



Alexander Uwe Schmid (Autor)
**Charakterisierung und Transformation des
Alterungsverhaltens von Li-Ionen Zellen**

Herausgeber: Prof. Dr. Kai Peter Birke

ENERGIE & NACHHALTIGKEIT
Elektrische Energiespeichersysteme

Alexander Uwe Schmid

**Charakterisierung und Transformation des
Alterungsverhaltens von Li-Ionen Zellen**

Elektrische
Energiespeichersysteme



Nachhaltige
CO₂-Kreisläufe



Elektromobilität &
Batterietechnologie



Cuvillier Verlag Göttingen
Internationaler wissenschaftlicher Fachverlag

<https://cuvillier.de/de/shop/publications/8289>

Copyright:
Cuvillier Verlag, Inhaberin Annette Jentsch-Cuvillier, Nonnenstieg 8, 37075 Göttingen,
Germany
Telefon: +49 (0)551 54724-0, E-Mail: info@cuvillier.de, Website: <https://cuvillier.de>

Abstract

The extraction of electrode materials from Li-ion cells and their reassembly in three-electrode-cells can reveal the state of health of the cell. Furthermore, investigating the aging behavior of the extracted electrode material in coin cells needs measurement equipments with by orders of magnitude lower power demand and thus provides safety advantages. A cost-benefit analysis shows that aging coin cells is of economic interest, in particular for large high-energy Li-ion cells.

So far there is no standardized procedure to extract the electrode material and to assemble it in three-electrode-cells. Coin cells (PAT-Cells) can be built with a very high reproducibility by means of the preparation method developed in this work. Eight coin cells extracted from a commercial NMC-graphite 94 Ah Li-ion cell achieved a relative standard deviation in the discharge capacity of $COV_C = 0.3\%$. The reassembly of 62 coin cells from a second cell type, NMC-graphite 40 Ah-Li-ion pouch-cells, confirms the low deviation with $COV_C = 1.42\%$. The scatter in capacity of the built coin cells is in the range of industrially manufactured Li-ion cells ($0.16 \leq COV_C \leq 1.3\%$). Washing the electrodes with dimethyl carbonate was not carried out during the preparation since the washing had no effect on the relative capacity of the coin cells, however it increased the resistance and the deviation from the beginning of the cycling of the cells. Coin cells with a $220 \mu\text{m}$ thick separator made out of polypropylene fiber and polyethylene membrane achieved less standard deviation in resistance and capacity during cyclic aging compared to coin cells using the original $25 \mu\text{m}$ thick polypropylene polyethylene separator from the 94 Ah cell.

In this work, 40 Ah-cells and the corresponding coin cells, assembled from the same electrode material, are aged at three different temperatures $T \in [25, 35, 45]^\circ\text{C}$. The measurement results for the cyclic aging show a comparable aging behavior in the coin and the original cells. The capacity of both cell types degrades linearly. The activation energies of the capacity loss in the original $E_a^C = 43,9 \text{ kJ mol}^{-1}$ and coin cells $E_a^C = 40,2 \text{ kJ mol}^{-1}$ are similar. Characterization methods are used to detect the

occurring aging mechanisms in the cycled cells without any damage to the cells: Loss of lithium is the main cause for the drop in capacity in both cell types at $T = 25^\circ\text{C}$. The increasing proportion of loss of active material in the original cell increases by temperature, which is observable in the coin cells as well.

The reaction rates of cyclic aging in the coin cells are faster by a factor of 8 as in the 40 Ah-cells for all three investigated temperatures $T \in [25, 35, 45]^\circ\text{C}$. Additional aging measurements under inert gas atmosphere in combination with Energy-dispersive X-ray Spectroscopy disclosed a transmission of moisture into the coin cells. The resulting degradation of the conducting salt is a superposed aging mechanism which accelerates the coin cells aging. The linear increase of degradation products on the graphite electrodes over measurement time in the coin cells, caused by the degradation of conducting salt, is not directly related to the observed capacity loss. Hence, the dominating temperature dependent cyclic aging mechanisms of the original cells are still comparable to the coin cell format in a qualitative manner. The lower aging rates of the calendarically aged cells prevent a comparability between the coin and original cells caused by the superposed salt degradation. In general, a quantitative aging comparison is not meaningful by using this method. Local inhomogeneous aging effects in the original cell are strongly dependent on geometric and electro-thermal parameters which can not be transferred to the coin cell format.

