2017

Hemming, W.; Wagner, W.: Verfahrenstechnik. 12., korrigierte Auflage. Würzburg: Vogel Business Media GmbH & Co. KG. 2017. ISBN: 978-3-8343-3412-1.

HERRMANN 1973

Herrmann, W.: Das Verdichten von Pulvern zwischen zwei Walzen. Einflussgrößen, theoret. Ansätze, Messmethoden, Auslegung von Walzenpressen ; Literaturbericht aus d. Inst. f. Mechan. Verfahrenstechnik d. Univ. Karlsruhe ; [mit 1 Tab.]. Weinheim (Bergstr.): Verlag Chemie 1973. ISBN: 3-527-25547-8.

HERTZ 1882

Hertz, H.: Ueber die Berührung fester elastischer Körper. Journal für die reine und angewandte Mathematik (Crelle's Journal) 1882 (1882) 92, S. 156-171. DOI: 10.1515/crll.1882.92.156.

HETTESHEIMER ET AL. 06.2013

Hettesheimer, T.; Hummen, T.; Marscheider-Weidemann, F.; Schröter, M.; Lerch,

C.; Stahlberger; Heussler, A.: Energiespeicher Monitoring für die Elektromobilität (EMOTOR). Karlsruhe 06.2013.

HINNEMANN 2018

Hinnemann, M.: Untersuchungen des Spannungs- und Deformationszustandes großer Stütz- und Arbeitswalzen unter betriebsnahen Belastungen. (Dissertation). Abteilung Maschinenbau und Verfahrenstechnik, Universität Duisburg-Essen. Duisburg-Essen (2018).

HIRT & OLIGSCHLÄGER 2012a

Hirt, G.; Oligschläger, M.: Längswalzen von Flachprodukten. In: Hoffmann, H. et al. (Hrsg.): Handbuch Umformen. [2., vollst. neu bearb. Aufl.] Aufl. [s.l.]: Carl Hanser Fachbuchverlag 2012, S. 118-123. ISBN: 978-3-446-43004-4. (Edition Handbuch der Fertigungstechnik).

HIRT & OLIGSCHLÄGER 2012b

Hirt, G.; Oligschläger, M.: Übersicht über die Walzverfahren. In: Hoffmann, H. et al. (Hrsg.): Handbuch Umformen. [2., vollst. neu bearb. Aufl.] Aufl. [s.l.]: Carl Hanser Fachbuchverlag 2012. ISBN: 978-3-446-43004-4. (Edition Handbuch der Fertigungstechnik).

HOCHHEIMER 2011

Hochheimer, N.: Das kleine QM-Lexikon. Begriffe des Qualitätsmanagements aus GLP, GCP, GMP und EN ISO 9000. 2. Aufl. Weinheim: Wiley-VCH 2011. ISBN: 978-3-527-33076-8.

HORNBOGEN ET AL. 2017

Hornbogen, E.; Eggeler, G.; Werner, E.: Werkstoffe. Berlin, Heidelberg: Springer 2017. ISBN: 978-3-642-53866-7. DOI: 10.1007/978-3-642-53867-4.

HUBER 21.03.2017

Huber, J.: Verfahren zur Klassifikation von Ungängen bei der optischen Prüfung von Batterieseparatoren. (Dissertation) Technische Universität München. München (21.03.2017).

HUTTNER ET AL. 2021

Huttner, F.; Diener, A.; Heckmann, T.; Eser, J. C.; Abali, T.; Mayer, J. K.; Scharfer, P.; Schabel, W.; Kwade, Arno: Increased Moisture Uptake of NCM622 Cathodes after Calendering due to Particle Breakage. Journal of The Electrochemical Society 168 (2021) 9, S. 90539. DOI: 10.1149/1945-7111/ac24bb.

HYAMS ET AL. 2007

Hyams, T. C.; Go, J.; Devine, T. M.: Corrosion of Aluminum Current Collectors in

---

High-Power Lithium-Ion Batteries for Use in Hybrid Electric Vehicles. *Journal of The Electrochemical Society* 154 (2007) 8, C390. DOI: 10.1149/1.2742321.

IG METALL 2018: ERA – Monatsentgelte. Metall- und Elektroindustrie.

<<https://www.igmetall.de/tarif/tariftabellen/wie-viel-gibt-es>> - 08.11.2021.

Standard IEEE 1725:2011

Institute of Electrical and Electronics Engineers Standards Association IEEE 1725:2011, 1725:2011: IEEE Standard for Rechargeable Batteries for Cellular Telephones. [S.l.]: Institute of Electrical and Electronics Engineers, Inc. 06.10.2011.

IPCC 2021

IPCC: Climate Change 2021: The Physical Science Basis. Cambridge University Press 2021.

IVANOV ET AL. 2005

Ivanov, V.; Kelder, E. M.; Schoonman, J.; Nikonov, A. V.; Pivkin, N. M.; Kaygorodov, A.; Ivanova, O. F.; Medvedev, A. I.: Influence of Dynamic Compaction on Structure and Mechanical Strength of Composite Spinel-Based ( $\text{LiMn}_2\text{O}_4$ ,  $\text{Li}_4\text{Ti}_5\text{O}_{12}$ ) Foil Electrodes. *Materials Science Forum* 492-493 (2005), S. 129-134. DOI: 10.4028/www.scientific.net/MSF.492-493.129.

JAISER ET AL. 2016

Jaiser, S.; Müller, M.; Baunach, M.; Bauer, W.; Scharfer, P.; Schabel, W.: Investigation of film solidification and binder migration during drying of Li-Ion battery anodes. *Journal of Power Sources* 318 (2016), S. 210-219. DOI: 10.1016/j.jpowsour.2016.04.018.

JEONG ET AL. 2009-04-21

Schutzrecht. US US8461496B2 (11.06.2013). Samsung SDI Co., Ltd., Yongin-Si, Gyeonggi-Do (KR); Robert Bosch GmbH, Stuttgart (DE) Pr.: KR10-2009-00347372009-04-21 Jeong, D.; Hashimoto, T.; Lee, W.: Induction heating device for battery electrode.

JEONG & LEE 2014

Jeong, D.; Lee, J.: Electrode design optimization of lithium secondary batteries to enhance adhesion and deformation capabilities. *Energy* 75 (2014), S. 525-533. DOI: 10.1016/j.energy.2014.08.013.

JONNALAGADDA ET AL. 2010

Jonnalagadda, K. N.; Chasiotis, I.; Yagnamurthy, S.; Lambros, J.; Pulskamp, J.; Polcawich, R.; Dubey, M.: Experimental Investigation of Strain Rate Dependence

of Nanocrystalline Pt Films. *Experimental Mechanics* 50 (2010) 1, S. 25-35. DOI: 10.1007/s11340-008-9212-7.

JOSSEN & WEYDANZ 2019

Jossen, A.; Weydanz, W.: *Moderne Akkumulatoren richtig einsetzen*. 2. überarbeitete Auflage 2019. ISBN: 3736999453.

JULIEN ET AL. 2016

Julien, C.; Mauger, A.; Vijh, A.; Zaghbi, K.: *Technology of the Li-Ion Batteries*. In: Julien, C. et al. (Hrsg.): *Lithium Batteries*. Cham: Springer International Publishing 2016, S. 585-603. ISBN: 978-3-319-19107-2. DOI: 10.1007/978-3-319-19108-9\_15.

JUNG ET AL. 2018

Jung, R.; Morasch, R.; Karayaylali, P.; Phillips, K.; Maglia, F.; Stinner, C.; Shao-Horn, Y.; Gasteiger, H. A.: *Effect of Ambient Storage on the Degradation of Ni-Rich Positive Electrode Materials (NMC811) for Li-Ion Batteries*. *Journal of The Electrochemical Society* 165 (2018) 2, A132-A141. DOI: 10.1149/2.0401802jes.

JUST ET AL. 2016

Just, P.; Rost, J.; Echelmeyer, T.; Ebert, L.; Roscher, M. A.: *A method to quantify coating thickness and porosity of electrodes for lithium-ion-batteries*. *Measurement* 89 (2016), S. 312-315. DOI: 10.1016/j.measurement.2016.04.001.

KAISER 2006

Kaiser, W.: *Kunststoffchemie für Ingenieure*. München: Hanser 2006. ISBN: 3-446-22069-0.

KAISER ET AL. 2014

Kaiser, J.; Wenzel, V.; Nirschl, H.; Bitsch, B.; Willenbacher, N.; Baunach, M.; Schmitt, M.; Jaiser, S.; Scharfer, Philip; Schabel, Wilhelm: *Prozess- und Produktentwicklung von Elektroden für Li-Ionen-Zellen*. *Chemie Ingenieur Technik* 86 (2014) 5, S. 695-706. DOI: 10.1002/cite.201300085.

KALB ET AL. 1995

Kalb, H.; Bacher, W.; Harmening, M.; Ruprecht, R.: *Grundlegende Untersuchungen zur Fertigung gestufter Mikrostrukturen aus fluorierten Polymeren nach dem LIGA-Verfahren*. 1995. DOI: 10.5445/IR/200037410.

KAMPKER 2014

Kampker, A.: *Elektromobilproduktion*. Berlin, Heidelberg: Springer 2014. ISBN: 978-3-642-42021-4. DOI: 10.1007/978-3-642-42022-1.



---

KANG ET AL. 2017

Kang, H.; Lim, C.; Li, T.; Fu, Y.; Yan, B.; Houston, N.; Andrade, V. de; Carlo, F. de; Zhu, Likun: Geometric and Electrochemical Characteristics of LiNi<sub>1/3</sub>Mn<sub>1/3</sub>Co<sub>1/3</sub>O<sub>2</sub> Electrode with Different Calendering Conditions. *Electrochimica Acta* 232 (2017), S. 431-438. DOI: 10.1016/j.electacta.2017.02.151.

KARMASIN & RIBING 2019

Karmasin, M.; Ribing, R.: Die Gestaltung wissenschaftlicher Arbeiten. Ein Leitfaden für Facharbeit/VWA, Seminararbeiten, Bachelor-, Master-, Magister- und Diplomarbeiten sowie Dissertationen. 10. überarb. u. aktual. Aufl. Wien: facultas 2019. ISBN: 978-3-8385-5313-9.

KEFERSTEIN ET AL. 2018

Keferstein, Claus P.; Marxer, Michael; Bach, Carlo (Hrsg.): Fertigungsmesstechnik. Wiesbaden: Springer Fachmedien Wiesbaden 2018. ISBN: 978-3-658-17755-3.

KEPPELER ET AL. 2020

Keppeler, M.; Roessler, S.; Braunwarth, W.: Production Research as Key Factor for Successful Establishment of Battery Production on the Example of Large-Scale Automotive Cells Containing Nickel-Rich LiNi<sub>0.8</sub> Mn<sub>0.1</sub> Co<sub>0.1</sub> O<sub>2</sub> Electrodes. *Energy Technology* 8 (2020) 6, S. 2000183. DOI: 10.1002/ente.202000183.

KESSLER 2006

Kessler, R. W.: Strategien für wissensbasierte Produkte und Verfahren. In: Kessler, R. W. (Hrsg.): Prozessanalytik. Strategien und Fallbeispiele aus der industriellen Praxis. Weinheim: Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA 2006, S. 3-23. ISBN: 3-527-31196-3.

KIM ET AL. 2019

Kim, T.; Song, W.; Son, D.-Y.; Ono, L. K.; Qi, Y.: Lithium-ion batteries: outlook on present, future, and hybridized technologies. *Journal of Materials Chemistry A* 7 (2019) 7, S. 2942-2964. DOI: 10.1039/C8TA10513H.

KLEIN 2014

Klein, B.: Versuchsplanung - DoE. Einführung in die Taguchi/Shainin-Methodik. 4. Aufl. Berlin: De Gruyter 2014. ISBN: 978-3-11-034384-7. DOI: 10.1524/9783110343847.

KLEPPMANN 2016

Kleppmann, W.: Versuchsplanung. München: Carl Hanser Verlag GmbH & Co. KG 2016. ISBN: 978-3-446-44716-5. DOI: 10.3139/9783446447172.

KNORR & WAUER 1992-10-28

Schutzrecht. Deutschland DE4236436A1 (07.07.1994). MESYS GmbH Pr.: 1992-10-28 Knorr, H.; Wauer, L.: Meßverfahren zur berührungslosen Bestimmung des Flächengewichtes von dünnem Material mittels Ultraschall.

KOEHLER 2018

Koehler, U.: Lithium-ion battery system design. In: Korthauer, R. (Hrsg.): Lithium-Ion Batteries: Basics and Applications. Berlin, Heidelberg: Springer 2018, S. 89-100. ISBN: 978-3-662-53069-6. DOI: 10.1007/978-3-662-53071-9\_8.

KOHLERT 2014

Kohlert, C.: Herstellung kalandrierter Folien. In: Bühring-Polaczek, A. et al. (Hrsg.): Handbuch Urformen. [vollst. überarb. Neuaufl.] Aufl. München: Hanser 2014. ISBN: 978-3-446-42035-9. (Edition Handbuch der Fertigungstechnik).

KOPSCH 1978

Kopsch, H.: Kalandertechnik. München: Hanser 1978. ISBN: 3-446-12395-4.

KOTHARI 2004

Kothari, C. R.: Research Methodology. Methods and Techniques. 2. Aufl. New Dehli: NEW AGE INTERNATIONAL (P) LIMITED, PUBLISHERS 2004. ISBN: 978-81-224-2488-1.

KRAFTFAHRT-BUNDESAMT 2020: Jahresbilanz Neuzulassungen.

<[https://www.kba.de/DE/Statistik/Fahrzeuge/Neuzulassungen/Jahresbilanz\\_Neuzulassungen/jahresbilanz\\_node.html](https://www.kba.de/DE/Statistik/Fahrzeuge/Neuzulassungen/Jahresbilanz_Neuzulassungen/jahresbilanz_node.html)> - 09.11.2021.

KRÄMER ET AL. 2008

Krämer, W.; Schoffer, O.; Tschiersch, L.: Datenanalyse mit SAS. Statistische Verfahren und ihre grafischen Aspekte. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg 2008. ISBN: 978-3-540-73600-4. DOI: 10.1007/978-3-540-73601-1.

KRAYTSBERG & EIN-ELI 2016

Kraytsberg, A.; Ein-Eli, Y.: Conveying Advanced Li-ion Battery Materials into Practice The Impact of Electrode Slurry Preparation Skills. Advanced Energy Materials 6 (2016) 21, S. 1600655. DOI: 10.1002/aenm.201600655.

KURFER ET AL. 2012

Kurfer, J.; Westermeier, M.; Reinhart, G.: Cell stacking process of high-energy lithium-ion cells. In: Hu, S. J. (Hrsg.): Technologies and Systems for Assembly Quality, Productivity and Customization, Proceedings of the 4th CIRP Conference on Assembly Technologies and Systems. Ann Arbor, Michigan, USA, May 20-22, 2012 2012, S. 33-37. ISBN: 978-0-615-64022-8.

---

KURZWEIL & DIETLMEIER 2015

Kurzweil, P.; Dietlmeier, O. K.: Elektrochemische Speicher. Wiesbaden: Springer Fachmedien 2015. ISBN: 978-3-658-10899-1. DOI: 10.1007/978-3-658-10900-4.

KWADE ET AL. 2018

Kwade, A.; Haselrieder, W.; Leithoff, R.; Modlinger, A.; Dietrich, F.; Droeder, K.: Current status and challenges for automotive battery production technologies. *Nature Energy* 3 (2018) 4, S. 290-300. DOI: 10.1038/s41560-018-0130-3.

LANGE 1988

Lange, Kurt (Hrsg.): *Massivumformung*. 2. Aufl. Berlin: Springer 1988. ISBN: 978-3-662-10688-4. (Umformtechnik 2).

LANGE ET AL. 1988

Lange, K.; Oberlander, T.; Kurz N.: Walzen. In: Lange, K. (Hrsg.): *Massivumformung*. 2 Aufl. Berlin: Springer 1988, S. 178-253. ISBN: 978-3-662-10688-4. (Umformtechnik 2).

LEE & JEON 2014

Lee, S. G.; Jeon, D. H.: Effect of electrode compression on the wettability of lithium-ion batteries. *Journal of Power Sources* 265 (2014), S. 363-369. DOI: 10.1016/j.jpowsour.2014.04.127.

LEUTHNER 2018

Leuthner, S.: Lithium-ion battery overview. In: Korthauer, R. (Hrsg.): *Lithium-Ion Batteries: Basics and Applications*. Berlin, Heidelberg: Springer 2018, S. 13-19. ISBN: 978-3-662-53069-6. DOI: 10.1007/978-3-662-53071-9\_2.

LI ET AL. 2008

Li, J.; Christensen, L.; Obrovac, M. N.; Hewitt, K. C.; Dahn, J. R.: Effect of Heat Treatment on Si Electrodes Using Polyvinylidene Fluoride Binder. *Journal of Power Sources* 155 (2008) 3, A234. DOI: 10.1149/1.2830545.

LI ET AL. 2011a

Li, J.; Daniel, C.; Wood, D. L.: Cathode Manufacturing for Lithium-Ion Batteries. In: Daniel, C. et al. (Hrsg.): *Handbook of Battery Materials*. Weinheim, Germany: Wiley-VCH 2011, S. 939-960. ISBN: 978-3-527-63718-8. DOI: 10.1002/9783527637188.ch28.

LI ET AL. 2011b

Li, J.; Daniel, C.; Wood, D.: Materials processing for lithium-ion batteries. *Journal of Power Sources* 196 (2011) 5, S. 2452-2460. DOI: 10.1016/j.jpowsour.2010.11.001.

LINDEMANN 2009

Lindemann, U.: Methodische Entwicklung technischer Produkte. Berlin, Heidelberg: Springer 2009. ISBN: 978-3-642-01422-2. DOI: 10.1007/978-3-642-01423-9.

LINDEN ET AL. 2019

Linden, D.; Reddy, T. B.; Beard, K. W.: Chapter 1: Electricity, Electrochemistry, and Batteries: Prologue and Exposition. In: Beard, K. W. et al. (Hrsg.): Linden's Handbook of batteries. Fifth edition Aufl. New York: McGraw-Hill Education 2019, S. 3-21. ISBN: 978-1-260-11592-5.

LINß 2014

Linß, G.: Prüfplanung. In: Pfeifer, T. et al. (Hrsg.): Masing Handbuch Qualitätsmanagement. 6 Aufl. München, Wien: Carl Hanser Verlag 2014. ISBN: 978-3-446-43992-4.

