

Mario Rentsch

Einfluss der Werkstoffeigenschaften
und der Verfahrensparameter auf
die Ausbildung von mehrlagigen
Ultraschall-Fügeverbindungen in
Lithium-Ionen-Batterien

Technische Universität Dresden
Fakultät Maschinenwesen

Dissertation

**Einfluss der Werkstoffeigenschaften und der
Verfahrensparameter auf die Ausbildung von
mehrlagigen Ultraschall-Fügeverbindungen in
Lithium-Ionen-Batterien**

zur Erlangung des akademischen Grades eines

Doktoringenieurs
(Dr.-Ing.)

Mario Rentsch

Promotionskommission:

Vorsitzender: Prof. Dr. rer. medic. Hans-Peter Wiesmann

Gutachter: Prof. Dr.-Ing. Christoph Leyens
Prof. Dr.-Ing. habil. Uwe Füssel

Weitere Mitglieder: Prof. Dr.-Ing. Steffen Großmann
Prof. Dr.-Ing. habil. Thorsten Schmidt

Tag der Einreichung: 14.05.2019

Tag der Verteidigung: 18.09.2020

Berichte aus der Werkstofftechnik

Mario Rentsch

**Einfluss der Werkstoffeigenschaften und der
Verfahrensparameter auf die Ausbildung von
mehrlagigen Ultraschall-Fügeverbindungen in
Lithium-Ionen-Batterien**

Shaker Verlag
Düren 2021

Bibliografische Information der Deutschen Nationalbibliothek

Die Deutsche Nationalbibliothek verzeichnet diese Publikation in der Deutschen Nationalbibliografie; detaillierte bibliografische Daten sind im Internet über <http://dnb.d-nb.de> abrufbar.

Zugl.: Dresden, Techn. Univ., Diss., 2020

Copyright Shaker Verlag 2021

Alle Rechte, auch das des auszugsweisen Nachdruckes, der auszugsweisen oder vollständigen Wiedergabe, der Speicherung in Datenverarbeitungsanlagen und der Übersetzung, vorbehalten.

Printed in Germany.

ISBN 978-3-8440-7865-7

ISSN 0945-1056

Shaker Verlag GmbH • Am Langen Graben 15a • 52353 Düren

Telefon: 02421 / 99 0 11 - 0 • Telefax: 02421 / 99 0 11 - 9

Internet: www.shaker.de • E-Mail: info@shaker.de

Danksagung

Mein Dank gilt allen voran meinem Doktorvater, Herrn Prof. Dr.-Ing. Christoph Leyens, für die Überlassung des Forschungsthemas sowie seine methodische und fachliche Unterstützung bei der Erstellung der Dissertation während meiner Tätigkeit als wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Werkstoffwissenschaft der Technischen Universität Dresden.

Herrn Prof. Dr.-Ing. habil. Uwe Füssel möchte ich herzlich für die Übernahme der Zweitbegutachtung danken.

Maßgeblich zum Gelingen der wissenschaftlichen Arbeit hat meine Betreuerin, Frau Dr.-Ing. Birgit Vetter, beigetragen. In zahlreichen fachlichen Diskussionen lieferte sie wertvolle Impulse und Ratschläge.

Dank gebührt Herrn Dipl.-Ing. Jürgen Hofmann für seine Hilfe bei der Herstellung zahlreicher Untersuchungsproben sowie Frau Tamara Friedrich und Frau Dr.-Ing. Antje Schlieter für die Durchführung mehrerer Härtemessungen.

Frau Dr.-Ing. Veneta Schubert und die Mitarbeiterinnen des Metallografielabors leisteten Hilfestellungen bei Präparationen und Bewertungen der Gefüge.

Weiterhin bedanke ich mich bei Herrn Dipl.-Phys. Axel Mensch und Frau Dipl.-Ing. Silvia Mühle für ihre Unterstützung bei den Untersuchungen am Rasterelektronenmikroskop.

Für grundlegende theoretische Hinweise und Anregungen zu den elektrischen Messungen gebührt Herrn Dr.-Ing. Stephan Schlegel, für die technische Umsetzung Herrn Gero Wiemann großer Dank.

Bei Dr. Ricarda und Ursula Rauschenberg bedanke ich mich für ihre Korrekturassistenz.

Mein besonderer Dank gilt schließlich meinen Eltern, meinem Bruder sowie meiner Lebensgefährtin für das in mich gesetzte Vertrauen, ihre bestärkenden Worte und kontinuierliche Unterstützung.