The qualitative temperature and path dependent aging of the 40 Ah-cell can be reconstructed in coin cells: The calendar aging part subtracted from the cyclic capacity curve is temperature dependent and the aging behavior of the investigated cell chemistry is commutative. A cycled and subsequently calendarically aged cell degrades faster than the one which has calendarically aged first followed by cyclic aging. This path dependency can be explained by an earlier growing reaction surface area possibly occurring due to the particle cracking. The relative developments in capacity and resistance of both cell types are comparable.

Zusammenfassung

Die Extraktion von Elektrodenmaterial aus Li-Ionen Zellen und dessen Wiederaufbau in Drei-Elektroden-Zellen kann den Gesundheitszustand des Elektrodenmaterials und die Alterungsursache der Li-Ionen Zelle offen legen. Darüber hinaus bietet eine Alterungsuntersuchung des extrahierten Zellmaterials in Knopfzellen eine um Größenordnungen geringere Leistungsanforderung an das Messsystem, was zu Sicherheitsvorteilen führt. Eine Kosten-Nutzen-Abschätzung zeigt, dass die Alterung in Knopfzellen vor allem für sehr große Hochenergiezellen ökonomisch interessant ist.

Bisher gibt es kein standardisiertes Verfahren zur Extraktion und zum Aufbau der Drei-Elektroden-Zellen. Mit dem in dieser Arbeit entwickelten Präparationsverfahren lassen sich Knopfzellen (PAT-Zellen) mit einer sehr hohen Reproduzierbarkeit hinsichtlich Entladekapazität aufbauen. Acht Knopfzellen aus einer kommerziell produzierten, prismatischen NMC-Graphit 94 Ah-Li-Ionen Zelle erzielten eine relative Standardabweichung in der Entladekapazität von $COV_C = 0,3\%$. Die Reassemblierung von 62 Knopfzellen aus einem zweiten Zelltyp, NMC-Graphit 40 Ah-Li-Ionen Pouch-Zellen, bestätigt die niedrige Streubreite mit $COV_C = 1,42\%$. Die Streuung in der Kapazität der aufgebauten Knopfzellen liegt im Bereich der Streuung von industriell gefertigten Li-Ionen Zellen ($0,16 \leq COV_C \leq 1,3\%$). Bei der Zellpräparation wurde auf das Auswaschen der Elektroden mit Dimethylcarbonat verzichtet. Das Auswaschen hatte keinen maßgebenden Effekt auf die relative Kapazität der Knopfzellen, erhöhte jedoch deren Widerstand und Streuung unmittelbar nach dem Zusammenbau der Zellen. Knopfzellen mit einem 220 μm dicken, aus Polypropylenfaser und Polyethylen-Membran bestehenden, Separator erzielten eine geringere Streuung im Widerstand und in der Kapazität während der zyklischen Alterung im Vergleich zu Knopfzellen mit dem 25 μm dicken Polypropylen-Polyethylen-Originalseparator aus der 94 Ah-Zelle.

In der Arbeit werden 40 Ah-Zellen und aus demselben Elektrodenmaterial aufgebaute Knopfzellen bei drei verschiedenen Temperaturen $T \in [25, 35, 45]^\circ\text{C}$ gealtert.

Die Messergebnisse für den zyklischen Alterungsfall zeigen ein zum Originalsystem vergleichbares Alterungsverhalten in den Knopfzellen. Die Kapazitätsentwicklungen beider Zelltypen verlaufen zeitlich linear. Die Aktivierungsenergien des Kapazitätsverlusts sind in den Original- $E_a^C = 43,9 \text{ kJ mol}^{-1}$ und Knopfzellen $E_a^C = 40,2 \text{ kJ mol}^{-1}$ ähnlich. Mithilfe von Charakterisierungsmethoden können die in beiden Zelltypen ablaufenden Alterungsmechanismen für die zyklische Alterung zerstörungsfrei abgeschätzt werden: Verlust von Lithium ist Hauptursache für den Kapazitätsverlust beider Zelltypen bei $T = 25^\circ\text{C}$. Der stärker werdende Anteil an Aktivmaterialverlust in der Originalzelle mit steigender Temperatur konnte ebenso in den Knopfzellen festgestellt werden.