LIU ET AL. 2005

Liu, W.-R.; Yang, M.-H.; Wu, H.-C.; Chiao, S. M.; Wu, N.-L.: Enhanced Cycle Life of Si Anode for Li-Ion Batteries by Using Modified Elastomeric Binder. Journal of The Electrochemical Society 8 (2005) 2, A100. DOI: 10.1149/1.1847685.

LOGES 2009

Loges, F.: Entwicklung neuer Strategien zur Messung und Regelung der Bandplanheit beim Flachwalzen. Kassel: Kassel University Press 2009. ISBN: 978-3-89958-755-5. (Berichte zur Metallformgebung Bd. 1).

LUCAS ET AL. 1986

Lucas, G. E.; Odette, G. R.; Sheckherd, I. W.: Shear Punch and MScrohardness Tests for Strength and Ductility Measurements. In: Corwin, W. R. et al. (Hrsg.): The Use of Small-Scale Specimens for Testing Irradiated Material. 100 Barr Harbor Drive, PO Box C700, West Conshohocken, PA 19428-2959: ASTM International 1986, S. 112-140. ISBN: 978-0-8031-0440-2.

LUM 2011

Lum, S. K.: Viscoelastic models. In: Celik, M. (Hrsg.): Pharmaceutical powder compaction technology. 2nd ed. Aufl. New York: Informa Healthcare 2011, S. 9-27. ISBN: 978-1-4200-8917-2. (Drugs and the pharmaceutical sciences v. 197).

MANEV ET AL. 1995

Manev, V.; Naidenov, I.; Puresheva, B.; Pistoia, G.: Effect of electrode porosity on

---

the performance of natural Brazilian graphite electrodes. *Journal of Power Sources* 57 (1995) 1-2, S. 133-136. DOI: 10.1016/0378-7753(95)02268-6.

MARKS ET AL. 2011

Marks, T.; Trussler, S.; Smith, A. J.; Xiong, D.; Dahn, J. R.: A Guide to Li-Ion Coin-Cell Electrode Making for Academic Researchers. *Journal of The Electrochemical Society* 158 (2011) 1, A51. DOI: 10.1149/1.3515072.

MASOUDPANAH ET AL. 2011

Masoudpanah, S. M.; Mahmudi, R.; Langdon, T. G.: Correlation between shear punch and tensile measurements for an AZ31 Mg alloy processed by equal-channel angular pressing. *Kovove Materialy - Metallic Materials* 49 (2011) 1, S. 43-50. DOI: 10.4149/km\_2011\_1\_43.

MATSUKI & OZAWA 2009

Matsuki, K.; Ozawa, K.: General Concepts. In: Ozawa, K. (Hrsg.): *Lithium Ion Rechargeable Batteries*. Weinheim, Germany: Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA 2009, S. 1-9. ISBN: 9783527629022. DOI: 10.1002/9783527629022.ch1.

MAYER 2013

Mayer, H. O.: *Interview und schriftliche Befragung. Grundlagen und Methoden empirischer Sozialforschung*. 6., überarb. Aufl. München: Oldenbourg 2013. ISBN: 9783486706918. (Sozialwissenschaften 10-2012). DOI: 10.1524/9783486717624.

MAYER ET AL. 2021

Mayer, D.; Wurba, A.-K.; Bold, B.; Bernecker, J.; Smith, A.; Fleischer, J.: Investigation of the Mechanical Behavior of Electrodes after Calendering and Its Influence on Singulation and Cell Performance. *Processes* 9 (2021) 11, S. 2009. DOI: 10.3390/pr9112009.

MERKLEIN 2012

Merklein, M.: Fließkurven. In: Hoffmann, H. et al. (Hrsg.): *Handbuch Umformen*. [2., vollst. neu bearb. Aufl.] Aufl. [s.l.]: Carl Hanser Fachbuchverlag 2012, S. 66-76. ISBN: 978-3-446-43004-4. (Edition Handbuch der Fertigungstechnik).

MEYER ET AL. 2017

Meyer, C.; Bockholt, H.; Haselrieder, W.; Kwade, A.: Characterization of the calendering process for compaction of electrodes for lithium-ion batteries. *Journal of Materials Processing Technology* 249 (2017), S. 172-178. DOI: 10.1016/j.jmatprotec.2017.05.031.

MEYER ET AL. 2018

Meyer, C.; Kosfeld, M.; Haselrieder, W.; Kwade, A.: Process modeling of the electrode calendaring of lithium-ion batteries regarding variation of cathode active materials and mass loadings. *Journal of Energy Storage* 18 (2018), S. 371-379. DOI: 10.1016/j.est.2018.05.018.

MEYER 2019

Meyer, C.: Prozessmodellierung der Kalandrierung von Lithium-Ionen-Batterie-Elektroden. (Dissertation). Institut für Partikeltechnik, Technische Universität Carolo-Wilhelmina Braunschweig. Braunschweig (2019).

MEYER ET AL. 2020

Meyer, C.; Weyhe, M.; Haselrieder, W.; Kwade, A.: Heated Calendaring of Cathodes for Lithium-Ion Batteries with Varied Carbon Black and Binder Contents. *Energy Technology* 8 (2020) 2, S. 1900175. DOI: 10.1002/ente.201900175.

MICHAELIS ET AL. 2018

Michaelis, S.; Rahimzei Ehsan; Abraham, L.; Zienow, J.: Roadmap Batterie-Produktionsmittel 2030. Frankfurt am Main 2018.

MILLER 2010

Miller, R. W.: Roller Compaction Technology. In: Parikh, D. M. (Hrsg.): Handbook of pharmaceutical granulation technology. 3th ed. Aufl. New York: Informa Healthcare 2010. ISBN: 978-1-61631-003-5. (Drugs and the pharmaceutical sciences vol. 198).

MOHAMED 2012

Mohamed, M. A.: Swelling characteristics and application of gamma-radiation on irradiated SBR-carboxymethylcellulose (CMC) blends. *Arabian Journal of Chemistry* 5 (2012) 2, S. 207-211. DOI: 10.1016/j.arabjc.2010.08.014.

MOHANTY ET AL. 2014

Mohanty, D.; Li, J.; Born, R.; Maxey, L. C.; Dinwiddie, R. B.; Daniel, C.; Wood, I. D.: Non-destructive evaluation of slot-die-coated lithium secondary battery electrodes by in-line laser caliper and IR thermography methods. *Anal. Methods* 6 (2014) 3, S. 674-683. DOI: 10.1039/C3AY41140K.

MORASCH ET AL. 2018

Morasch, R.; Landesfeind, J.; Suthar, B.; Gasteiger, H. A.: Detection of Binder Gradients Using Impedance Spectroscopy and Their Influence on the Tortuosity of Li-Ion Battery Graphite Electrodes. *Journal of The Electrochemical Society* 165 (2018) 14, A3459-A3467. DOI: 10.1149/2.1021814jes.

---

MÜCKE ET AL. 2002

Mücke, G.; Karhausen, K. F.; Pütz, P.-D.: Umformtechnik - Formabweichungen in Bändern: Einteilung, Entstehung, Messung und Beseitigung sowie quantitative Bewertungsmethoden. Stahl und Eisen 122 (2002) 2, S. 33-39.

MÜLLER 2006

Müller, B.: Robuste, automatisierte Montagesysteme durch adaptive Prozessführung und montageübergreifende Fehlerprävention am Beispiel flächiger Leichtbauteile. (Dissertation). Lehrstuhl für Fertigungsautomatisierung und Produktionssystematik, Friedrich-Alexander-Universität Erlangen-Nürnberg. Erlangen-Nürnberg (2006). DOI: 10.25593/3-87525-240-3.

NAGAI 2009

Nagai, A.: Applications of Polyvinylidene Fluoride-related materials for Lithium-Ion Batteries. In: Yoshio, M. et al. (Hrsg.): Lithium-Ion Batteries. New York, NY: Springer 2009, S. 1-7. ISBN: 978-0-387-34444-7. DOI: 10.1007/978-0-387-34445-4\_6.

NATIONALE PLATTFORM ZUKUNFT DER MOBILITÄT Oktober 2021

Nationale Plattform Zukunft der Mobilität: Kundenakzeptanz als Schlüssel für den Markthochlauf der Elektromobilität. Oktober 2021.

NELSON ET AL. 2019

Nelson, P. A.; Ahmed, S.; Gallagher, K. G.; Dees, D. W.: Modeling the Performance and Cost of Lithium-Ion Batteries for Electric-Drive Vehicles. United States 2019. DOI: 10.2172/1503280.

NEUSCHÜTZ 1987

Neuschütz, E.: Planheitsmessung und -regelung beim Warm- und Kaltwalzen von Bändern: Grundlagen. In: Galla H. et al. (Hrsg.): Walzen von Flachprodukten. Oberursel: DGM 1987. ISBN: 3883551236.

NOEL & SURYANARAYANAN 2002

Noel, M.; Suryanarayanan, V.: Role of carbon host lattices in Li-ion intercalation/de-intercalation processes. Journal of Power Sources 111 (2002) 2, S. 193-209. DOI: 10.1016/S0378-7753(02)00308-7.

NOELLE ET AL. 2018

Noelle, D. J.; Wang, M.; Qiao, Y.: Improved safety and mechanical characterizations of thick lithium-ion battery electrodes structured with porous metal current collectors. Journal of Power Sources 399 (2018), S. 125-132. DOI: 10.1016/j.jpowsour.2018.07.076.

NYSTRÖM & KAREHILL 1996

Nyström, C.; Karehill, P.-G.: Interparticulate Bonding Characteristics of Pharmaceutical Compacts. In: Alderborn, G. et al. (Hrsg.): Pharmaceutical powder compaction technology. New York, Basel, Hong Kong: M. Dekker 1996, S. 17-53. ISBN: 0-8247-9376-5. (Drugs and the pharmaceutical sciences 71).

OLADIMEJI ET AL. 2016

Oladimeji, C. F.; Moss, P. L.; Weatherspoon, M. H.: Analyses of the Calendaring Process for Performance Optimization of Li-Ion Battery Cathode. *Advances in Chemistry* 2016 (2016) 3, S. 1-7. DOI: 10.1155/2016/7395060.

OLIVER & PHARR 1992

Oliver, W. C.; Pharr, G. M.: An improved technique for determining hardness and elastic modulus using load and displacement sensing indentation experiments. *Journal of Materials Research* 7 (1992) 6, S. 1564-1583. DOI: 10.1557/JMR.1992.1564.

PARK ET AL. 2011

Park, H.-K.; Kong, B.-S.; Oh, E.-S.: Effect of high adhesive polyvinyl alcohol binder on the anodes of lithium ion batteries. *Electrochemistry Communications* 13 (2011) 10, S. 1051-1053. DOI: 10.1016/j.elecom.2011.06.034.

PARRY & TABOR 1973

Parry, E.J.; Tabor, D.: Effect of hydrostatic pressure and temperature on the mechanical loss properties of polymers: 2. Halogen polymers. *Polymer* 14 (1973) 12, S. 623-627. DOI: 10.1016/0032-3861(73)90036-0.

PETTINGER 2013

Pettinger, K.-H.: Fertigungsprozesse von Lithium-Ionen-Zellen. In: Korthauer, R. (Hrsg.): *Handbuch Lithium-Ionen-Batterien*. Berlin, Heidelberg: Springer 2013, S. 221-235. ISBN: 978-3-642-30652-5. DOI: 10.1007/978-3-642-30653-2\_17.

PETTINGER ET AL. 2018

Pettinger, K.-H.; Kampker, A.; Hohenthanner, C.-R.; Deutskens, C.; Heimes, H.; Vom Hemdt, A.: Lithium-ion cell and battery production processes. In: Korthauer, R. (Hrsg.): *Lithium-Ion Batteries: Basics and Applications*. Berlin, Heidelberg: Springer 2018, S. 211-226. ISBN: 978-3-662-53069-6. DOI: 10.1007/978-3-662-53071-9\_17.

PIETSCH 1987

Pietsch, W.: *Roll pressing*. 2. Aufl. London 1987. ISBN: 0-85501-175-0.



---

PINKWART & TÜBKE 2011

Pinkwart, K.; Tübke, J.: Thermodynamics and Mechanistics. In: Daniel, C. et al. (Hrsg.): Handbook of Battery Materials. Weinheim, Germany: Wiley-VCH 2011, S. 1-26. ISBN: 978-3-527-63718-8. DOI: 10.1002/9783527637188.ch1.

PRIBAT 2015

Pribat, D.: Alloy-Based Anode Materials. In: Zhang, Z. et al. (Hrsg.): Rechargeable Batteries. Cham: Springer International Publishing 2015, S. 189-229. ISBN: 978-3-319-15457-2. DOI: 10.1007/978-3-319-15458-9\_7.

PRIMO ET AL. 2021a

Primo, E. N.; Touzin, M.; Franco, A. A.: Calendering of Li(Ni<sub>0.33</sub> Mn<sub>0.33</sub> Co<sub>0.33</sub>)O<sub>2</sub>-Based Cathodes: Analyzing the Link Between Process Parameters and Electrode Properties by Advanced Statistics. Batteries & Supercaps 4 (2021) 5, S. 834-844. DOI: 10.1002/batt.202000324.

PRIMO ET AL. 2021b

Primo, E. N.; Chouchane, M.; Touzin, M.; Vazquez, P.; Franco, A. A.: Understanding the calendering processability of Li(Ni<sub>0.33</sub>Mn<sub>0.33</sub>Co<sub>0.33</sub>)O<sub>2</sub>-based cathodes. Journal of Power Sources 488 (2021), S. 229361. DOI: 10.1016/j.jpowsour.2020.229361.

QI & HARRIS 2010

Qi, Y.; Harris, S. J.: In Situ Observation of Strains during Lithiation of a Graphite Electrode. Journal of The Electrochemical Society 157 (2010) 6, A741. DOI: 10.1149/1.3377130.

QU ET AL. 2012

Qu, M.; Woodford, W. H.; Maloney, J. M.; Carter, W. C.; Chiang, Y.-M.; van Vliet, K. J.: Nanomechanical Quantification of Elastic, Plastic, and Fracture Properties of LiCoO<sub>2</sub>. Advanced Energy Materials 2 (2012) 8, S. 940-944. DOI: 10.1002/aenm.201200107.

QUIRK 2015

Quirk, T. J.: Excel 2013 for Engineering Statistics. Cham: Springer International Publishing 2015. ISBN: 978-3-319-23554-7. DOI: 10.1007/978-3-319-23555-4.

RAUSCHER 2014

Rauscher, S.: Einfluss von Material- und Beschichtungsparametern auf die Elektrodenmorphologie und die Leistungsparameter von Lithiumionen-Zellen. (Dissertation)Universität Ulm. Ulm (2014).

REINHART ET AL. 1996

Reinhart, G.; Lindemann, U.; Heinzl, J.: Qualitätsmanagement. Berlin, Heidelberg: Springer 1996. ISBN: 978-3-540-61078-6. DOI: 10.1007/978-3-642-80210-2.

REINHART ET AL. 2013

Reinhart, G.; Zeilinger, T.; Kurfer, J.; Westermeier, M.; Thiemann, C.; Glonegger, M.; Wunderer, M.; Tammer, C.; Schweier, M.; Heinz, M.: Research and Demonstration Center for the Production of Large-Area Lithium-Ion Cells. In: Schuh, G. et al. (Hrsg.): Future Trends in Production Engineering. Berlin, Heidelberg: Springer 2013, S. 3-12. ISBN: 978-3-642-24490-2. DOI: 10.1007/978-3-642-24491-9\_1.

REINHART ET AL. 2014

Reinhart, G.; Kurfer, J.; Westermeier, M.; Zeilinger, T.: Integrated Product and Process Model for Production System Design and Quality Assurance for EV Battery Cells. Advanced Materials Research 907 (2014), S. 365-378. DOI: 10.4028/www.scientific.net/AMR.907.365.

REUMANN 2000

Reumann, R.-D.: Prüfverfahren in der Textil- und Bekleidungstechnik. Berlin, Heidelberg: Springer 2000. ISBN: 978-3-642-63033-0. DOI: 10.1007/978-3-642-57073-5.

RIEST 1999

Riest, K.: Eine Konstruktionsumgebung für integriertes Gestalten und Berechnen am Beispiel von Kalandern. Als Ms. gedr. Düsseldorf: VDI-Verl. 1999. ISBN: 3-18-359903-1. (Fortschrittberichte VDI : Reihe 3, Verfahrenstechnik Nr. 599).

RIPHAUS ET AL. 2018

Riphaus, N.; Strobl, P.; Stiaszny, B.; Zinkevich, T.; Yavuz, M.; Schnell, J.; Indris, S.; Gasteiger, H. A.; Sedlmaier, Stefan J.: Slurry-Based Processing of Solid Electrolytes: A Comparative Binder Study. Journal of The Electrochemical Society 165 (2018) 16, A3993-A3999. DOI: 10.1149/2.0961816jes.

ROPOHL 2009

Ropohl, G.: Allgemeine Technologie. Eine Systemtheorie der Technik. 3. Aufl. Karlsruhe: Universitätsverlag Karlsruhe 2009. ISBN: 978-3-86644-374-7.

RÖTH ET AL. 2013

Röth, T.; Kampker, A.; Reigen, U.; Hameyer, K.; Doncker, R. W. de; Stolze, T.; Vetter, A.; Hagedorn, J.; Sauer, Dirk Uwe; Müller, Dirk: Entwicklung von elektrofahrzeugspezifischen Systemen. In: Kampker, A. et al. (Hrsg.):

---

Elektromobilität. Berlin, Heidelberg: Springer 2013, S. 235-334. ISBN: 978-3-642-31985-3. DOI: 10.1007/978-3-642-31986-0\_6.

RÖTHEMEYER & SOMMER 2013

Röthemeyer, F.; Sommer, F.: Kautschuktechnologie: Werkstoffe - Verarbeitung - Produkte: Carl Hanser Verlag GmbH & Company KG 2013. ISBN: 9783446437609.

RÖTZER 2003

Rötzer, A.: Die Einteilung der Wissenschaften. (Dissertation). Philosophische Fakultät, Universität Passau. Passau (2003).

RYOU ET AL. 2013

Ryou, M.-H.; Kim, J.; Lee, I.; Kim, S.; Jeong, Y. K.; Hong, S.; Ryu, J. H.; Kim, T.-S.; Park, Jung-Ki; Lee, Haeshin; Choi, Jang Wook: Mussel-inspired adhesive binders for high-performance silicon nanoparticle anodes in lithium-ion batteries. *Advanced materials* (Deerfield Beach, Fla.) 25 (2013) 11, S. 1571-1576. DOI: 10.1002/adma.201203981.