Kurzfassung

Die Speicherung elektrischer Energie ist ein zentrales Thema für den Erfolg der Elektromobilität. Vielversprechend sind Speichersysteme, die auf der Lithium-Ionen-Technologie basieren. Eine großformatige Lithium-Ionen-Zelle besteht aus einem Mehrlagensystem von Anoden-, Separator- und Kathodenfolien, welche an den passenden Ableiter gefügt (Ultraschallfügen) und von einem lithiumhaltigen Elektrolyten umgeben sind. Die metallischen Trägerfolien auf Aluminium- und Kupferbasis durchlaufen ausgehend von ihrer Lagerung, der Elektrodenherstellung, über die Zellfertigung bis zur fertigen Batterie zahlreiche technologische Schritte.

Bereits das Ausgangsgefüge der Metallfolien und die daraus resultierenden Eigenschaften bestimmen die Auswahl der Prozessparameter für die nachfolgende Fertigung. Zusätzlich ändern sich im Laufe des gesamten Produktionszyklus das Gefüge und die Eigenschaften der Folien maßgeblich.

In Abhängigkeit von den Technologieschritten der Elektroden- und Zellfertigung wurden an den metallischen Trägerfolien und den Ableiterwerkstoffen Untersuchungen zu ihren Gefüge-Eigenschaftsveränderungen durchgeführt. Aufbauend auf diesen Ergebnissen wurden Werkstoffmodelle für das Ultraschallfügen der Mehrlagenstapel an den Ableiter entwickelt. An den hergestellten Fügeverbindungen wurden analog zu den Fügepartnern die mechanischen und elektrischen Eigenschaften bestimmt und bewertet.

Damit wird das Verständnis werkstoffseitiger Einflussgrößen auf die Elektrodenfertigung und auf die Herstellung von mehrlagigen Ultraschallfügeverbindungen in großformatigen Lithium-Ionen-Zellen erweitert. Die Bedeutung einer gezielten Werkstoffauswahl für die Prozessstabilität zur Herstellung von Lithium-Ionen-Batterien wird sichtbar.

Abstract

Storing electrical energy is a key issue for the success of electromobility. Storage systems based on lithium ion technology are a promising solution.

A large format lithium ion battery consists of multilayer anode, separator and cathode foils which are fixed on a suitable conductor by ultrasonic welding and surrounded by an electrolyte containing lithium.

Carrier foils based on aluminium and copper pass through many technological stages starting with their storage, through electrode manufacture and cell production, up to the final battery construction.

The metallic foils' microstructure and the resulting properties determine the choice of process parameters for the subsequent production steps. However, the joint and foil structure change significantly during the course of the entire production cycle.

In this work the influence of the various technological stages of the electrode and cell production, on the microstructure property relationship of the metallic carrier foils, the conductors and their joints were investigated.

Based on the results, material models for the ultrasonic welding of multilayer foils to the conductor were developed. The mechanical and electrical characteristics of the individual foils making up the joint as well as the joints were determined and assessed. As a consequence, knowledge about the material factors influencing the production of the electrode and multilayer ultrasonic welded joints in large format lithium ion batteries was extended.

The importance of a specific material selection for the process stability is obvious.

Inhaltsverzeichnis

ABKÜRZUNGSVERZEICHNIS.....	XIII
1 EINLEITUNG.....	1
2 STAND DER TECHNIK.....	5
2.1 Aufbau und Funktionsweise einer Lithium-Ionen-Zelle.....	5
2.2 Fertigungsschritte der Zellherstellung	6
2.3 Anode einer Lithium-Ionen-Zelle	8
2.3.1 Zelleiter der Anode	8
2.3.2 Trägerfolie der Anode.....	10
2.3.3 Aktivmaterial der Anode	21
2.4 Kathode einer Lithium-Ionen-Zelle	22
2.4.1 Zelleiter der Kathode	22
2.4.2 Trägerfolie der Kathode.....	24
2.4.3 Aktivmaterial der Kathode	27
2.5 Separator.....	27
2.6 Verbinden von Elektrodenstapeln einer Lithium-Ionen-Zelle mit der Ultraschallfügetechnik	28
2.6.1 Prinzip der Metall-Ultraschallfügetechnik	29
2.6.2 Mechanismen zur Bildung der Fügeverbindung	30
2.6.3 Wichtige Verfahrensparameter zur Herstellung der Fügeverbindung	35
2.6.4 Werkstoffeinfluss auf die Fügeverbindung	38
3 VERSUCHSDURCHFÜHRUNG.....	43
3.1 Versuchsbedingungen.....	43
3.1.1 Versuchsmatrizen untersuchter Werkstoffkombinationen und variierter Fügeparameter.....	43
3.1.2 Ultraschallfügeverbindungen an der Anode	49