Die Reaktionsraten der zyklischen Alterung sind in den Knopfzellen für alle drei untersuchten Temperaturstützstellen $T \in [25; 35; 45]^\circ\text{C}$ um den Faktor 8 schneller als in den 40 Ah-Zellen. Zusätzlich durchgeführte Alterungsmessungen unter Schutzgasatmosphäre offenbarten in Kombination mit der Energiedispersiven Röntgenspektroskopie-Analyse einen Feuchtigkeitseintrag in die Knopfzellen. Die dadurch ablaufende Leitsalzzersetzung ist ein überlagerter Alterungsmechanismus, welcher die Alterung der Knopfzellen beschleunigt. Der lineare Anstieg der Degradationsprodukte auf den Graphit-Elektroden in den Knopfzellen mit der Messzeit, verursacht durch die Leitsalzdegradation, steht jedoch nicht im direkten Verhältnis zum festgestellten Kapazitätsabfall. Daher bleiben die dominierenden, temperaturabhängigen zyklischen Alterungsmechanismen der Originalzellen im Knopfzellformat qualitativ vergleichbar. Die geringeren Alterungsraten der kalendarisch gealterten Zellen verhindern durch die überlagerte Leitsalzdegradation eine Vergleichbarkeit zwischen den Knopf- und Originalzellen. Generell ist ein quantitativer Alterungsvergleich mit dieser Methode nicht sinnvoll. Lokal begrenzte, inhomogene Alterungseffekte der Originalzelle sind stark abhängig von geometrischen und elektro-thermischen Parametern, die im Knopfzellenformat nicht abgebildet werden können.

Die qualitative Temperatur- und Pfadabhängigkeit der zyklischen Alterung der 40 Ah-Zelle konnte in den Knopfzellen nachgestellt werden: Der vom zyklischen Kapazitätsverlauf abgezogene kalendarische Alterungsanteil ist temperaturabhängig und das Alterungsverhalten der untersuchten Zellchemie kommutativ. Eine zyklisch und anschließend kalendarisch gealterte Zelle alterte schneller als eine zuerst kalendarisch und dann zyklisch gealterte, identische Zelle. Die beobachtete Pfadabhängigkeit lässt sich durch die aufgrund von Partikel-Cracking zeitlich früher entstehende, größere Reaktionsfläche erklären. Die relativen Entwicklungen in der Kapazität und in den Widerständen beider Zelltypen sind vergleichbar.

Kapitel 1

Einleitung

1.1 Motivation

Lithium-Ionen (Li-Ionen) Zellen revolutionierten den Markt wiederaufladbarer mobiler Energiespeicher durch ihre hohen volumetrischen und gravimetrischen Energiedichten ($> 400 \text{ Wh l}^{-1}$; $> 200 \text{ Wh kg}^{-1}$ [1]) sowie durch ihre langen Lebensdauern (> 2000 Zyklen bis 80% der initialen Kapazität) [2]. Diese Kombination aus hoher Energiedichte, niedriger Alterungsrate und relativ niedrigen Kosten macht diese Zelltechnologie als Speichermedium für portable elektronische Geräte, Kraftfahrzeuge und als Großspeicher zur Speicherung von Erneuerbarer Energie attraktiv. Die Erfindung der Li-Ionen Zelle wurde mit dem Nobelpreis in Chemie 2019 honoriert [2].

Um eine Lebensdauerprognose des gesamten Batteriespeichers in einem Anwendungsfall abgeben zu können, muss zuerst die Alterung auf Zellebene verstanden werden. Die Alterung von Li-Ionen Zellen ist von mehreren Faktoren wie dem Zellmaterial (der Zellchemie), der Zellform (der Zellgeometrie) und den Betriebsbedingungen abhängig. Die Betriebsbedingungen umfassen Parameter wie die Stromrate (C-Rate), die Entladetiefe pro Zyklus (Depth-of-Discharge *DOD*) oder die Zelltemperatur T . So müssen bisher sehr viele Tests mit unterschiedlichen Betriebsbedingungen für einen einzelnen Zelltyp durchgeführt werden, um das Alterungsverhalten einer Zelle bei beliebiger Belastung mit ausreichender Genauigkeit prognostizieren zu können. Für die Zyklisierung von Hochenergie Li-Ionen Zellen mit hohen Kapazitäten (einige 10 bis mehrere 100 Ah) oder von Hochleistungszellen mit einigen 10 C muss außerdem ein teures Messequipment bereitgestellt werden, um die erforderlichen Ströme bereitzustellen. Der Trend der letzten Jahre zeigt, dass die Kapazitäten der