SANTEE ET AL. 2014

Santee, S. G.; Ravdel, B.; Gulbinska, M. K.; Gnanaraj, J. S.; DiCarlo, J. F.: Optimizing Electrodes for Lithium-ion Cells. In: Gulbinska, M. K. (Hrsg.): *Lithium-ion Battery Materials and Engineering*. London: Springer 2014, S. 63-88. ISBN: 978-1-4471-6547-7. (Green Energy and Technology). DOI: 10.1007/978-1-4471-6548-4\_3.

SCHEFFLER 1997

Scheffler, E.: *Statistische Versuchsplanung und -auswertung. Eine Einführung für Praktiker*; 186 Tabellen. 3., neu bearb. und erw. Aufl. Stuttgart: Dt. Verl. für Grundstoffindustrie 1997. ISBN: 3342003669.

SCHIEBOLD 2015

Schiebold, K.: *Zerstörungsfreie Werkstoffprüfung - Sichtprüfung*. Berlin, Heidelberg: Springer 2015. ISBN: 978-3-662-44666-9. DOI: 10.1007/978-3-662-44667-6.

SCHILCHER ET AL. 2016

Schilcher, C.; Meyer, C.; Kwade, A.: Structural and Electrochemical Properties of Calendered Lithium Manganese Oxide Cathodes. *Energy Technology* 4 (2016) 12, S. 1604-1610. DOI: 10.1002/ente.201600130.

SCHILLING ET AL. 2016

Schilling, A.; Schmitt, J.; Dietrich, F.; Dröder, K.: Analyzing Bending Stresses on

Lithium-Ion Battery Cathodes induced by the Assembly Process. *Energy Technology* 4 (2016) 12, S. 1502-1508. DOI: 10.1002/ente.201600131.

SCHMIDTCHEN & KAWALLA 2017

Schmidtchen, M.; Kawalla, R.: Haftfestigkeit und Stofffluss beim Walzplattieren sowie Walzen von Werkstoffverbunden - Theorie und Experiment. In: Bauer, H. G. et al. (Hrsg.): *Walzen von Flachprodukten*. Berlin, Heidelberg: Springer 2017, S. 87-123. ISBN: 978-3-662-48090-8. DOI: 10.1007/978-3-662-48091-5\_7.

SCHMITT ET AL. 2014

Schmitt, M.; Scharfer, P.; Schabel, W.: Slot die coating of lithium-ion battery electrodes: investigations on edge effect issues for stripe and pattern coatings. *Journal of Coatings Technology and Research* 11 (2014) 1, S. 57-63. DOI: 10.1007/s11998-013-9498-y.

SCHMITT ET AL. 2015

Schmitt, M.; Diehm, R.; Scharfer, P.; Schabel, W.: An experimental and analytical study on intermittent slot die coating of viscoelastic battery slurries. *Journal of Coatings Technology and Research* 12 (2015) 5, S. 927-938. DOI: 10.1007/s11998-015-9717-9.

SCHMITT 2015

Schmitt, J.: Untersuchungen zum Herstellungsprozess des Elektrode-Separator-Verbunds für Lithium-Ionen Batteriezellen. (Dissertation). Institut für Werkzeugmaschinen und Fertigungstechnik, Technische Universität Carolo-Wilhelmina Braunschweig. Braunschweig (2015).

SCHMUCH ET AL. 2018

Schmuck, R.; Wagner, R.; Hörpel, G.; Placke, T.; Winter, M.: Performance and cost of materials for lithium-based rechargeable automotive batteries. *Nature Energy* 3 (2018) 4, S. 267-278. DOI: 10.1038/s41560-018-0107-2.

SCHNELL ET AL. 2018

Schnell, J.; Günther, T.; Knoche, T.; Vieider, C.; Köhler, L.; Just, A.; Keller, M.; Passerini, S.; Reinhart, Gunther: All-solid-state lithium-ion and lithium metal batteries – paving the way to large-scale production. *Journal of Power Sources* 382 (2018), S. 160-175. DOI: 10.1016/j.jpowsour.2018.02.062.

SCHREINER ET AL. 2019

Schreiner, D.; Oguntke, M.; Günther, T.; Reinhart, G.: Modelling of the Calendering Process of NMC-622 Cathodes in Battery Production Analyzing

---

Machine/Material–Process–Structure Correlations. *Energy Technology* 7 (2019) 11, S. 1900840. DOI: 10.1002/ente.201900840.

SCHREINER ET AL. 2021

Schreiner, D.; Zünd, T.; Günter, F. J.; Kraft, L.; Stumper, B.; Linsenmann, F.; Schüßler, M.; Wilhelm, R.; Jossen, Andreas; Reinhart, Gunther; Gasteiger, Hubert A.: Comparative Evaluation of LMR-NCM and NCA Cathode Active Materials in Multilayer Lithium-Ion Pouch Cells: Part I. Production, Electrode Characterization, and Formation. *Journal of The Electrochemical Society* 168 (2021) 3, S. 30507. DOI: 10.1149/1945-7111/abe50c.

SCHÜLE ET AL. 2008

Schüle, H.; Bille, H.; Emmerich, R.; Hegemann, B.; Ziegler, L.; Diemert, J.; Gittel, D.; Göttke, S.; Kauffmann, Axel; Knoblauch-Xander, Mark; Rohr, Andreas; Tröster, Stefan: Verarbeitung von Kunststoffen zu Bauteilen. In: Eyerer, P. et al. (Hrsg.): *Polymer Engineering*. Berlin, Heidelberg: Springer 2008, S. 211-435. ISBN: 978-3-540-72402-5. DOI: 10.1007/978-3-540-72419-3\_4.

SCHÜNEMANN 2015

Schünemann, J.-H.: Modell zur Bewertung der Herstellkosten von Lithiumbatteriezellen. (Dissertation). Institut für Partikeltechnik, Technische Universität Carolo-Wilhelmina zu Braunschweig. Braunschweig (2015).

SEN 2008

Sen, A. K.: *Coated textiles. Principles and applications*. 2. ed. Boca Raton Fla. u.a.: CRC Press 2008. ISBN: 978-1-4200-5345-6.

SHARP ET AL. 2014

Sharp, N.; Adams, D.; Caruthers, J.; O'Regan, P.; David, A.; Suchomel, M.: Lithium-Ion Battery Electrode Inspection Using Flash Thermography. In: Tandon, G. P. et al. (Hrsg.): *Experimental Mechanics of Composite, Hybrid, and Multifunctional Materials, Volume 6*. Cham: Springer International Publishing 2014, S. 23-29. ISBN: 978-3-319-00872-1. (Conference Proceedings of the Society for Experimental Mechanics Series). DOI: 10.1007/978-3-319-00873-8\_4.

SHENG ET AL. 2014

Sheng, Y.; Fell, C. R.; Son, Y. K.; Metz, B. M.; Jiang, J.; Church, B. C.: Effect of Calendering on Electrode Wettability in Lithium-Ion Batteries. *Frontiers in Energy Research* 2 (2014), S. 83. DOI: 10.3389/fenrg.2014.00056.

SHINOHARA 1997

Shinohara, K.: Fundamental and Rheological Properties of Powders. In: Fayed, M.

E. (Hrsg.): Handbook of Powder Science & Technology. 2 Aufl. New York, NY: Chapman & Hall 1997, S. 96-145. ISBN: 0-412-99621-9.

SIEBERTZ ET AL. 2017

Siebertz, K.; van Bebber, D.; Hochkirchen, T.: Statistische Versuchsplanung. Berlin, Heidelberg: Springer 2017. ISBN: 978-3-662-55742-6. DOI: 10.1007/978-3-662-55743-3.

SMITH 2007

Smith, R. Duane (Hrsg.): Roll and web defect terminology. 2nd ed. Norcross, GA: Tappi Press 2007. ISBN: 1-595-10138-1.

SON ET AL. 2014

Son, B.; Ryou, M.-H.; Choi, J.; Lee, T.; Yu, H. K.; Kim, J. H.; Lee, Y. M.: Measurement and analysis of adhesion property of lithium-ion battery electrodes with SAICAS. ACS applied materials & interfaces 6 (2014) 1, S. 526-531. DOI: 10.1021/am404580f.

SPAHR 2009

Spahr, M. E.: Carbon-Conductive Additives for Lithium-Ion Batteries. In: Yoshio, M. et al. (Hrsg.): Lithium-Ion Batteries. New York, NY: Springer 2009, S. 1-38. ISBN: 978-0-387-34444-7. DOI: 10.1007/978-0-387-34445-4\_5.

SPIEGEL ET AL. 2021

Spiegel, S.; Heckmann, T.; Altvater, A.; Diehm, R.; Scharfer, P.; Schabel, W.: Investigation of edge formation during the coating process of Li-ion battery electrodes. Journal of Coatings Technology and Research 86 (2021) 5, S. 695. DOI: 10.1007/s11998-021-00521-w.

SPUR 1999

Spur, G.: Produktionstechnologie. In: Eversheim, W. et al. (Hrsg.): Produktion und Management 3. Gestaltung von Produktionssystemen. Berlin, Heidelberg: Springer 1999. ISBN: 978-3-540-65453-7.

STEEB 1997

Steeb, S.: Expert Praxislexikon zerstörungsfreie Materialprüfung. 1359 Begriffe von A bis Z zur zerstörungsfreien Material- und Werkstückuntersuchung für Lehre, Studium und Beruf : mit 8 Tabellen. Renningen-Malmsheim: expert-Verl. 1997. ISBN: 978-3-8169-1420-4.

STENZEL ET AL. 2015

Stenzel, P.; Fleer, J.; Linssen, J.: Elektrochemische Speicher. In: Wietschel, M. et al. (Hrsg.): Energietechnologien der Zukunft. Wiesbaden: Springer Fachmedien

---

Wiesbaden 2015, S. 157-214. ISBN: 978-3-658-07128-8. DOI: 10.1007/978-3-658-07129-5\_10.

STERNER & STADLER 2014

Sterner, M.; Stadler, I.: *Energiespeicher - Bedarf, Technologien, Integration*. Berlin, Heidelberg: Springer 2014. ISBN: 978-3-642-37379-4. DOI: 10.1007/978-3-642-37380-0.

STERSHIC ET AL. 2015

Stershic, A. J.; Simunovic, S.; Nanda, J.: Modeling the evolution of lithium-ion particle contact distributions using a fabric tensor approach. *Journal of Power Sources* 297 (2015) 7179, S. 540-550. DOI: 10.1016/j.jpowsour.2015.07.088.

STEWART 1981

Stewart, D. V.: The design structure system: A method for managing the design of complex systems. *IEEE Transactions on Engineering Management* EM-28 (1981) 3, S. 71-74. DOI: 10.1109/TEM.1981.6448589.

SUDANO 2019

Sudano, A.: Chapter 30: Overview of Cell and Battery Manufacturing. In: Beard, K. W. et al. (Hrsg.): *Linden's Handbook of batteries*. Fifth edition Aufl. New York: McGraw-Hill Education 2019, S. 1289-1302. ISBN: 978-1-260-11592-5.

TAGAWA & BRODD 2009

Tagawa, K.; Brodd, R. J.: Production Processes for Fabrication of Lithium-Ion Batteries. In: Yoshio, M. et al. (Hrsg.): *Lithium-Ion Batteries*. New York, NY: Springer 2009, S. 181-194. ISBN: 978-0-387-34444-7. DOI: 10.1007/978-0-387-34445-4\_8.

THOMAS 2021

Thomas, C. G.: *Research Methodology and Scientific Writing*. Cham: Springer International Publishing 2021. ISBN: 978-3-030-64864-0. DOI: 10.1007/978-3-030-64865-7.

TRAN 2011

Tran, H. Y.: *Verfahrenstechnische Entwicklung und Untersuchung von Elektroden und deren Herstellprozess für innovative Lithium-Hochleistungsbatterien*. (Dissertation). Zentrum für Sonnenenergie- und Wasserstoff-Forschung Baden-Württemberg (ZSW), Universität Ulm. Ulm (2011). DOI: 10.18725/OPARU-2626.

TRAN ET AL. 2012

Tran, H. Y.; Greco, G.; Täubert, C.; Wohlfahrt-Mehrens, M.; Haselrieder, W.; Kwade, A.: Influence of electrode preparation on the electrochemical performance

of LiNi<sub>0.8</sub>Co<sub>0.15</sub>Al<sub>0.05</sub>O<sub>2</sub> composite electrodes for lithium-ion batteries. *Journal of Power Sources* 210 (2012), S. 276-285. DOI: 10.1016/j.jpowsour.2012.03.017.

TUTSCH 2006

Tutsch, R.: Fertigungsmesstechnik. In: Gevatter, H.-J. et al. (Hrsg.): *Handbuch der Mess- und Automatisierungstechnik in der Produktion*. Berlin, Heidelberg: Springer-Verlag 2006, S. 199-362. ISBN: 3-540-21207-8. (VDI-Buch). DOI: 10.1007/3-540-34823-9\_11.

ULRICH & HILL 1976

Ulrich, P.; Hill, W.: *Wissenschaftstheoretische Grundlagen der Betriebswirtschaftslehre*. *Wirtschaftswissenschaftliches Studium: Zeitschrift für Ausbildung und Hochschulkontakt* 5 (1976) 7+8, S. 304-309.

UMWELTBUNDESAMT 2021a: *Jährliche Treibhausgas-Emissionen in Deutschland nach Kategorie*.

<[https://www.umweltbundesamt.de/sites/default/files/medien/361/bilder/dateien/2021-03-15\\_thg\\_crf\\_plus\\_1a\\_details\\_ci\\_1990-2019\\_vjs2020.pdf](https://www.umweltbundesamt.de/sites/default/files/medien/361/bilder/dateien/2021-03-15_thg_crf_plus_1a_details_ci_1990-2019_vjs2020.pdf)> - 08.11.2021.

UMWELTBUNDESAMT 02.2021b: *Erneuerbare Energien in Deutschland*. 02.2021.

VESTER 2000

Vester, F.: *Die Kunst vernetzt zu denken. Ideen und Werkzeuge für einen neuen Umgang mit Komplexität*. Erste Auflage. Stuttgart: Deutsche Verlags-Anstalt 2000. ISBN: 3421053081.

VUORILEHTO 2018

Vuorilehto, K.: *Materials and function*. In: Korthauer, R. (Hrsg.): *Lithium-Ion Batteries: Basics and Applications*. Berlin, Heidelberg: Springer 2018, S. 21-28. ISBN: 978-3-662-53069-6. DOI: 10.1007/978-3-662-53071-9\_3.

WANG ET AL. 2004

Wang, C.-W.; Yi, Y.-B.; Sastry, A. M.; Shim, J.; Striebel, K. A.: *Particle Compression and Conductivity in Li-Ion Anodes with Graphite Additives*. *Journal of The Electrochemical Society* 151 (2004) 9, A1489. DOI: 10.1149/1.1783909.

WANG ET AL. 2013

Wang, L.; Fu, Y.; Battaglia, V. S.; Liu, G.: *SBR–PVDF based binder for the application of SLMP in graphite anodes*. *RSC Advances* 3 (2013) 35, S. 15022. DOI: 10.1039/C3RA42773K.

WANG ET AL. 2018

Wang, L.; Yin, S.; Zhang, C.; Huan, Y.; Xu, J.: *Mechanical characterization and*



---

modeling for anodes and cathodes in lithium-ion batteries. *Journal of Power Sources* 392 (2018), S. 265-273. DOI: 10.1016/j.jpowsour.2018.05.007.

WECK & BRECHER 2006

Weck, M.; Brecher, C.: Prozessüberwachung, Prozessregelung, Diagnose und Instandhaltungsmaßnahmen. In: Weck, M. (Hrsg.): *Werkzeugmaschinen 3*. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg 2006, S. 267-404. ISBN: 978-3-642-38746-3. DOI: 10.1007/978-3-540-32506-2\_6.

WECKENMANN & WERNER 2014

Weckenmann, A.; Werner, T.: Produktion: Messen und Prüfen. In: Pfeifer, T. et al. (Hrsg.): *Masing Handbuch Qualitätsmanagement*. 6 Aufl. München, Wien: Carl Hanser Verlag 2014. ISBN: 978-3-446-43992-4.

WEINMANN ET AL. 2018

Weinmann, H. W.; Lang, F.; Hofmann, J.; Fleischer, J.: Bahnzugkraftregelung in der Batteriezellfertigung. *wt Werkstattstechnik online* 108 (2018) 7/8, S. 519-524.

WEIßBACH ET AL. 2018

Weißbach, W.; Dahms, M.; Jaroschek, C.: *Werkstoffe und ihre Anwendungen*. Wiesbaden: Springer Fachmedien 2018. ISBN: 978-3-658-19891-6. DOI: 10.1007/978-3-658-19892-3.

WENGLER 1996

Wengler, M. M.: *Methodik für die Qualitätsplanung und -verbesserung in der Keramikindustrie*. (Dissertation). Fraunhofer-Institut für Produktionstechnologie, Rheinisch-Westfälische Technische Hochschule Aachen. Aachen (1996).

WENNIG 2015

Wennig, S.: *Untersuchung der Struktur-Eigenschafts-Beziehung von Elektroden für Lithium-Ionen-Batterien in Abhängigkeit des Stromabnehmers, des Binders und der Verdichtung sowie die Bewertung einer ionischen Flüssigkeit als Elektrolyt*. (Dissertation). Zentrum für BrennstoffzellenTechnik GmbH, Duisburg. Universität Duisburg-Essen (2015).

WESTERMEIER ET AL. 2013

Westermeier, M.; Reinhart, G.; Zeilinger, T.: Method for quality parameter identification and classification in battery cell production quality planning of complex production chains for battery cells. (Hrsg.): 2013 3rd International Electric Drives Production Conference (EDPC), 2013 3rd International Electric Drives Production Conference (EDPC). Nuremberg, Germany, 29.10.2013 - 30.10.2013:

IEEE 2013, S. 1-10. ISBN: 978-1-4799-1105-9. DOI:  
10.1109/EDPC.2013.6689742.

WESTERMEIER ET AL. 2014

Westermeier, M.; Reinhart, G.; Steber, M.: Complexity Management for the Start-up in Lithium-ion Cell Production. *Procedia CIRP* 20 (2014), S. 13-19. DOI:  
10.1016/j.procir.2014.05.026.

WESTERMEIER 2015

Westermeier, M.: Qualitätsorientierte Analyse komplexer Prozessketten am Beispiel der Herstellung von Batteriezellen. (Dissertation). Institut für Werkzeugmaschinen und Betriebswissenschaften, Technische Universität München. München (2015).

WESTKÄMPER & WARNECKE 2010

Westkämper, E.; Warnecke, H.-J.: Einführung in die Fertigungstechnik. Wiesbaden: Vieweg+Teubner 2010. ISBN: 978-3-8348-0835-6. DOI: 10.1007/978-3-8348-9798-5.