3.1.3	Ultraschallfügeverbindungen an der Kathode.....	50
3.2	Charakterisierung der Fügepartner	51
3.2.1	Chemische Analyse.....	52
3.2.2	Bestimmung der Oberflächenrauheit R_z	52
3.2.3	Ermittlung der elastischen Konstanten bei Raumtemperatur mittels Impuls-Echo-Verfahren	53
3.2.4	Ermittlung der mechanischen Eigenschaften $R_{p0,2}$, R_m und A bei Raumtemperatur und erhöhten Temperaturen	54
3.2.5	Metallografische Untersuchungen der Fügepartner	56
3.2.6	Ermittlung der Härte mit den Prüfverfahren nach Vickers und der instrumentierten Eindringprüfung	56
3.2.7	Messung der elektrischen Leitfähigkeit	59
3.3	Charakterisierung mehrlagiger Ultraschallfügeverbindungen.....	60
3.3.1	Sichtprüfung der Fügepunkte	61
3.3.2	Ermittlung von F_{max} mittels Scherzugversuch.....	62
3.3.3	Metallografische Untersuchungen an den Fügepunkten	63
3.3.4	Ermittlung der Härte der Fügepunkte mit den Prüfverfahren nach Vickers und der instrumentierten Eindringprüfung.....	63
3.3.5	Messung des elektrischen Widerstands der Fügepunkte	64
4	VERSUCHSERGEBNISSE	69
4.1	Charakterisierung der Fügepartner im Ausgangszustand	69
4.1.1	Chemische Analyse.....	69
4.1.2	Bestimmung der Oberflächenrauheit R_z	70
4.1.3	Ermittlung der elastischen Konstanten bei Raumtemperatur mittels Impuls-Echo-Verfahren	73
4.1.4	Ermittlung der mechanischen Eigenschaften $R_{p0,2}$, R_m und A bei Raumtemperatur und erhöhten Temperaturen	75
4.1.5	Metallografische Untersuchungen der Fügepartner	89
4.1.6	Ermittlung der Härte mit den Prüfverfahren nach Vickers und der instrumentierten Eindringprüfung	95
4.1.7	Messung der elektrischen Leitfähigkeit	97

4.2	Charakterisierung mehrlagiger Ultraschallfügeverbindungen	99
4.2.1	<i>Sichtprüfung der Fügebereiche</i>	99
4.2.2	<i>Ermittlung von F_{max} mittels Scherzugversuch</i>	103
4.2.3	<i>Metallografische Untersuchungen der Fügepunkte</i>	106
4.2.4	<i>Ermittlung der Härte der Fügepunkte mit den Prüfverfahren nach Vickers und der instrumentierten Eindringprüfung</i>	115
4.2.5	<i>Messung des elektrischen Widerstands der Fügepunkte</i>	119
5	DISKUSSION	125
5.1	Einfluss der Werkstoffeigenschaften auf die Fügeverbindung	126
5.1.1	<i>Ableiterzustand</i>	128
5.1.2	<i>Folienherstellungsverfahren</i>	135
5.2	Einfluss der Verfahrensparameter auf die Fügeverbindung	144
5.2.1	<i>Energieeintrag in die Fügeverbindung</i>	144
5.2.2	<i>Sonotrodenamplitude</i>	146
5.2.3	<i>Anpressdruck der Sonotrode</i>	148
5.2.4	<i>Variation der Verfahrensparameter</i>	152
5.3	Einfluss der Größe des Folienstapels	155
5.4	Einfluss der Werkstoffeigenschaften und der Verfahrensparameter auf die Verbindungsausbildung innerhalb des Fügebereichs	160
5.4.1	<i>Plastische Verformung der Fügezone</i>	160
5.4.2	<i>Erholung, Rekristallisation und Kornwachstum</i>	163
5.5	Verbindungsbildung	167
6	ZUSAMMENFASSUNG	173
7	AUSBLICK	175
8	ANHANG	177
8.1	Anhang Stand der Technik	177
8.2	Anhang Versuchsdurchführung	185

8.3	Anhang Versuchsergebnisse.....	189
8.4	Anhang Diskussion.....	194
9	LITERATUR	195
10	ABBILDUNGSVERZEICHNIS	209
11	TABELLENVERZEICHNIS	215