im Automotive-Bereich eingesetzten Li-Ionen Zellen ansteigen [3]. Durch die Nutzung von Drei-Elektroden-Zellen (Knopfzellen mit Kapazitäten von etwa 4-10 mAh) können Alterungstests mit einer um Größenordnungen geringeren Leistungsanforderung pro Testkanal durchgeführt werden. Das bedeutet, dass bei gleichen Kosten im Vergleich zu Alterungstests mit der Originalzelle eine größere Anzahl an Tests parallelisiert werden kann, wodurch Aufwand und damit die Gesamtkosten für die Alterungsuntersuchung von Li-Ionen Zellen reduziert werden könnten. Außerdem bietet die Zyklisierung von Knopfzellen aufgrund des niedrigen Stroms Sicherheitsvorteile im Vergleich zur Arbeit an elektrischen Schaltungen mit hochstromfähigen Li-Ionen Zellen. Als Voraussetzungen sind zum einen eine minimal-invasive und reproduzierbare Präparationsprozedur (Extraktion und Wiederaufbau) des Zellmaterials aus der Originalzelle essentiell [4] (siehe Kapitel 4). Zum anderen darf das veränderte Zellgehäuse inklusive neuem Separator und Elektrolyt das Alterungsverhalten des Elektrodenmaterials nicht verändern (siehe Kapitel 5).

In dieser Arbeit wird ein neu entwickeltes Präparationskonzept vorgestellt, mit dem Zellmaterial aus kommerziellen Li-Ionen Zellen entnommen und Knopfzellen reproduzierbar aufgebaut werden können. Dieses Präparationskonzept wird an zwei verschiedenen Li-Ionen Zellen erfolgreich getestet. Des Weiteren werden Charakterisierungsverfahren vorgestellt, mit deren Hilfe die Alterungsmechanismen der Li-Ionen Zellen identifiziert werden können. Drei-Elektroden-Zellen bieten hierzu den Vorteil, über die gemessenen Halbzellenpotentiale den Alterungsmechanismus festzustellen [5, 6]. Diese Arbeit belegt, dass die grundlegenden Alterungsmechanismen unter zyklischer Belastung zwischen den hier untersuchten 40 Ah-Li-Ionen Pouch-Zellen und den aus neuen 40 Ah-Zellen extrahierten Knopfzellen vergleichbar sind.

1.2 Aufbau der Arbeit

In **Kapitel 2** werden die in der Fachliteratur beschriebenen Alterungsursachen in Li-Ionen Zellen des in dieser Arbeit verwendeten Typs $C_6/LiMn_{1/3}Ni_{1/3}Co_{1/3}O_2$ (GR/NMC) thematisiert. Außerdem werden Einflussfaktoren wie Geometrie oder die Pfadabhängigkeit in den Alterungskontext eingeordnet und das Alterungsverhalten empirisch beschrieben. Kapazitive Effekte in Li-Ionen Zellen werden vorgestellt und kategorisiert.

Kapitel 3 beschreibt die in dieser Arbeit verwendeten Charakterisierungsmethoden inklusive verwendeter Datenaufbereitung. Differentielle Methoden können zusätzliche Informationen aus Spannungs- bzw. Stromverläufen gewinnen. Post-mortem-Untersuchungen wie Rasterelektronenmikroskopie (REM) oder Energiedispersive Röntgenspektroskopie (EDX) können durch Erkenntnisse über die chemische Zusammensetzung oder die veränderte Morphologie helfen, Rückschlüsse auf den Gesundheitszustand der Zellen (State-of-Health SOH) und deren Elektroden zu tätigen.

In **Kapitel 4** wird beleuchtet, welchen Effekt der Extraktionsprozess des Elektrodenmaterials aus der Originalzelle und das Einfügen des Materials in Knopfzellen auf die Streubreite in Kapazität und Impedanz hat. Es werden mehrere Präparationsparameter identifiziert und verändert, um eine minimalinvasive Präparation zu entwickeln.