WESTPHAL ET AL. 2015

Westphal, B.; Bockholt, H.; Gunther, T.; Haselrieder, W.; Kwade, A.: Influence of Convective Drying Parameters on Electrode Performance and Physical Electrode Properties. *ECS Transactions* 64 (2015) 22, S. 57-68. DOI:  
10.1149/06422.0057ecst.

WHITEHEAD & SCHREIBER 2005

Whitehead, A. H.; Schreiber, M.: Current Collectors for Positive Electrodes of Lithium-Based Batteries. *Journal of Power Sources* 152 (2005) 11, A2105. DOI:  
10.1149/1.2039587.

WILKA 2013

Wilka, M. D.: Untersuchungen von Polarisierungseffekten an Lithium-Ionen-Batterien. (Dissertation). Zentrum für Sonnenenergie- und Wasserstoff-Forschung Ulm, Universität Ulm. Ulm (2013).

WURM ET AL. 2018

Wurm, C.; Oettinger, O.; Wittkaemper, S.; Zauter, R.; Vuorilehto, K.: Anode materials for lithium-ion batteries. In: Korthauer, R. (Hrsg.): *Lithium-Ion Batteries: Basics and Applications*. Berlin, Heidelberg: Springer 2018, S. 43-58. ISBN: 978-3-662-53069-6. DOI: 10.1007/978-3-662-53071-9\_5.

XIAO ET AL. 2010

Xiao, X.; Wu, W.; Huang, X.: A multi-scale approach for the stress analysis of

---

polymeric separators in a lithium-ion battery. *Journal of Power Sources* 195 (2010) 22, S. 7649-7660. DOI: 10.1016/j.jpowsour.2010.06.020.

YAMAMOTO & MORI 2009

Yamamoto, H.; Mori, H.: SBR Binder (for Negative Electrode) and ACM Binder (for Positive Electrode). In: Yoshio, M. et al. (Hrsg.): *Lithium-Ion Batteries*. New York, NY: Springer 2009, S. 1-17. ISBN: 978-0-387-34444-7. DOI: 10.1007/978-0-387-34445-4\_7.

YOO ET AL. 2003

Yoo, M.; Frank, C. W.; Mori, S.; Yamaguchi, S.: Effect of poly(vinylidene fluoride) binder crystallinity and graphite structure on the mechanical strength of the composite anode in a lithium ion battery. *Polymer* 44 (2003) 15, S. 4197-4204. DOI: 10.1016/S0032-3861(03)00364-1.

ZHANG 2011

Zhang, W.-J.: A review of the electrochemical performance of alloy anodes for lithium-ion batteries. *Journal of Power Sources* 196 (2011) 1, S. 13-24. DOI: 10.1016/j.jpowsour.2010.07.020.

ZHANG & RAMADASS 2013

Zhang, Z. J.; Ramadass, P.: *Lithium-Ion Battery Systems and Technology*. In: Brodd, R. J. (Hrsg.): *Batteries for Sustainability*. New York, NY: Springer 2013, S. 319-357. ISBN: 978-1-4614-5790-9. DOI: 10.1007/978-1-4614-5791-6\_10.

ZHANG & ZHANG 2015

Zhang, Z.; Zhang, S. S.: Challenges of Key Materials for Rechargeable Batteries. In: Zhang, Z. et al. (Hrsg.): *Rechargeable Batteries*. Cham: Springer International Publishing 2015, S. 1-24. ISBN: 978-3-319-15457-2. DOI: 10.1007/978-3-319-15458-9\_1.

ZHENG ET AL. 2008

Zheng, H.; Liu, G.; Song, X.; Battaglia, V.: Li[Ni<sub>1/3</sub>Mn<sub>1/3</sub>Co<sub>1/3</sub>]O<sub>2</sub>-based Electrodes for PHEV Applications: An Optimization. *ECS Transactions* 11 (2008) 32, S. 1-9. DOI: 10.1149/1.2992488.

ZHENG ET AL. 2010

Zheng, H.; Liu, G.; Song, X.; Ridgway, P.; Xun, S.; Battaglia, V. S.: Cathode Performance as a Function of Inactive Material and Void Fractions. *Journal of Power Sources* 157 (2010) 10, A1060. DOI: 10.1149/1.3459878.

ZHENG ET AL. 2012a

Zheng, H.; Tan, L.; Liu, G.; Song, X.; Battaglia, V. S.: Calendering effects on the

physical and electrochemical properties of Li[Ni<sub>1/3</sub>Mn<sub>1/3</sub>Co<sub>1/3</sub>]O<sub>2</sub> cathode.

Journal of Power Sources 208 (2012), S. 52-57. DOI:

10.1016/j.jpowsour.2012.02.001.

ZHENG ET AL. 2012b

Zheng, H.; Zhang, L.; Liu, G.; Song, X.; Battaglia, V. S.: Correlation between electrode mechanics and long-term cycling performance for graphite anode in lithium ion cells.

Journal of Power Sources 217 (2012), S. 530-537. DOI:

10.1016/j.jpowsour.2012.06.045.

ZIEGLER & TRANCIK 2021

Ziegler, M. S.; Trancik, J. E.: Re-examining rates of lithium-ion battery technology improvement and cost decline. Energy & Environmental Science 14 (2021) 4, S.

1635-1651. DOI: 10.1039/d0ee02681f.

ZUBI ET AL. 2018

Zubi, G.; Dufo-López, R.; Carvalho, M.; Pasaoglu, G.: The lithium-ion battery:

State of the art and future perspectives. Renewable and Sustainable Energy Reviews

89 (2018), S. 292-308. DOI: 10.1016/j.rser.2018.03.002.

ZWICKROELL GMBH & CO. KG 2021

ZwickRoell GmbH & Co. KG: Biegeversuch. Werkstoffprüfung, Materialprüfung.

<[https://www.zwickroell.com/de/branchen/werkstoffpruefung-](https://www.zwickroell.com/de/branchen/werkstoffpruefung-materialpruefung/biegeversuch/)

[materialpruefung/biegeversuch/](https://www.zwickroell.com/de/branchen/werkstoffpruefung-materialpruefung/biegeversuch/)> - 08.12.2021.

---

## 10 Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1-1: Aufbau der Arbeit und forschungsmethodischer Rahmen in Anlehnung an BLESSING & CHAKRABARTI (2009, S. 15)	4
Abbildung 2-1: Aufbau und Funktionsweise einer LIB in Anlehnung an DAHN & EHRLICH (2019, S. 762) und STERNER & STADLER (2014, S. 250)	12
Abbildung 2-2: Schematischer Aufbau einer Kathode mit NMC als Aktivmaterial in Anlehnung an LEUTHNER (2018, S. 18) und VUORILEHTO (2018, S. 22)	16
Abbildung 2-3: Schematischer Aufbau einer Anode mit Grafit als Aktivmaterial in Anlehnung an VUORILEHTO (2018, S. 22) und AURBACH (2002, S. 29)	16
Abbildung 2-4: Schematische Darstellung der Prozesskette der Batteriezellfertigung in Anlehnung an KWADE ET AL. (2018, S. 292)	18
Abbildung 2-5: Verhältnisse im Walzspalt in Anlehnung an FASSE (1997, S. 41) und FRITZ (2018, S. 148 ff.)	25
Abbildung 3-1: REM-Aufnahmen von Rissen in der Beschichtung von NMC-111-Kathoden (links) und Grafit-Anoden (rechts) mit 50 % bzw. 20 % Porosität, 200-fach vergrößert	34
Abbildung 4-1: Klassifikation der Fehlerbilder beim Kalandrieren	57
Abbildung 4-2: Geometrische Fehlerbilder – a)Elektrodenwelligkeit, b)Wellen am Beschichtungsrand, c)Falten am Ableiter und d)Bandsäbel.	58
Abbildung 4-3: Welligkeiten an einer Grafit-Anode vor (rechts) und nach (links) dem Entfernen der Beschichtung	63
Abbildung 4-4: Strukturbedingte Fehlerbilder – a)Lokale Dicke- und Dichteschwankungen, b)Versiegelte Oberflächenporen und c)Schichtablösung.	64
Abbildung 4-5: Mechanische Fehlerbilder – a)Elektrodenversprödung, b)Folienriss und c)Riss in der Beschichtung.	67

Abbildung 4-6: Pareto-Analyse zum Einfluss der Fehlerbilder auf Folgeprozesse am Bsp. der iwb-Forschungsproduktionslinie	74
Abbildung 5-1: Abgewickelte Elektrode (links, Quelle: BMW AG) und Vorgehen zur Messung des Bandsäbels nach MÜCKE ET AL. (2002, S. 36) (rechts)	78
Abbildung 5-2: Umrüstsätze an der UPM für Abreiß-, Biege- und Scherversuch	83
Abbildung 5-3: Programmablaufplan des Abreiß-, Biege- und Scherversuchs in Anlehnung an HASELRIEDER ET AL. (2015) und eigene Untersuchungen	84
Abbildung 5-4: a) Repräsentative Messdaten und b) Messartefakte inkl. Ausgleichsfunktion und -gerade des Biegeversuchs	88
Abbildung 5-5: Prinzip des Scherversuchs in Anlehnung an GUDURU ET AL. (2005, S. 308) (links) und repräsentative Messdaten (rechts)	90
Abbildung 5-6: Schematische Darstellung des Messsystems zur Planheitsmessung	94
Abbildung 5-7: Elektrodenabschnitt in der Draufsicht mit Messpositionen	97
Abbildung 5-8: Verarbeitung der Messdaten (Grenzwellenlänge 10 mm; Flankensteilheit 0,85; Sperrdämpfung 60 dB); in diesem Bsp. zeigt sich der Trend nur marginal	98
Abbildung 6-1: System ‚Kalandrierprozess‘ mit Ein- und Ausgangsgrößen	102
Abbildung 6-2: Ishikawa-Diagramm von Einflussgrößen auf die Fehlerbilder	102
Abbildung 6-3: Verlauf der Dichte, Porosität und Verdichtungsrate im Zuge der Verdichtung nach Gleichung 2-4 und 2-5 am Bsp. der in dieser Arbeit eingesetzten Kathode mit $13 \text{ mg}_{\text{NMC}}/\text{cm}^2$ Massenbeladung je Seite und $15 \text{ }\mu\text{m}$ Foliendicke	104
Abbildung 6-4: Verlauf der Mittelwerte mit Standardfehler für die Haftfestigkeit über die Porositätsstufen für a) zwei Schichtdicken am Kalandrierer TEC und b) bei RT und für alle Walzentemperaturen am Kalandrierer iwb	112

---

Abbildung 6-5: Verlauf der Mittelwerte mit Standardfehler für die Haftfestigkeit über der Walzentemperatur a) am Kalandrierwerk und b) an den Kalandrierwerken iwb sowie TEC	113
Abbildung 6-6: 3-D-Diagramm der Regressionsgleichung ( $p < 0,001$ , $R^2 = 88,19\%$ )	114
Abbildung 6-7: Haftfestigkeit in Abhängigkeit vom Walzendurchmesser mit Angabe von Mittelwert und Standardfehler	114
Abbildung 6-8: a) Einfluss der Massenbelastung auf die Elektrodenwelligkeit und b) Wechselwirkung zwischen der Verdichtungsrate und der Massenbelastung in Bezug auf die Wellenlänge	119
Abbildung 6-9: Verlauf der Mittelwerte mit Standardfehler für die Wellenlänge und -höhe der Elektrodenwelligkeit über der a) Verdichtungsrate und b) Walzentemperatur	121
Abbildung 6-10: Oberflächenprofil mit und ohne Filterung sowie Bild in der Draufsicht der Elektroden der Versuche bei a) minimaler und b) maximaler Faktoreinstellung für die Verdichtungsrate und Massenbelastung, jeweils auf $15\mu\text{m}$ beschichtet und bei RT kalandriert.	124
Abbildung 6-11: a) Mittelwerte der einzelnen Versuche in Durchlaufreihenfolge mit Angabe der Standardabweichung der Einzelmessungen und b) Box-Plot des Datensatzes	127
Abbildung 6-12: REM-Aufnahmen der Kathode mit a) 12% Verdichtungsrate und $80^\circ\text{C}$ Walzentemperatur und mit b) 28% Verdichtungsrate und RT kalandriert, 500-fach vergrößert.	128
Abbildung 6-13: Verlauf der Mittelwerte mit Standardfehler für die Haftfestigkeit über a) der Porosität und b) der Walzentemperatur	129
Abbildung 6-14: Mittelwert mit Standardfehler für die Haftfestigkeit in Abhängigkeit vom Walzendurchmesser.	130
Abbildung 6-15: Mittelwerte mit Standardfehler für die Steigung der Ausgleichsgeraden und den Biegemodul über a) der Massenbelastung und b) der Foliendicke	136

- Abbildung 6-16: Mittelwerte mit Standardfehler für die Scherkraft und die Scherfestigkeit sowie den Scherwinkel über der Foliendicke (a, b) und der Massenbelastung inkl. der Wechselwirkungen mit der Foliendicke (c, d) 138
- Abbildung 6-17: Mittelwerte mit Standardfehler für die Steigung der Ausgleichsgeraden und den Biegemodul über der a) Verdichtungsrate, b) Walzentemperatur und Wechselwirkungen der Verdichtungsrate und c) Massenbelastung sowie d) Foliendicke 141
- Abbildung 6-18: Mittelwerte und Standardfehler für a) den Scherwinkel und die Scherfestigkeit über der Verdichtungsrate und b) die Scherkraft und -festigkeit über der Walzentemperatur 144
- Abbildung 6-19: Mittelwerte und Standardabweichung für die Wellenlänge und -höhe a) der Elektrodenwelligkeit und b) der Wellen am Beschichtungsrand in Abhängigkeit von der Walzentemperatur 147
- Abbildung 6-20: Mittelwerte und Standardabweichung der Haftfestigkeit in Abhängigkeit von der Porosität für unterschiedliche Walzendurchmesser und -temperaturen 149
- Abbildung 6-21: Grafische Zusammenfassung 155
- Abbildung 12-1: Schematische Darstellung des Systems in der SVM, um die Auswertung ergänzt, basierend auf KLEPPMANN (2016, S. 13 f.) und SIEBERTZ ET AL. (2017, S. 3) 219
- Abbildung 12-2 Querbogen an runden Stanzlingen aus NMC-111-Kathoden von links nach rechts mit steigender Verdichtungsrate 228
- Abbildung 12-3: Für die Abreiß-, Biege- und Scherversuche eingesetzte UPM in der Konfiguration des Drei-Punkt-Biegeversuchs 229
- Abbildung 12-4: Prototypischer Aufbau des Planheitsmesssystems auf der Aufwicklerseite des Kalanders des iwB montiert 230
- Abbildung 12-5: Visualisierung der Software des Planheitsmesssystems in Labview 2019 231



---

Abbildung 12-6: Überlagerung eines Fotos einer Elektrode in der Draufsicht und des Graphen des entsprechenden Messsignals der Elektrodenwelligkeit	232
Abbildung 12-7: Mischsequenz für die Anoden-(links) und Kathoden-Slurry (rechts) mit dem Feststoffanteil und der Drehzahl über der Mischzeit	234
Abbildung 12-8: Abmessung der Elektrode mit Angabe der Breite des Beschichtungsstreifens und der Ableiter	235
Abbildung 12-9: Walzentemperatur in Abhängigkeit von der Zeit an den Kalandern des iwB und TEC	238
Abbildung 12-10: Probenentnahmesystematik für Kathode und Anode	239
Abbildung 12-11: Beobachtete ‚Querwellen‘ an Elektrode mit 13 mg <sub>NMC</sub> /cm <sup>2</sup> Massenbeladung links und 19,5 mg <sub>NMC</sub> /cm <sup>2</sup> Massenbeladung rechts	246



---

## 11 Tabellenverzeichnis

Tabelle 2-1: Dichte für leistungs- und energieoptimierte Elektroden	22
Tabelle 4-1: DMM zur Auswirkung der Fehlerbilder auf Folgeprozesse der iwB-Forschungsproduktionslinie	70
Tabelle 5-1: Fehlerbilder und entsprechende Prüfmerkmale sowie Verfahren zu deren Erfassung basierend auf GÜNTHER ET AL. (2020, S. 5 f.)	77
Tabelle 6-1: Faktoren und Stufen der Anodenversuche	107
Tabelle 6-2: Faktoren und Stufen der Kathodenversuche	109
Tabelle 6-3: Übersicht der Ergebnisse der MLR-Analyse für die Elektrodenwelligkeit und die Wellen am Beschichtungsrand	118
Tabelle 6-4: Übersicht der Ergebnisse der MLR-Analyse für den Biegeversuch	134
Tabelle 6-5: Übersicht der Ergebnisse der MLR-Analyse für den Scherversuch	135
Tabelle 6-6: Eingesetzte Kathodenmaterialien	146
Tabelle 6-7: Übersicht der untersuchten Einflussgrößen der Modelldomänen	151
Tabelle 6-8: Betriebspraxis Kalandrieren von Lithium-Ionen-Elektroden in Anlehnung an RÖTHEMEYER & SOMMER (2013, S. 651 ff.)	156
Tabelle 7-1: Erfüllungsgrad der allgemeinen Anforderungen an die Messverfahren	159
Tabelle 7-2: Exemplarische Kostenkalkulation für die Planheitsmessung	164
Tabelle 7-3: Exemplarische Nutzenkalkulation für die Planheitsmessung	165
Tabelle 12-1: Grundlegende Auswerteverfahren und ihr Anwendungszweck (GUNDLACH 2004, S. 220)	221
Tabelle 12-2: Grundlegende Darstellungsmethoden und ihr Anwendungszweck (GUNDLACH 2004, S. 221)	222

Tabelle 12-3: Eingesetzte Elektrodenmaterialien	233
Tabelle 12-4: Produkt- und Prozessparameter der hergestellten Elektroden	236
Tabelle 12-5: Vollfaktorieller Versuchsplan der Anoden (Hauptversuch „Anode“)	240
Tabelle 12-6: Angepasster D-optimaler Versuchsplan der Anoden (Zusatzversuch „Anode“)	241
Tabelle 12-7: Vollfaktorieller Versuchsplan der Kathoden (Hauptversuch „Kathode“), wobei die Zusatzpunkte unterstrichen sind (Zusatzversuch „Kathode“).	243
Tabelle 12-8: Vollfaktorieller Versuchsplan der Kontrollversuche zur Untersuchung der Haftfestigkeit an Kathoden	245
Tabelle 12-9: Annahmen und Daten zur Wirtschaftlichkeitsbewertung	247

---

## 12 Anhang

### A1 Verzeichnis der betreuten, relevanten Studienarbeiten

Im Rahmen dieser Dissertation entstanden am *iwb* unter wesentlicher wissenschaftlicher, fachlicher und inhaltlicher Anleitung des Autors die im Folgenden aufgeführten studentischen Arbeiten, in welchen verschiedene Fragestellungen im Rahmen der qualitätsorientierten Analyse komplexer Prozessketten i.Allg. und am Bsp. der Herstellung von Lithium-Ionen-Zellen untersucht wurden. Deren Ergebnisse sind in Teilen in die vorliegende Arbeit eingeflossen. Der Autor dankt allen Studierenden für Ihr Engagement bei der Unterstützung dieser wissenschaftlichen Arbeit. Nachfolgend sind die Studienarbeiten chronologisch aufgelistet:

Name	Titel	Zeitraum	Beitrag
Tobias Deich	Kalandrieren von Lithium-Ionen-Elektroden: Effekte von Produkt und Prozessfaktoren auf die mechanischen Eigenschaften	04.2015– 10.2015	Abschnitt 4.2.1, 5.1.2 und 6.1
Elia Gießler	Untersuchung zur Wärmebeeinflussung beim Kalandrieren der Elektroden von Lithium-Ionen-Zellen	05.2015– 11.2015	Abschnitt 4.2.1, 5.1.2 & 6.1
Julian Lucas	Untersuchung des Benetzungsverhalten von Lithium-Ionen-Elektroden unterschiedlicher Porosität	05.2015– 11.2015	Abschnitt 4.2.2
Maximilian Kellner	Effekte des Kalandrierens auf die Benetzung von NMC-Kathoden: Optische und impedanzspektroskopische Auswertung	02.2016– 08.2016	Abschnitt 4.2.2
Alexander Fröse	Untersuchung zum Einfluss des Binderanteils und der Kalandrierwalzentemperatur auf die mechanischen Eigenschaften der Kathode einer Lithium-Ionen-Batterie	05.2016– 11.2016	Abschnitt 5.1.2 & 6.1

Astrid Mundt	Untersuchungen zum Einfluss des Binderanteils und der Kalandrierungstemperatur auf die elektrochemischen Eigenschaften der Kathode einer Lithium-Ionen-Zelle	06.2016– 11.2016	Abschnitt 5.1.2 & 6.1
Rateb Mobin	Empirische Ermittlung und experimentelle Untersuchung von Fehlern beim Kalandrieren von Lithium-Ionen Elektroden	06.2016– 12.2016	Abschnitt 4.1.2, 4.2.1 & 5.3.1
David Schreiner	Analyse der Fehlerbilder des Kalandrierprozesses	11.2016– 04.2017	Abschnitt 4.1, 4.2 & 6.5
Benjamin Plischke	Einfluss des Kalandrierens auf die Fehlerbildung an Elektroden von Lithium-Ionen-Batterien	12.2016– 07.2017	Abschnitt 4.2.1 & 5.3.1
Michael Sperling	Auswirkungen der Prozess- und Anlagenparameter beim Kalandrieren auf die Schichthaftung von Lithium-Ionen-Kathoden	06.2017– 01.2018	Abschnitt 6.3.3
Ralf Stahl	Kalandrieren in der Elektrodenproduktion – Untersuchung der Einflüsse von Produkt- und Prozessparametern bei Graphit-Elektroden	06.2017– 01.2018	Abschnitt 6.3.1
Michael Szostak	The impact of different calendaring parameters on the form deviations of NMC-cathodes.	06.2017– 01.2018	Abschnitt 5.3.1

## A2 Publikationsliste

Während seiner Tätigkeit am *iwb* hat der Autor an folgenden Publikationen mitgewirkt:

---

GÜNTHER ET AL. 2016

**Günther, T.**; Billot, N.; Schuster, J.; Schnell, J.; Spingler, F. B.; Gasteiger, H. A.: The Manufacturing of Electrodes: Key Process for the Future Success of Lithium-Ion Batteries. *Advanced Materials Research* 1140 (2016), S. 304-311.

CHINNATHAI ET AL. 2017

Chinnathai, M. K.; **Günther, T.**; Ahmad, M.; Stocker, C.; Richter, L.; Schreiner, D.; Vera, D.; Reinhart, G.; Harrison, Robert: An Application of Physical Flexibility and Software Reconfigurability for the Automation of Battery Module Assembly. *Procedia CIRP* 63 (2017), S. 604-609.

SCHNELL ET AL. 2017

Schnell, J.; Hofer, A.; Singer, C.; **Günther, T.**; Reinhart, G.: Evaluation of technology chains for the production of all-solid-state batteries. In: Schmitt, R.; Schuh, G. (eds): 7. WGP-Jahreskongress Aachen, October 5-6, 2017. Aachen, Apprimus Verlag, 2017, pp. 295-302, ISBN: 978-3-86359-555-5.

SCHNELL ET AL. 2018

Schnell, J.; **Günther, T.**; Knoche, T.; Vieider, C.; Köhler, L.; Just, A.; Keller, M.; Passerini, S.; Reinhart, Gunther: All-solid-state lithium-ion and lithium metal batteries – paving the way to large-scale production. *Journal of Power Sources* 382 (2018), S. 160-175.

SCHREINER ET AL. 2019

Schreiner, D.; Oguntke, M.; **Günther, T.**; Reinhart, G.: Modelling of the Calendering Process of NMC-622 Cathodes in Battery Production Analyzing Machine/Material–Process–Structure Correlations. *Energy Technology* 7 (2019) 11, S. 1900840.

BILLOT ET AL. 2020

Billot, N.; **Günther, T.**; Schreiner, D.; Stahl, R.; Kranner, J.; Beyer, M.; Reinhart, G.: Investigation of the Adhesion Strength along the Electrode Manufacturing Process for Improved Lithium-Ion Anodes. *Energy Technology* 8 (2020) 2, S. 1801136.

GÜNTHER ET AL. 2020

**Günther, T.**; Schreiner, D.; Metkar, A.; Meyer, C.; Kwade, A.; Reinhart, G.: Classification of Calendering-Induced Electrode Defects and Their Influence on Subsequent Processes of Lithium-Ion Battery Production. *Energy Technology* 8 (2020) 2, S. 1900026.

### **A3 Versuchsplanung und -auswertung**

Versuche können aufwändig und kostenintensiv werden, v. a., wenn Versuchsziele nicht ausreichend definiert sind und ohne Systematik mit der Durchführung begonnen wird. Die statistische Versuchsmethodik (SVM)<sup>46</sup> unterstützt und begleitet die Anwender mit einem standardisierten Verfahren durch den gesamten Versuch (SIEBERTZ ET AL. 2017, S. 1 f.). Im Folgenden werden Grundlagen der Versuchsplanung und -auswertung dargelegt.

#### **Statistische Versuchsplanung**

Zur Planung eines Versuchs muss zunächst die Ausgangs- bzw. Problemsituation beschrieben werden, um ein eindeutiges Versuchsziel zu definieren. Je nach Zielsetzung (z.B. Reduzierung der Streuung eines Fertigungsprozesses oder Erkennen der wichtigsten Störgrößen in der Fertigung) kommen unterschiedliche Werkzeuge zum Einsatz. (KLEPPMANN 2016, S. 17 ff.)

Die anschließende Systemanalyse zielt auf die Ermittlung aller potentiellen Ziel-, Einfluss- und Störgrößen ab. Das Ergebnis des Versuchs wird durch eine oder mehrere Zielgrößen beschrieben. Diese können entweder Messwerte darstellen oder aus Messwerten errechnet werden. Die Einflussgrößen wirken sich auf die Zielgrößen aus. Die Einflussgrößen lassen sich nach Taguchi<sup>47</sup> in Steuer- und Störgrößen unterteilen. Steuergrößen sind Einflussgrößen, die gezielt auf einen Wert eingestellt werden können. Im Gegensatz dazu kann für Störgrößen kein bestimmter Wert vorgegeben werden. Aus den gesamten Einflussgrößen werden für den Versuch sog. Faktoren ausgewählt. Neben Methoden und Hilfsmitteln kommen hierzu auch systematische Beobachtungen (Expertenwissen, Erfahrung, u. Ä.) zur Geltung, die ebenso Hinweise auf wichtige Einflussgrößen liefern. Abbildung 12-1 verdeutlicht den Zusammenhang der Begriffe. (GUNDLACH 2004, S. 182 f., KLEPPMANN 2016, S. 8)

Zur Variation der Zielgröße müssen für jeden Faktor mindestens zwei Faktorstufen gewählt werden. Die Anzahl an Faktorstufen beeinflusst maßgeblich die Güte der Versuchsergebnisse, aber auch den Aufwand. Zusätzlich wird zwischen quantitativen (d.h. Zahlenwerten) und qualitativen (d.h. kategorischen) Faktoren unterschieden. Bei der Einstellung von numerischen Werten sind besondere Vorkehrungen zu treffen (Durchführbarkeit der Stufenkombinationen, Stufenabstand, usw.). Hier sei auf

---

<sup>46</sup> In der vorliegenden Arbeit wird nicht zwischen den Begriffen statistische Versuchsmethodik (SVM) und statistische Versuchsplanung (SVP) unterschieden.

<sup>47</sup> Taguchi-Methoden sind statistische Methoden, die von Genichi Taguchi entwickelt wurden, um die Streuung um den Sollwert bei der Herstellung von Produkten zu minimieren (KLEIN 2014, S. VII).



---

weiterführende Literatur verwiesen (KLEPPMANN 2016, S. 27 f., SIEBERTZ ET AL. 2017, S. 6).

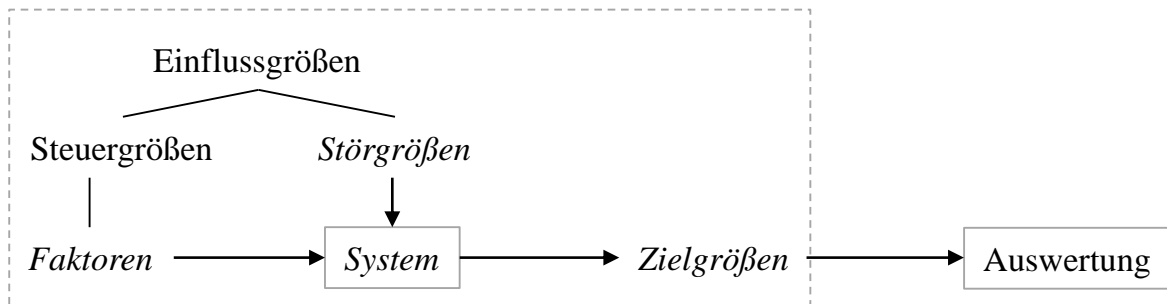


Abbildung 12-1: Schematische Darstellung des Systems in der SVM, um die Auswertung ergänzt, basierend auf KLEPPMANN (2016, S. 13 f.) und SIEBERTZ ET AL. (2017, S. 3)

Die SVM liefert für die unterschiedlichen Versuchsziele zahlreiche Versuchspläne. Darunter zählen u.a. faktorielle Versuchspläne, zentral zusammengesetzte Versuchspläne und optimale Versuchspläne. KLEIN (2014, S. 140) gibt eine Übersicht über die bekanntesten Versuchspläne, die in der vorliegenden Arbeit nicht im Einzelnen erläutert werden. Bei der Auswahl des Versuchsplans müssen u. a. die Anzahl der Zielgrößen und Faktoren und v.a. die gewünschte Genauigkeit der Ergebnisse sowie Größe der Zufallsstreuung bezogen auf den Versuchsaufwand berücksichtigt werden. I.Allg. gilt jedoch: Die SVP ermöglicht effiziente Experimente mit reduziertem experimentellem Aufwand. (SIEBERTZ ET AL. 2017, S. 27 f.)

Bei der Detaillierung des Versuchsplans werden weitere Maßnahmen wie Randomisierung, Blockbildung und Wiederholung miteinbezogen. Randomisierung beschreibt die Durchführung von Einzelversuchen in zufälliger Reihenfolge, um eine Verfälschung der Ergebnisse durch Störgrößen und Trends zu vermeiden. Bei der Blockbildung werden die Einzelversuche in Gruppen eingeteilt, um die Zufallsstreuung zu reduzieren. Dabei sollte jeder Block möglichst jede Faktorstufenkombination beinhalten. Unterschiede zwischen den Blöcken können „aufgrund der Ausgewogenheit innerhalb der Blöcke erkannt und aus der Rechnung eliminiert werden“ (KLEPPMANN 2016, S. 31). Zuletzt dient die Wiederholung von Einzelversuchen – idealerweise des gesamten Versuchs – der Reduzierung der Versuchsstreuung und ermöglicht Aussagen über Reproduzierbarkeit und Aussagekraft der gemessenen Werte unter Berücksichtigung der Versuchsstreuung. (KLEPPMANN 2016, S. 30 ff., SIEBERTZ ET AL. 2017, S. 93-100)

Zwischen der Versuchsplanung und -auswertung findet die eigentliche Versuchsdurchführung statt. Alle festgelegten Versuche inkl. der Messdatenerfassung werden sorgfältig abgearbeitet.

### **Auswertungsverfahren**

Nach der Versuchsdurchführung stehen Daten zur Verfügung, die mithilfe von statistischen Methoden „ausgewertet, analysiert und dargestellt“ werden können (GUNDLACH 2004, S. 220).

Die Zielgrößen werden im Anschluss an die Versuchsdurchführung in eine Antwortmatrix eingetragen. Die Versuchsergebnisse aus der Antwortmatrix können der Faktorvariation gegenübergestellt werden. Die Gegenüberstellung wird als Effekt bezeichnet und ermöglicht Aussagen über den Einfluss der Faktoren auf die Zielgrößen. (GUNDLACH 2004, S. 53 f., SCHEFFLER 1997, S. 67)

Die Effekte lassen sich in Haupt- und Wechselwirkungseffekte einteilen. Der Haupteffekt beschreibt den Einfluss eines einzelnen Faktors bei Variation über alle Faktorstufen auf die Zielgröße. Wird die Zielgröße bei Variation von zwei oder mehreren Faktoren beeinflusst, handelt es sich um einen Wechselwirkungseffekt. (GUNDLACH 2004, S. 39)

Ein Effekt liegt im statistischen Sinne vor, wenn er „größer als seine Zufallsstreuung“ ist – er ist signifikant (KLEPPMANN 2016, S. 40). In der Literatur sind unterschiedliche Signifikanzniveaus zu finden. In dieser Arbeit wurde folgende Abstufung eingesetzt: Ein Effekt ist (FROST 2017, S. 23):

- signifikant, wenn der p-Wert  $p \leq 0,05$ ,
- sehr signifikant, wenn der p-Wert  $p \leq 0,01$  und
- hoch signifikant, wenn der p-Wert  $p \leq 0,001$ .

Als Maß für die Streuung wurde in dieser Arbeit neben der Standardabweichung für Stichproben der Standardfehler des Mittelwertes berechnet, wenn die Mittelwerte mehrerer Stichproben verglichen wurden. Der **Standardfehler des Mittelwertes**  $S_F$  lässt sich nach QUIRK (2015, S. 2 f.) mit Gleichung 12-1 berechnen.

$$S_F = \frac{s_A}{\sqrt{n}} \quad (\text{Gl. 12-1})$$

Dabei entspricht  $n$  der Stichprobengröße und  $s_A$  der **Standardabweichung**, die nach Gleichung 12-2 berechnet wurde.

$$s_A = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (y_i - \bar{y})^2}{n - 1}} \quad (\text{Gl. 12-2})$$

Dabei ist  $\bar{y}$  ist das arithmetische Mittel von Einzelbeobachtungen  $y_i$  einer Stichprobe der Größe  $n$ .

Aufgrund der großen Anzahl an Auswertemethoden wird in dieser Arbeit auf die Darstellung weiterer mathematischer Zusammenhänge verzichtet und auf die zuvor zitierte Literatur verwiesen. Ohnehin empfiehlt sich sowohl für die Versuchsplanung als auch die -auswertung die Nutzung von Auswerteprogrammen. Tabelle 12-1 gibt einen Überblick über grundlegende Auswerteverfahren und ihren Anwendungszweck.

*Tabelle 12-1: Grundlegende Auswerteverfahren und ihr Anwendungszweck  
(GUNDLACH 2004, S. 220)*

<b>Methode</b>	<b>Zweck</b>
Effektberechnung	Quantifizierung von Faktoreinflüssen, Wechselwirkungen und Signifikanzbeurteilung
Varianzanalyse	Zuordnung von Streuungsursachen
Regressionsanalyse	Empirische Modellbildung
Residuenanalyse	Überprüfung der Modellqualität und Identifizierung potentieller Ausreißer

Gleichermaßen fasst Tabelle 12-2 grundlegende Darstellungsmethoden und ihren Anwendungszweck zusammen.

*Tabelle 12-2: Grundlegende Darstellungsmethoden und ihr Anwendungszweck  
(GUNDLACH 2004, S. 221)*

<b>Methode</b>	<b>Zweck</b>
Korrelationsdiagramme	Aufzeigen von Zusammenhängen zwischen zwei oder mehreren Größen
Haupteffekt- und Wechselwirkungsdiagramme	Herausstellung von Faktoren- und Wechselwirkungseffekten
Histogramm der Effekte, Wahrscheinlichkeitsnetz der Effekte	Abbildung und Signifikanzbeurteilung von Faktoren- und Wechselwirkungseffekten
3-D-Diagramme, Höhenliniendiagramme	Darstellung von empirischen Modellen
Wahrscheinlichkeitsnetz für Residuen	Beurteilung des Modells

# A4 Fragebogen zur Sammlung der Fehlerbilder

1. Welche Aufgabenbereiche Ihrer Tätigkeit sind Ihre Kernkompetenzen?

2. Welche nachfolgenden Herausforderungen sind Ihnen im Kalandrieren von Elektroden bekannt? Bitte kreuzen Sie das jeweilige Problem an. Falls zutreffend, geben Sie weiter an, ob dies bei Ihnen in der Praxis bereits aufgetreten ist.

Problem	In der Praxis aufgetreten?
<input type="checkbox"/> Versprödung des Materials	Ja <input type="checkbox"/> Nein <input type="checkbox"/> k.A. <input type="checkbox"/>
<input type="checkbox"/> Lokale Dichte- und Dickenschwankungen	Ja <input type="checkbox"/> Nein <input type="checkbox"/> k.A. <input type="checkbox"/>
<input type="checkbox"/> Foliennriss	Ja <input type="checkbox"/> Nein <input type="checkbox"/> k.A. <input type="checkbox"/>
<input type="checkbox"/> Durchbiegung der Walze (Walzenbombage)	Ja <input type="checkbox"/> Nein <input type="checkbox"/> k.A. <input type="checkbox"/>
<input type="checkbox"/> Laterale Beiseitdrückung der Beschichtung	Ja <input type="checkbox"/> Nein <input type="checkbox"/> k.A. <input type="checkbox"/>

3. Welche weitere Probleme sind im Kalandrieren von Elektroden auftreten können, sind Ihnen aus der Praxis oder aus der Theorie bekannt? Bitte benennen und beschreiben Sie das Problem ggf. mit einer Skizze. Falls bekannt, benennen Sie auch die Ursache des Problems.

(Beispiel: Versprödung des Materials durch zu hohe Linienlast)

4. Sind Ihnen für die jeweilige Problem-Methode (qualitativ/quantitativ) bekannte Mittel zur Beschreibung der Erscheinung oder Ausprägung beschreiben können?

5. Geben Sie für die jeweiligen Probleme die Sie benannt und/oder angekreuzt haben, erfolgreiche Maßnahmen zur Behebung an. Wenn ja, beschreiben Sie dies bitte kurz, ggf. mit einer Skizze.

**6. Inwiefern beeinflussen die vorhin genannten Probleme den nachfolgenden Prozess der Fertigung? Bitte beschreiben Sie kurz.**

(Bsp. Versprödung der Elektrode beim Wickelprozess, das Versprödungs-Material-Folienrisse auftreten)

**7. Inwiefern beeinflussen die vorhin genannten Probleme die späteren Produkteigenschaften? Bitte beschreiben Sie kurz.**

(Bsp. lokale Dichten, Dickenschwankungen, ungleichmäßige Gasturbinen-Zelle im Betrieb)

**8. a. Welchen Einfluss haben die vorgelagerten Fertigungsprozesse auf das Auftreten der jeweiligen vorhin genannten Probleme? Bitte beschreiben und bewerten Sie dies für jedes Problem auf einer Skala von 1-6. (Vorgelagerte Prozesse: Mischen/Dispergieren, Beschichten, Trocknen)**

**Einfluss**  
 (1=Sehr starker Einfluss, 6=gar kein Einfluss)

**Mischen/Dispergieren**

- \_\_\_\_\_  1  2  3  4  5  6
- \_\_\_\_\_  1  2  3  4  5  6
- \_\_\_\_\_  1  2  3  4  5  6

**Beschichten**

- \_\_\_\_\_  1  2  3  4  5  6
- \_\_\_\_\_  1  2  3  4  5  6
- \_\_\_\_\_  1  2  3  4  5  6

**Trocknen**

- \_\_\_\_\_  1  2  3  4  5  6
- \_\_\_\_\_  1  2  3  4  5  6
- \_\_\_\_\_  1  2  3  4  5  6

b. Welche Einfluss hat das Elektrodendesign auf die Folienstärke beim Auftreten der jeweiligen in der Tabelle genannten Probleme? Bitte beschreiben und bewerten Sie dies für jedes Problem auf einer von Skala 1-6.

**Einfluss**  
(1=Sehr starker Einfluss / 6=gar kein Einfluss)

- \_\_\_\_\_  1  2  3  4  5  6
- \_\_\_\_\_  1  2  3  4  5  6
- \_\_\_\_\_  1  2  3  4  5  6
- \_\_\_\_\_  1  2  3  4  5  6
- \_\_\_\_\_  1  2  3  4  5  6
- \_\_\_\_\_  1  2  3  4  5  6
- \_\_\_\_\_  1  2  3  4  5  6
- \_\_\_\_\_  1  2  3  4  5  6

9. Welche der genannten Probleme sollten vorrangig bearbeitet werden? Bitte stufen Sie die genannten Probleme nach ihrer Relevanz auf einer Skala von 1-6 in unbegründeter Reihenfolge.

Relevanz

(1=Sehr relevant, 6=garnicht relevant)

- \_\_\_\_\_  1  2  3  4  5  6
- \_\_\_\_\_  1  2  3  4  5  6
- \_\_\_\_\_  1  2  3  4  5  6
- \_\_\_\_\_  1  2  3  4  5  6
- \_\_\_\_\_  1  2  3  4  5  6
- \_\_\_\_\_  1  2  3  4  5  6
- \_\_\_\_\_  1  2  3  4  5  6
- \_\_\_\_\_  1  2  3  4  5  6

10. Haben Sie weitere Anmerkungen zum Thema Herausforderungen im Kalandrieren?



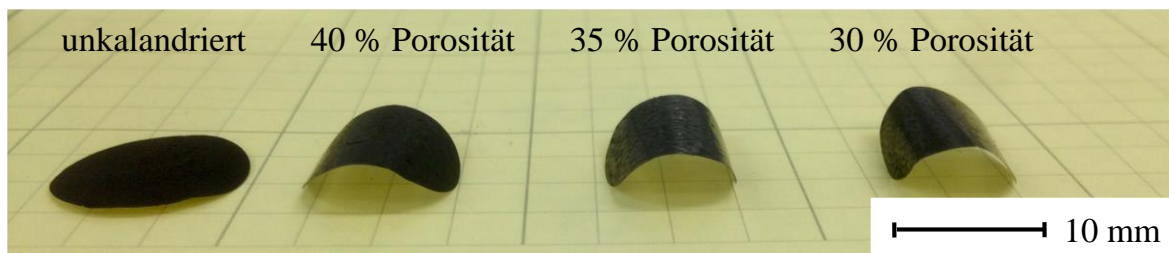
## A5 Fragebogen zur Ermittlung des Einflusses der Fehlerbilder

# Stapeln



Einfluss des Fehlerbildes auf Prozess:	Bedeutung des Fehlerbildes des Einflusses	Begründung warum Fehlerbild den Prozess beeinflusst
Falten am Ableiter	1	Außenkontur im Schattenbild der Elektrode könnte zu Positionsabweichungen führen
Wellen am Beschichtungsrand	1	Außenkontur im Schattenbild der Elektrode könnte zu Positionsabweichungen führen
Elektrodenwelligkeit	2	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Lokale Wellung (1), Außenkontur nicht korrekt in Schattenbild dargestellt</li> <li>- Globale Wellung (1), Verlängerung der Prozesszeit, je nach Einlage ins Magazin (1 oder 2)</li> </ul>
Folienriss	1	Wenn Folienriss am Rand (Eckreferenzierung des Schattenbildes) (0) wenn Folienriss in „Mitte“, wenn der Riss bis über die Mitte geht, dann (2)
Lokale Dicken- und Dichteschwankung	0	
Elektrodenversprödung	1	Elektrode kann bei Stapelprozess „brechen“
Partikeleindruck	0	
Partikelriss	0	
Versiegelte Oberflächenporen	0	
Riss in der Beschichtung	0	
Bandsäbel	1	Tritt nur auf, wenn in Schattenbild sichtbar, Schattenbild inkorrekt → Positionsabweichung beim Stapeln
Schichtablösung	1	Verschmutzung der Vakuumgreifer, Schattenbild mit Elektrode und Fehlerbild Schichtablösung nicht korrekt, eventuell falsche Reflexion möglich

## A6 Bogigkeit



*Abbildung 12-2 Querbogen an runden Stanzlingen aus NMC-111-Kathoden von links nach rechts mit steigender Verdichtungsrate*

## A7 Universalprüfmaschine für Abreiß-, Biege- und Scherversuche

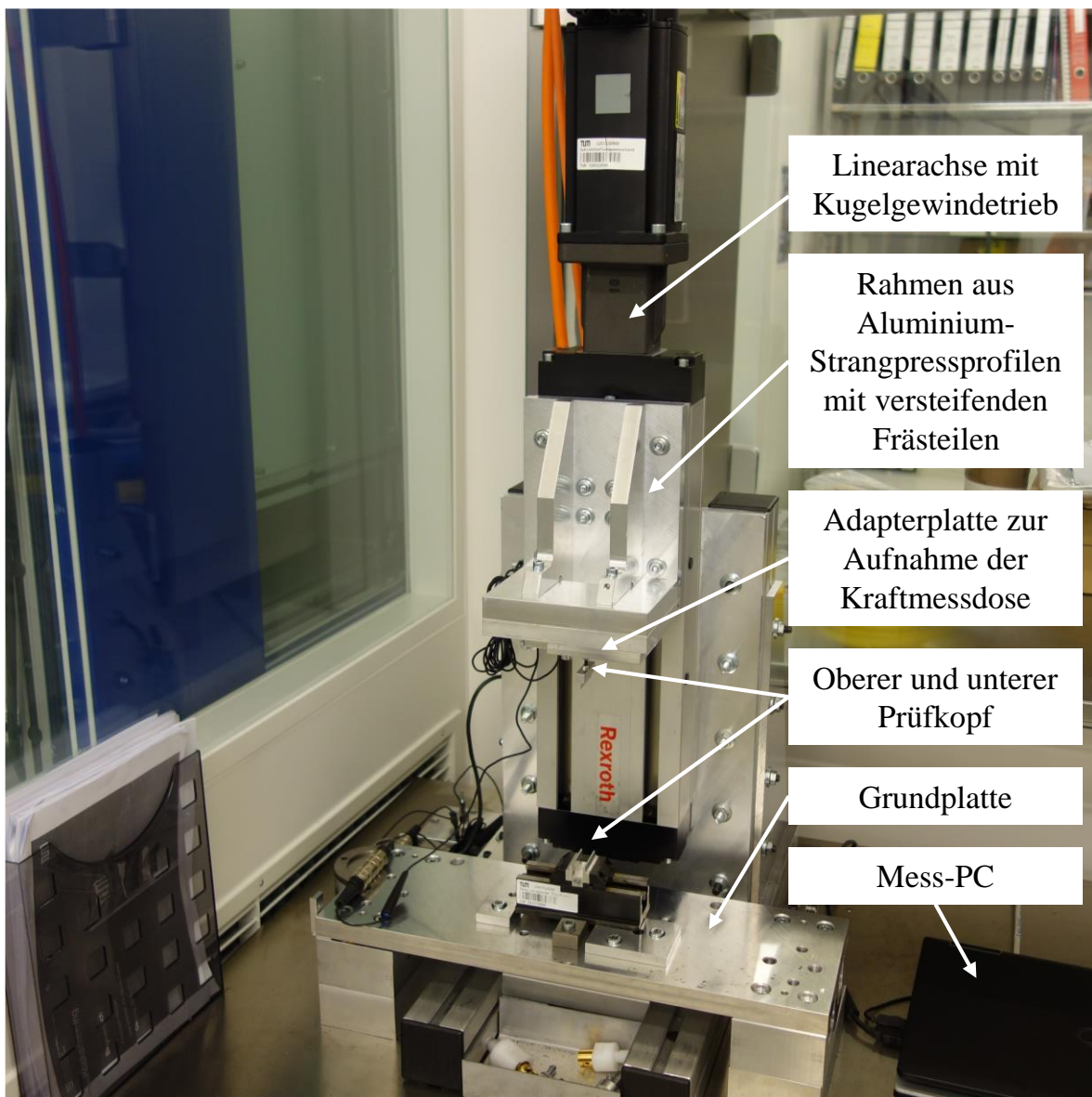
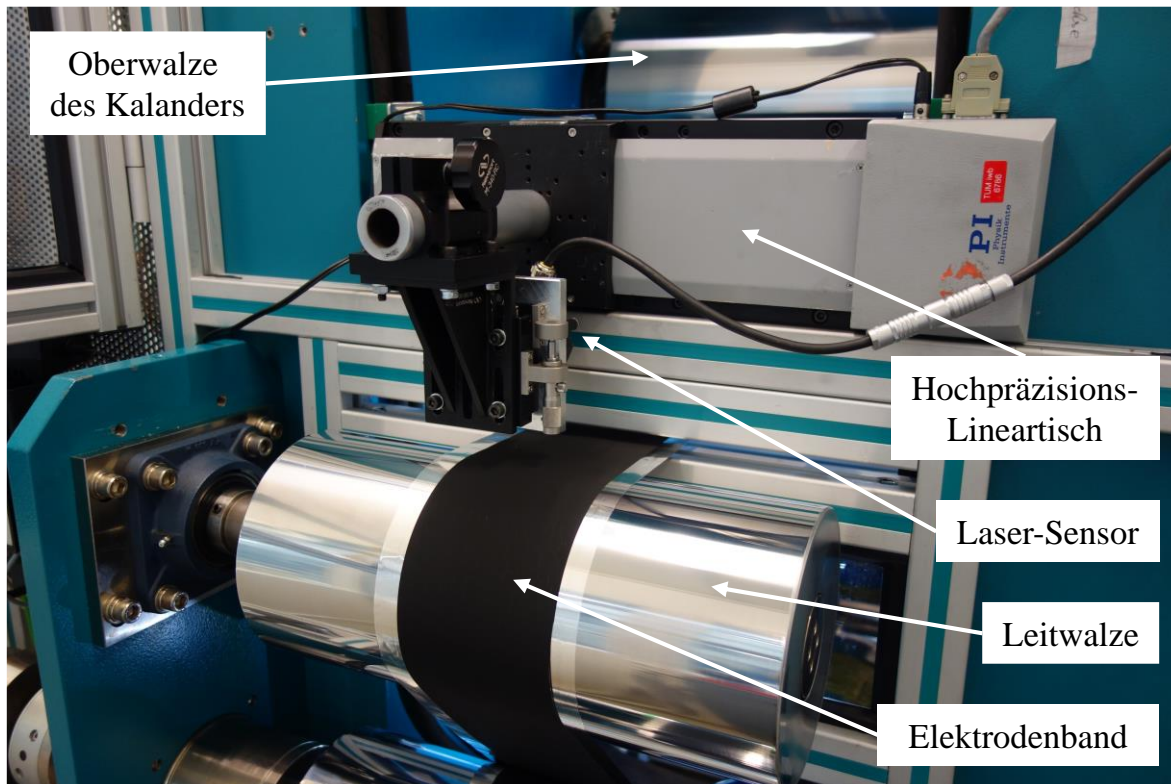


Abbildung 12-3: Für die Abreiß-, Biege- und Scherversuche eingesetzte UPM in der Konfiguration des Drei-Punkt-Biegeversuchs

## A8 Prototypischer Aufbau des Planheitsmesssystems



*Abbildung 12-4: Prototypischer Aufbau des Planheitsmesssystems auf der Aufwicklerseite des Kalanders des iw b montiert*

## A9 Messprogramm

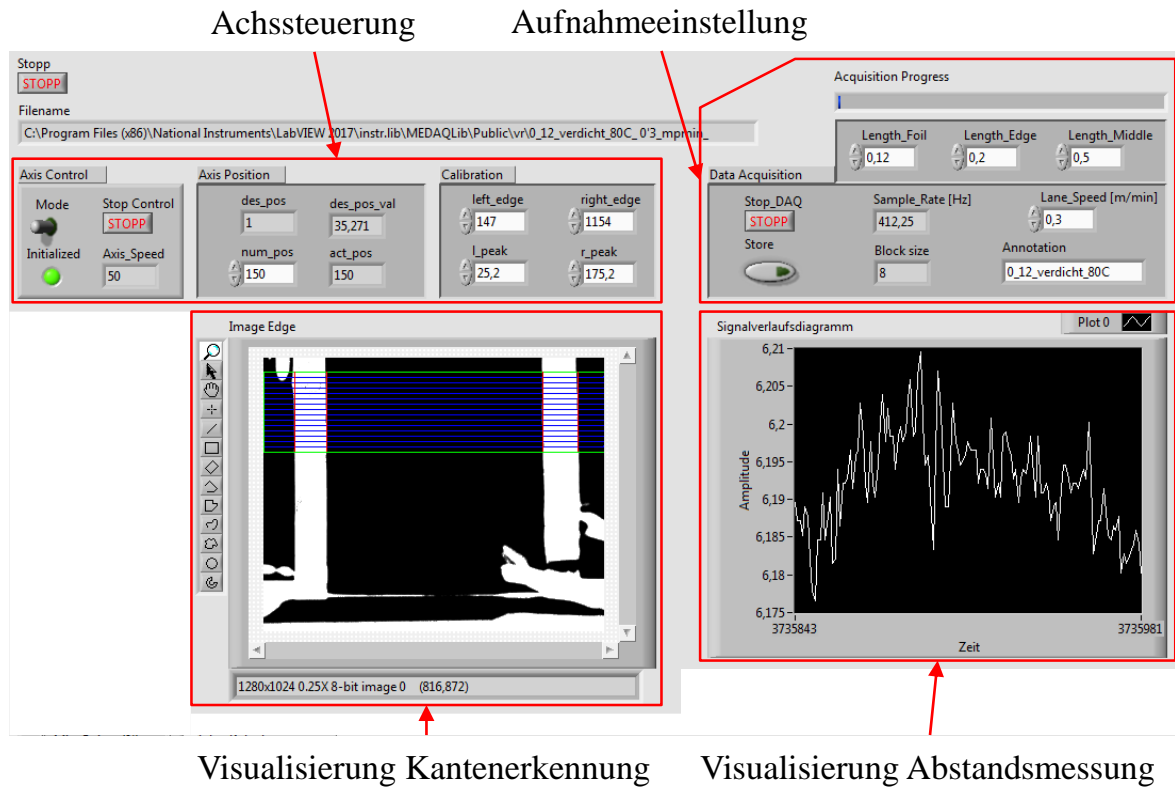


Abbildung 12-5: Visualisierung der Software des Planheitsmesssystems in Labview 2019

## A10 Elektrodenwelligkeit

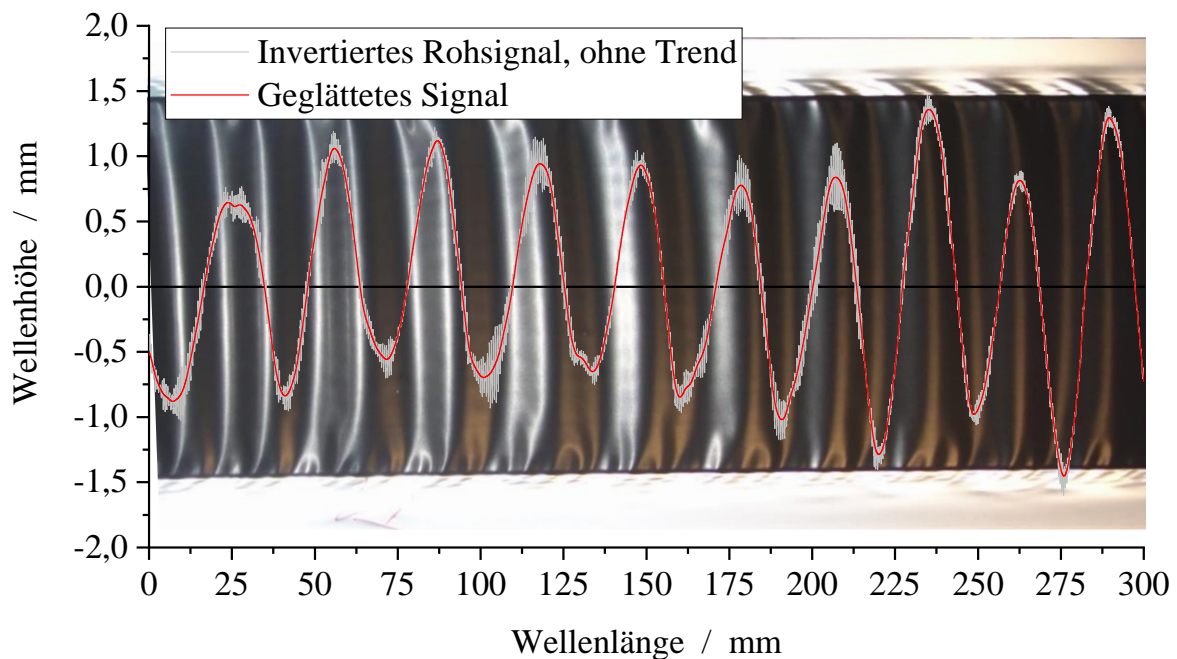


Abbildung 12-6: Überlagerung eines Fotos einer Elektrode in der Draufsicht und des Graphen des entsprechenden Messsignals der Elektrodenwelligkeit

## A11 Experimentelles

### Material

Die eingesetzten Formulierungen stammen größtenteils aus dem Forschungsprojekt *ExZellTUM*<sup>48</sup>. Die Bestandteile der Formulierung sind in Tabelle 12-3 gegeben. Die in dieser Arbeit gefertigte Anode besteht aus Grafit als Aktivmaterial und PVDF als Binder. NMP wird als Lösungsmittel zur Beschichtung verwendet. Aufgrund der hohen Leitfähigkeit von Grafit werden keine Leitzusätze verwendet. Beschichtet wurde die *Slurry* auf eine walzharte Kupferfolie mit 150 mm Breite und 12  $\mu\text{m}$  Dicke.

<sup>48</sup> <https://www.ei.tum.de/ees/forschungsprojekte/abgeschlossene-projekte/exzelltum/>, Zugriff am 10.12.2021.

Tabelle 12-3: Eingesetzte Elektrodenmaterialien

	Produkt	Hersteller	Massenanteil
Anode	<b>Aktivmaterial</b> Grafit (T160)	SGL GROUP	95 %
	<b>Binder</b> PVDF (Kynar® HSV 900)	ARKEMA INC.	5 %
	<b>Lösungsmittel</b> NMP	SIGMA ALDRICH INC.	–
	<b>Substrat</b> Kupferfolie (SE-CU58)	SCHLENK AG	–
Kathode	<b>Aktivmaterial</b> NMC-111 (NCM)	BASF SE	96 %
	<b>Binder</b> PVDF (Solef® 5130)	SOLVAY SA	2 %
	<b>Leitruß</b> Super C65	TIMCAL LTD.	2 %
	<b>Lösungsmittel</b> NMP	SIGMA ALDRICH INC.	–
	<b>Substrat</b> Aluminiumfolie, weich, glatt, Legierung 8079	KORFF AG	–

Das Kathodenaktivmaterial ist in dieser Arbeit NMC-111. Weitere Bestandteile der Formulierung sind Leitruß und PVDF als Binder. Die Materialien werden ebenso in NMP gelöst. Als Substratfolie kamen hier walzweiche (Härtegrad O) Aluminiumfolien in 15 µm und 20 µm Dicke und jeweils 150 mm Breite zum Einsatz. Die Massenanteile wurden in Anlehnung an publizierte Industrieformulierungen mit hohem Aktivmaterialanteil gewählt (MARKS ET AL. 2011, S. A52).

### Elektrodenherstellung

Die Elektroden wurden auf der *iwb*-Forschungsproduktionslinie (REINHART ET AL. 2013) gefertigt. Zur Herstellung der Anoden- und Kathoden-*Slurry* wurden zwei Planetenzentrifugalmischer verwendet. Bei diesem Mischprinzip werden die Materialien in einen Becher gegeben, der doppelt asymmetrisch rotiert. Die wirkenden Zentrifugalkräfte liefern die erforderliche Energie. Die Mischer sind vom selben Hersteller und unterscheiden sich nur in der Mischkapazität. Das zulässige Volumen betrug für die Anode 1500 g bis 3000 g (SpeedMixer DAC 3000 HP, HAUSCHILD GMBH & Co. KG) und bis zu 1100 g für die Kathode (SpeedMixer DAC 1100 VAC-P, HAUSCHILD GMBH & Co. KG). Obwohl es sich um dasselbe Mischprinzip handelt, variieren die Mischsequenzen je nach Behältergröße und Menge (z. B. Rotationsgeschwindigkeit oder Mischzeit).

Eine Gegenüberstellung der Mischsequenzen für die Anoden- und Kathoden-*Slurry* ist in Abbildung 12-7 zu sehen. Im ersten Schritt werden das Aktivmaterial, der Binder und ggf. der Leitruß trocken gemischt, bis sich eine homogene Binder-Leitruß-Matrix um die Aktivmaterialpartikel ausbildet. Es folgt die schrittweise Zugabe von Lösungsmittel, um die Pulvermaterialien im Lösungsmittel homogen zu dispergieren und den Feststoffgehalt sukzessive zu reduzieren. Voruntersuchungen zur sog. sequentiellen Verdünnung haben verbesserte Ergebnisse hinsichtlich der Verarbeitbarkeit der *Slurry* und der mechanischen Eigenschaften der beschichteten Elektroden im Vergleich zu einer einstufigen Verdünnung, bei der das Lösungsmittel in einem Schritt vollständig zugegeben wird, gezeigt (GÜNTHER ET AL. 2016). Weiter beeinflusst die Lösungsmittelmenge maßgeblich das resultierende Fließverhalten und damit die Viskosität der *Slurry*. Dabei betrug die Masse des Aktivmaterials der Anode 1000 g und der Kathode 500 g. Nicht aufgetragen sind die Pausenzeiten, die erforderlich sind, um die Temperatur der *Slurry* abzusenken. Zu hohe Temperaturen könnten die Bestandteile schädigen oder zu einer Verdunstung des Lösungsmittels führen. Mit einem Rheometer wurden die Fließkurven aufgenommen, um die rheologischen Eigenschaften der *Slurry* zu überprüfen. Ein sog. Grindometer wurde eingesetzt, um die *Slurry* auf Agglomerate zu untersuchen. Der Grenzwert wurde auf 20–25 µm gesetzt.

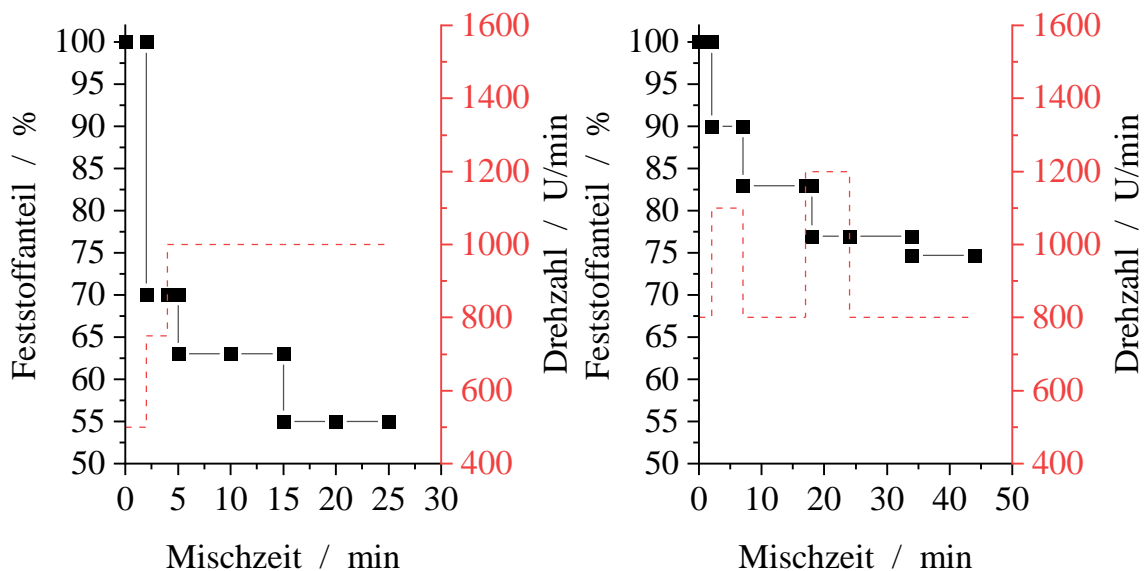


Abbildung 12-7: Mischsequenz für die Anoden- (links) und Kathoden-*Slurry* (rechts) mit dem Feststoffanteil und der Drehzahl über der Mischzeit

Die *Slurry* wurde unmittelbar nach dem Dispergieren dem Beschichtungsprozess zugeführt. Die Beschichtungsanlage BC50 (COATEMA COATING MACHINERY GMBH) ist in einem Reinraum der Klasse ISO 6 aufgestellt, um gleichmäßige



Umgebungsbedingungen zu gewährleisten und den Anforderungen an technischer Sauberkeit gerecht zu werden. Als Auftragssystem wurde eine Rakel verwendet, die über einen Rakeltrog mit *Slurry* versorgt wurde. Bei der Rakelbeschichtung wird der Auftrag vornehmlich durch den Spalt zwischen Rakel und Auftragswalze bestimmt. Die Beschichtungsbreite wurden entsprechend des Beschichtungsdesigns in Abbildung 12-8 auf ca. 110 mm mit sog. Pastenbegrenzern eingestellt.

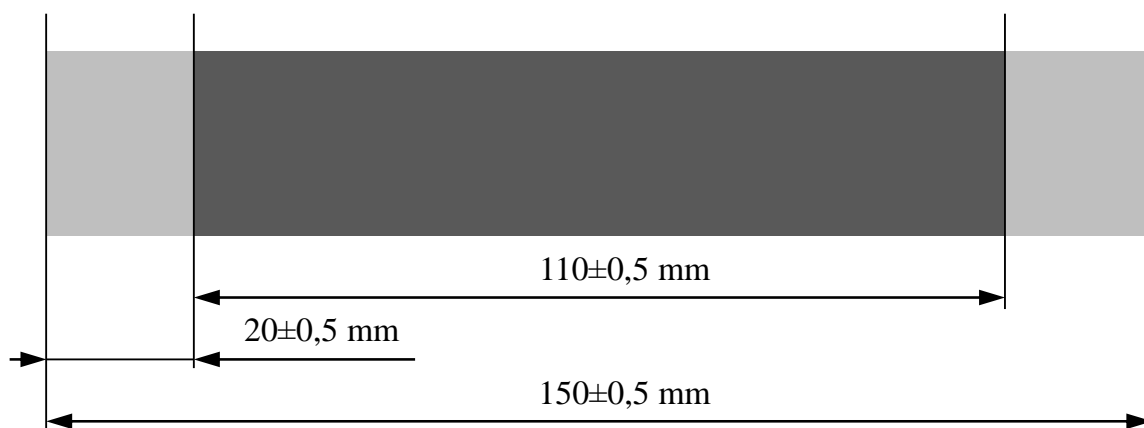


Abbildung 12-8: Abmessung der Elektrode mit Angabe der Breite des Beschichtungstreifens und der Ableiter

Da es sich um ein Rolle-zu-Rolle-Verfahren handelt, befindet sich nach dem Auftragswerk ein Durchlauftrockner. Der Trockner besteht aus drei einzelnen Kammern, was eine separate Einstellung der Temperatur ermöglicht. Als Wärmequelle sind in jedem Trockner jeweils drei Infrarotlampen oberhalb der Beschichtung verbaut. Um ein Entzünden des Lösungsmittels zu verhindern, werden der Trockner mit Stickstoff inertisiert und das ausgedampfte Lösungsmittel abgesaugt.

Die Massenbeladung wurde auf den entsprechenden Zielwert mit einer Toleranz von  $\pm 0,5$  mg/cm<sup>2</sup> eingestellt und *inline* per Ultraschallabsorption mit dem Messsystem USMX 200 (MESYS GMBH) ermittelt. Zusätzlich wurden Stichproben aus dem Elektrodenband ausgestanzt, um *atline* mit einer Mikrowaage AX26 DeltaRange (METTLER-TOLEDO INTERNATIONAL INC.) die Massenbeladung zu messen bzw. zu berechnen. Die Schichtdicke wurde mit einer Bügelmessschraube Micromar 40 ER (MAHR GMBH) gemessen, wobei beim Beschichten v. a. die Massenbeladung überprüft wird, da die Elektrodendicke beim Kalandrieren eingestellt wird.

Doppelseitige Beschichtungen müssen in zwei Arbeitsgängen hergestellt werden. Hierfür wird das Elektrodenband erneut abgewickelt und die Rückseite beschichtet. Die Überlappung von Ober- und Unterseite wurde auf  $\pm 0,5$  mm eingestellt.

Die relevanten Angaben zu Produkt- und Prozessparametern der hergestellten Elektroden liefert Tabelle 12-4. Die Trocknungsrate wurde über die Bahngeschwindigkeit und die Trocknertemperatur bei höheren Massenbeladungen und dickeren Substratfolien bzw. Durchlauf der zweiten Seite angepasst. In der Tabelle ist daher für die Kathode ein Temperaturbereich angegeben.

Tabelle 12-4: Produkt- und Prozessparameter der hergestellten Elektroden

Elektrode	Beladung <sup>49</sup> in mg/cm <sup>2</sup>	Dicke		Bahn- geschwindigkeit in m/min	Trocknertemperatur		
		Schicht <sup>50</sup> in µm	Folie		in °C		
Anode	7,37	≈ 80	12	1,0	55	75	95
	11,96	≈ 125		0,5			
Kathode	13,00	≈ 60	15	1,0	55	65–70	75–95
			20				
	19,50	≈ 85	15	1,0			
			20				

### Versuchsanlagen

In dieser Arbeit kam hauptsächlich der Kalandrier EA102 (COATEMA COATING MACHINERY GMBH) zum Einsatz. Dabei handelt es sich um einen Zweiwalzen-Kalandrier in I-Form der für den Rolle-zu-Rolle-Betrieb konzipiert wurde, wobei ein manueller Einschub für Einzelblätter nachgerüstet wurde. Sowohl Walzendurchmesser als auch -ballenbreite betragen 400 mm. Die Walzenoberfläche ist hart verchromt. Zwei Hydraulikzylinder drücken die Oberwalze über eine Linearführung mit 30t auf die Unterwalze. Bei der maximalen Arbeitsbreite von 300 mm entspricht dies einer Linienlast von 1000 N/mm.

Der Kalandrier kann entweder auf Druck oder auf Spalt eingestellt werden. Der Spalt wird jenseits von den Walzen über einen Keil eingestellt, der auf einer schiefen Auflagefläche liegt und über eine Spindel mittels eines Handrads bewegt wird. Durch Verschieben des Keils in Richtung der Auflage wird der Walzenspalt vergrößert und umgekehrt verkleinert. Alternativ kann der Keil auch zurückgefahren werden, sodass

<sup>49</sup> Die Massenbeladung bezieht sich auf das Aktivmaterial.

<sup>50</sup> Dickenangabe zur getrockneten, einseitigen Beschichtung.

---

die Oberwalze auf der Elektrode aufliegt. In diesem Fall wird die Verdichtung über den Druck eingestellt. Hier kann über Rändelschrauben der Druck in den Hydraulikzylindern eingestellt und über die Druckanzeige abgelesen werden.

Die Walzen können über ein externes Temperiergerät TT-288 (TOOL-TEMP GMBH) von RT (ca. 23 °C) auf 150 °C über ein Wärmeträgeröl erhitzt werden. Die Bahngeschwindigkeit lässt sich von 0,1 m/min bis 3,0 m/min und die Bahnspannung von 10 N bis 250 N einstellen. Eine Zugtrennung zwischen dem Ab- und Aufwickler lässt sich durch die Klemmung der Elektrode im Walzspalt realisieren. Durch die seitliche Verschiebung des Aufwicklers wird der Bahnlauf bzw. die Aufwicklung geregelt.

Zusätzlich zur Technikumsanlage am *iwb* wurde am Lehrstuhl für Technische Elektrochemie (TEC) der Technischen Universität München ein Laborkalander verwendet. Der Kalandrier GK(L) 300 L (SAUERESSIG GMBH & CO. KG) unterscheidet sich v. a. durch seine kleineren Dimensionen und Betriebsart. Die Walzen haben einen Durchmesser von 200 mm bei einer Walzenballenbreite von 300 mm. Der Kalandrier liefert bei 291 mm Arbeitsbreite 500 N/mm Linienlast. Es werden Einzelblätter eingeschoben und auf Spalt kalandriert. Die Unterwalze wird vertikal gegen die Oberwalze gedrückt. Die Walzen können ebenso bis auf 150 °C temperiert werden, jedoch durch Induktion.

### **Versuchsdurchführung**

Die Versuchsdurchführung ist zweigeteilt. Die geometrischen Fehlerbilder wurden *inline* gemeinsam mit dem Kalandrieren der Kathoden gemessen. Anschließend wurden die Proben konfektioniert und mechanisch sowie bzgl. ihrer Struktur charakterisiert.

An den Kalandrern unterscheidet sich das Vorgehen zwischen Anode und Kathode bis auf die Probengeometrie nicht. Das Elektrodenband wurde für jede Faktorkombination unterteilt, ohne es zu trennen. Die Abschnitte wurden am blanken Folienrand beschriftet, um eine spätere Zuordnung beim Abwickeln des Elektrodenbandes zu ermöglichen.

Die Elektrodendicke wurde vor und nach dem Kalandrieren gemessen, um die Porosität bzw. Verdichtungsrate zu berechnen. Der Kalandrierspalt wurde zunächst mit einer Fühlerlehre (PRECISION BRAND PRODUCTS INC.) eingestellt und anschließend bis Erreichen der geforderten Elektrodendicke angepasst. Das Vorgehen greift v. a. dann, wenn sich der Spalt beim Warmkalandrieren durch thermische Ausdehnung geändert hat.

Die Randomisierung der Walzentemperatur wurde, wie im vorangegangenen Abschnitt erläutert, zugunsten eines geringeren Einstellaufwands aufgegeben. Abbildung 12-9 zeigt zur Verdeutlichung die Aufheizzeiten für die eingesetzten Versuchsanlagen. Um eine möglichst gleichmäßige Temperatur längs und quer zur Rotationsachse zu erreichen, wurden die Walzen nach Erreichen der Zieltemperatur mindestens 60 Minuten im Leerlauf rotiert.

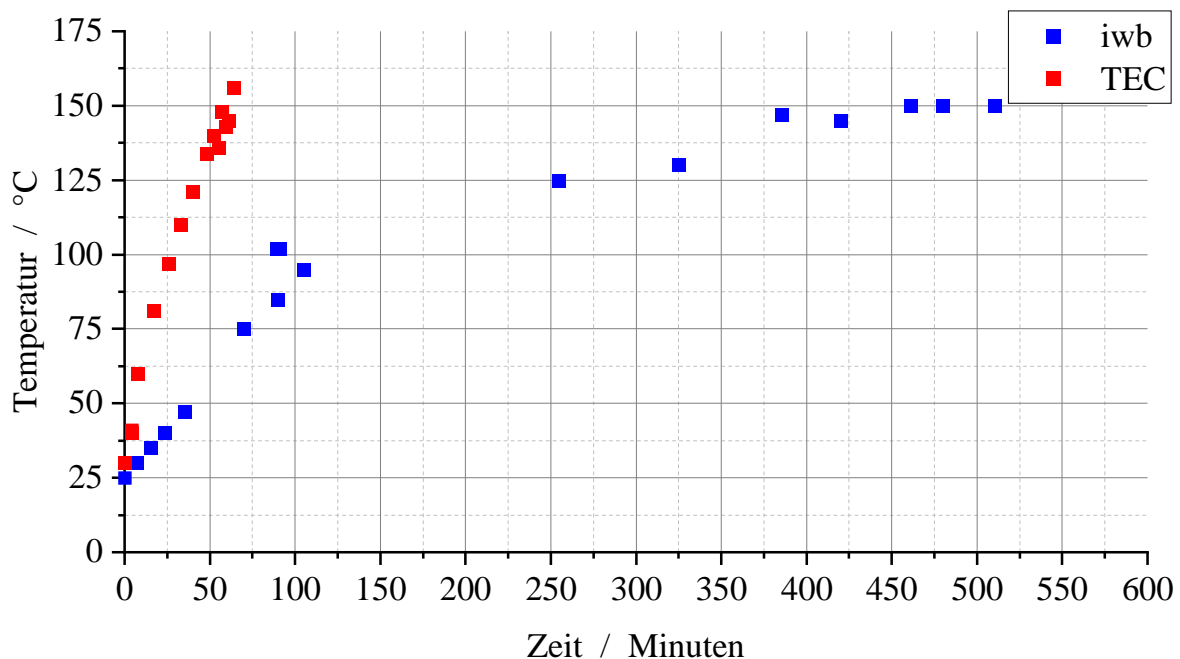


Abbildung 12-9: Walzentemperatur in Abhängigkeit von der Zeit an den Kalandern des iw und TEC

Im zweiten Schritt wurden die Elektroden auf die strukturbedingten und mechanischen Fehlerbilder hin untersucht. Um den Materialaufwand zu reduzieren, wurden bei den Kathoden dieselben Bandabschnitte zugeschnitten, die zuvor *inline* geometrisch vermessen worden waren. Weiter wurde auch für die Proben des Abreiß-, Scher- und Biegeversuch die Symmetrie des Kathodenbandes quer zur MR angenommen, was die Probenentnahme auf einen Kathodenrand und die Bahnmitte beschränkt. Dabei ist zu berücksichtigen, dass das Kathodenmaterial möglichst gleichmäßig beschichtet und verdichtet wurde. Zum Verhalten von Kalandern sei auf SCHREINER ET AL. (2019, S. 2 ff.) verwiesen.

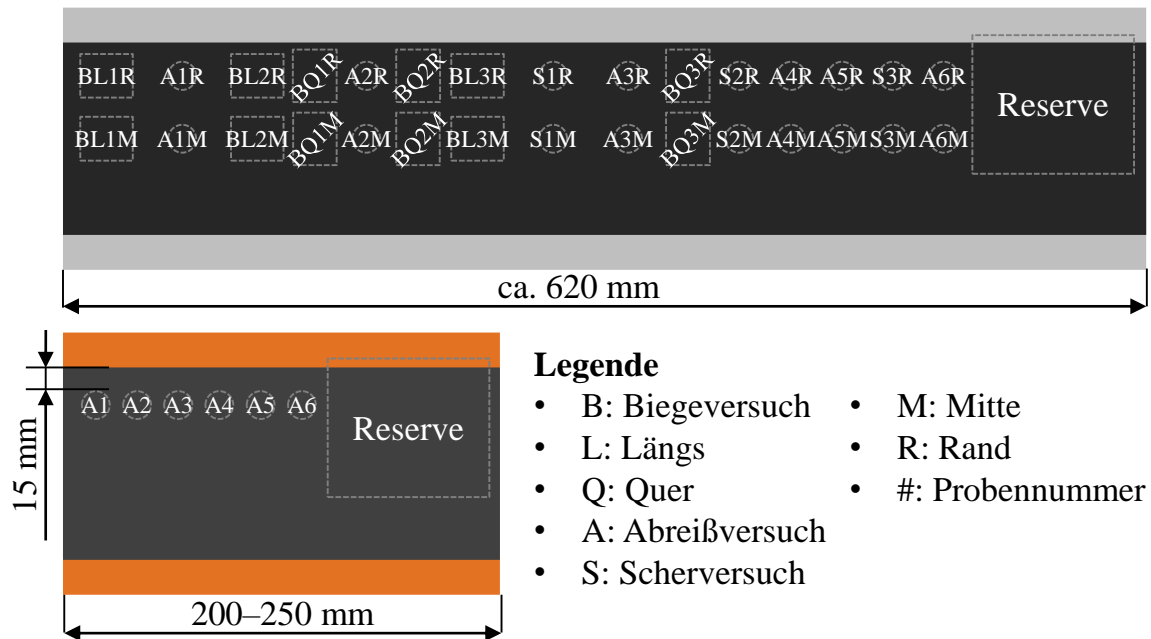


Abbildung 12-10: Probenentnahmesystematik für Kathode und Anode

Abbildung 12-10 zeigt die Probenentnahmesystematik für den Abreiß-, Scher- und Biegeversuch. Die Stanzlinge wurden willkürlich entlang des Probenabschnitts entnommen, um Trends auszuschließen. Bei der Kathode wurden die Proben jeweils am Elektrodenrand und in Bahnmitte entnommen, um zu prüfen, ob die Eigenschaften sich unterscheiden. Die Proben für die Biegeversuche wurden zudem quer und längs zur MR gestanzt, um mögliche Unterschiede aufgrund der Walzrichtung zu untersuchen. Für die Anoden wurden die Proben in MR in Reihe entnommen, um eine möglichst gleichmäßige Walzentemperatur zu gewährleisten, da dieser Prozessparameter im Fokus stand.

Die Elektroden konnten nicht wiederholt produziert werden, da die verfügbare Menge an Elektrodenmaterialien dies nicht erlaubt hat. Dafür wurden die Messungen wiederholt. Dabei wurde stets ein Ausreißertest nach Grubbs durchgeführt. Um Wiederholungsmessungen zu ermöglichen, wurde ein Reservebereich vorgesehen. Außerdem wurden Proben aus diesem Bereich für spätere Untersuchungen aufbewahrt (z.B. REM-Aufnahmen). Für eine detaillierte Beschreibung der Auswertungsmethoden sei auf Abschnitt 5.2.2 und 5.3.3 verwiesen.

## A12 Versuchspläne

### Anode

*Tabelle 12-5: Vollfaktorieller Versuchsplan der Anoden (Hauptversuch ‚Anode‘)*

Durchlaufreihenfolge	Porosität in %	Walzentemperatur in °C
1	55	25
2	45	25
3	40	25
4	35	25
5	30	25
6	25	25
7	20	25
8	55	50
9	45	50
10	40	50
11	35	50
12	30	50
13	25	50
14	20	50
15	55	75
16	45	75
17	40	75
18	35	75
19	30	75
20	25	75
21	20	75

22	55	100
23	45	100
24	40	100
25	35	100
26	30	100
27	25	100
28	20	100
29	55	125
30	45	125
31	40	125
32	35	125
33	30	125
34	25	125
35	20	125

*Tabelle 12-6: Angepasster D-optimaler Versuchsplan der Anoden  
(Zusatzversuch ‚Anode‘)*

<b>Durchlauf- reihenfolge</b>	<b>Schicht- dicke</b>	<b>Porosität</b>	<b>Walzen- temperatur</b>	<b>Bahn- geschwindigkeit</b>	<b>Walzen- Ø</b>	<b>1- oder 2-stufig</b>
–	in µm	in %	in °C	in m/min	in mm	–
1	125	30	150	0,5	400	1
2	125	25	150	1,5	400	2
3	125	35	150	0,5	400	2
4	125	25	25	0,5	400	1
5	125	35	25	1,5	400	1
6	125	25	25	0,5	400	2

---

7	80	25	25	1,5	400	1
8	80	35	25	0,5	400	1
9	80	35	25	1,5	400	2
10	125	25	150	0,5	200	1
11	125	35	150	1,5	200	1
12	125	30	150	1,5	200	2
13	125	35	150	0,5	200	2
14	125	25	25	1,5	200	1
15	125	30	25	1,5	200	1
16	125	35	25	0,5	200	1
17	125	25	25	0,5	200	2
18	125	25	25	1,5	200	2
19	125	30	25	0,5	200	2
20	125	35	25	1,5	200	2
21	80	25	150	1,5	200	1
22	80	35	150	0,5	200	1
23	80	25	150	0,5	200	2
24	80	35	150	1,5	200	2
25	80	25	25	0,5	200	1
26	80	35	25	1,5	200	1
27	80	25	25	1,5	200	2
28	80	35	25	0,5	200	2



## Kathode

Tabelle 12-7: Vollfaktorieller Versuchsplan der Kathoden (Hauptversuch ,Kathode'), wobei die Zusatzpunkte unterstrichen sind (Zusatzversuch ,Kathode').

Durchlaufreihenfolge	Standardreihenfolge	Massenbeladung in mg/cm <sup>2</sup>	Folien- dicke in µm	Walzen- temperatur in °C	Verdichtungs- rate
12	1	13	15	25	0,12
<u>13</u>	<u>2</u>	<u>13</u>	<u>15</u>	<u>25</u>	<u>0,16</u>
1	3	13	15	25	0,2
<u>2</u>	<u>4</u>	<u>13</u>	<u>15</u>	<u>25</u>	<u>0,24</u>
3	5	13	15	25	0,28
5	6	13	15	80	0,12
<u>4</u>	<u>7</u>	<u>13</u>	<u>15</u>	<u>80</u>	<u>0,16</u>
6	8	13	15	80	0,2
<u>7</u>	<u>9</u>	<u>13</u>	<u>15</u>	<u>80</u>	<u>0,24</u>
8	10	13	15	80	0,28
<u>9</u>	<u>11</u>	<u>13</u>	<u>15</u>	<u>40</u>	<u>0,12</u>
<u>10</u>	<u>12</u>	<u>13</u>	<u>15</u>	<u>40</u>	<u>0,2</u>
<u>11</u>	<u>13</u>	<u>13</u>	<u>15</u>	<u>40</u>	<u>0,28</u>
<u>15</u>	<u>14</u>	<u>13</u>	<u>15</u>	<u>120</u>	<u>0,12</u>
<u>14</u>	<u>15</u>	<u>13</u>	<u>15</u>	<u>120</u>	<u>0,2</u>
<u>16</u>	<u>16</u>	<u>13</u>	<u>15</u>	<u>120</u>	<u>0,28</u>
17	17	19,5	15	80	0,12
18	18	19,5	15	80	0,2
19	19	19,5	15	80	0,28

20	20	19,5	15	25	0,12
21	21	19,5	15	25	0,2
22	22	19,5	15	25	0,28
23	23	19,5	15	25	0,2
24	24	19,5	15	25	0,2
25	25	19,5	15	25	0,2
26	26	13	20	25	0,12
27	27	13	20	25	0,2
28	28	13	20	25	0,28
29	29	13	20	80	0,12
30	30	13	20	80	0,2
31	31	13	20	80	0,28
32	32	19,5	20	80	0,12
33	33	19,5	20	80	0,2
34	34	19,5	20	80	0,28
35	35	19,5	20	25	0,12
36	36	19,5	20	25	0,2
37	37	19,5	20	25	0,28

*Tabelle 12-8: Vollfaktorieller Versuchsplan der Kontrollversuche zur Untersuchung der Haftfestigkeit an Kathoden*

<b>Durchlaufreihenfolge</b>	<b>Porosität</b>	<b>Walzen-temperatur</b>	<b>Bahn-geschwindigkeit</b>	<b>Walzen-durchmesser</b>
–	in %	in °C	in m/min	in mm
1	45	23	1	200
2	40	23	1	200
3	35	23	1	200
4	30	23	1	200
5	25	23	1	200
6	45	80	1	200
7	40	80	1	200
8	35	80	1	200
9	30	80	1	200
10	25	80	1	200
11	20	80	1	200
12	45	100	1	200
13	40	100	1	200
14	35	100	1	200
15	30	100	1	200
16	25	100	1	200
17	20	100	1	200
18	45	120	1	200
19	40	120	1	200
20	35	120	1	200

21	30	120	1	200
22	25	120	1	200
23	20	120	1	200
24	40	23	1	400
25	35	23	1	400
26	30	23	0,5	400
27	30	23	1	400
28	30	23	2	400
29	25	23	1	400

### A13 Versuchsdokumentation

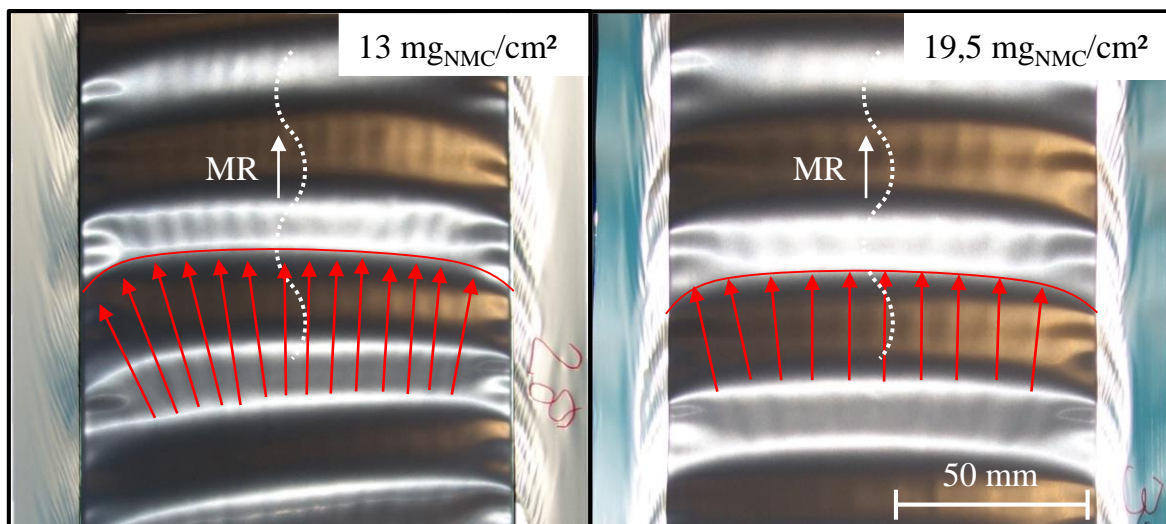


Abbildung 12-11: Beobachtete ‚Querwellen‘ an Elektrode mit 13 mg<sub>NMC</sub>/cm<sup>2</sup> Massenbeladung links und 19,5 mg<sub>NMC</sub>/cm<sup>2</sup> Massenbeladung rechts

## A14 Wirtschaftlichkeitsberechnung

Tabelle 12-9: Annahmen und Daten zur Wirtschaftlichkeitsbewertung

Parameter	Wert	Einheit	Quelle
Produktionskapazität	6	GWh	Eigene Abschätzung
Zelllänge BEV	173	mm	Norm DIN 91252, S. 9
Folienbreite	750	mm	Eigene Abschätzung
Beschichtungsbreite	335	mm	
Streifenanzahl	2	–	
Beladung (einseitig)	200	g/m <sup>2</sup>	ANDRE ET AL. 2015, S. 6719
Flächenmasse Folie	32,4	g/m <sup>2</sup>	SCHMUCH ET AL. 2018, S. 268
Spezifische Kapazität NMC-811	210	mAh/g	JUNG ET AL. 2018, S. A133
Massenanteil NMC-811	96	%	Eigene Abschätzung
Flächenkapazität	80,64	Ah/m <sup>2</sup>	Zwischenergebnis
Zellspannung	3,7	V	SCHMUCH ET AL. 2018, S. 270
Flächenenergie	298,37	Wh/m <sup>2</sup>	Zwischenergebnis
Energie pro Bandmeter	199,91	Wh/m	Zwischenergebnis
Bandlänge pro Jahr	30.014,023	km	Zwischenergebnis
Länge Mutterrolle	3.000	m	Eigene Abschätzung basierend auf Rollenmasse
Anzahl Mutterrollen pro Jahr	10.005	–	Zwischenergebnis
Länge Probe Bandsäbelmessung	1,5	m	Eigene Abschätzung

Wechselkurs Euro gegenüber US-Dollar	1,1918	–	EUROPÄISCHE ZENTRALBANK 2021
Materialpreis Aluminium	6,00 5,03	USD/kg €/kg	SCHMUCH ET AL. 2018, S. 275
Materialpreis NMC	24,00 20,14	USD/kg €/kg	
Materialpreis Binder (PVDF)	9,50 7,97	USD/kg €/kg	NELSON ET AL. 2019, S. 86
Materialpreis Leitruß	6,80 5,71	USD/kg €/kg	
Materialpreis NMP	3,10 2,60	USD/kg €/kg	
Massenanteil Binder bzw. Leitruß	2	%	Eigene Abschätzung
Feststoffanteil Slurry	70	%	Eigene Abschätzung
Anzahl Bandsäbelmessungen	1	–	Eigene Abschätzung
Dauer Bandsäbelmessung	300	s	Eigene Abschätzung
Verfügbare jährliche Arbeitsstunden	1.470	h/a	SCHÜNEMANN 2015, S. 178
ERA-Monatsentgelt (brutto) EG 3/Stufe A	2.568	€/a	IG METALL 2018, S. 1
Arbeitgeberbelastung	52.387,20	€/a	1,7-fache Bruttoentgelt nach SCHÜNEMANN (2015, S. 178)
Stundenlohn	35,64	€/h	Zwischenergebnis