Eine ausreichend hohe Reproduzierbarkeit ist notwendig für den Alterungsvergleich in **Kapitel 5**. Zuerst werden die zyklischen und kalendarischen Alterungsverläufe der Original- und der Knopfzellen für drei verschiedene Temperaturstützstellen $T = [25; 35; 45]^\circ \text{C}$ dargestellt und miteinander verglichen. Mithilfe der in Kapitel 3 vorgestellten Charakterisierungsmethoden werden die Hauptalterungsmechanismen für jeden Zelltyp identifiziert. Mehrere potentielle Einflussfaktoren werden eingeführt und bewertet, ob und in welcher Stärke diese die Knopfzellalterung beeinflussen.

In **Kapitel 6** werden zwei grundsätzliche, spezifische Fragestellungen bezüglich des Alterungsverhaltens von Li-Ionen Zellen gestellt: Ist die zyklische Alterung (i) temperatur- oder (ii) pfadabhängig? Eine temperaturunabhängige zyklische Alterung oder eine kommutative Alterungsfunktion könnten die notwendigen Messreihen zur Alterungsprädiktion von Li-Ionen Zellen zusätzlich reduzieren. Mithilfe von empirischen Alterungstests an 40 Ah-Li-Ionen Zellen sowie an Knopfzellen werden diese Fragen beantwortet. Gleichzeitig dient dieses Kapitel als Anwendungsfall dazu, die Eignung der Präparationsmethode zu testen.

Kapitel 2

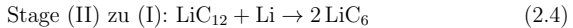
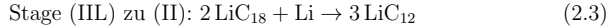
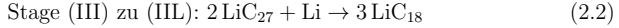
Grundlagen

Li-Ionen Zellen geben ihre gespeicherte Energie ab, indem beim Entladen der Zellen an der positiven Elektrode eine kathodische (Reduktion) und an der negativen Elektrode eine anodische (Oxidation) Reaktion stattfindet. Bei der kathodischen Reaktion an der positiven Elektrode wird die Oxidationszahl des Metalloxids herabgesetzt, sodass die delokalisierten Elektronen im Wirtsgitter über einen äußeren Strompfad abfließen können. An der gegenüberliegenden negativen Elektrode interkalieren die Li-Ionen unter zur Hilfenahme der Elektronen auf die Zwischengitterplätze im Graphit (GR). Wenn im Folgenden von *Kathode* und *Anode* gesprochen wird, meint dies stets die für den Entladefall entsprechende Zuordnung: *Kathode* steht als Synonym für die positive und *Anode* als Synonym für die negative Elektrode.

2.1 Graphit (GR)

Die überwiegende Anzahl an Li-Ionen Zellen besitzen GR aufgrund der hohen spezifischen Leitfähigkeit, der geringen Kosten und der chemischen Stabilität als negatives Aktivmaterial [7]. Ein Netzwerk aus hexagonal angeordneten Kohlenstoffatomen bildet eine GR-Lage aus [8]. Die Van-der-Waals-Kräfte zwischen den GR-Lagen formen die ungeordnete GR-Struktur [7], wobei zwischen den zwei kristallinen Strukturen hexagonal (2H) und rhomboedrisch (3R) unterschieden werden kann [8]. Zwischen den beiden Formen konnte hinsichtlich der spezifischen Interkalationskapazität von Li-Ionen keinen Unterschied festgestellt werden [8]. Die Li-Ionen interkalieren zwischen die GR-Lagen. Im Laufe der Lithiierung von GR werden folgende Phasenübergänge

durchlaufen und den sogenannten *GR-Stages* zugeordnet [7, 9, 10]:



Während der Lithiierung dehnt sich die Kristallstruktur [11] um bis zu 10% aus [9, 12]. Diese Volumenschübe können eine zusätzliche Alterungsursache in Li-Ionen Zellen darstellen [13, 14]. Weiterführende Informationen hierzu in Kapitel 2.5.3.

Die GR-Partikelgröße liegt als Aktivmaterial in der negativen Elektrode in etwa bei $2 \leq p_{\text{GR}} \leq 40 \mu\text{m}$ [15]. Je kleiner die Partikelgröße, desto höher kann der irreversible Kapazitätsverlust in Li-Ionen Zellen aufgrund der größeren Oberfläche ausfallen [15]. Je größer die Partikelgröße und somit je kleiner die effektive Oberfläche ist, desto gehemmter wird der Ladungstransfer und desto ungeeigneter ist das Material für eine Hochstrom-Anwendung.

2.2 Lithium-Nickel-Mangan-Cobalt-Oxid (NMC)

Lithium-Nickel-Mangan-Cobalt-Oxid (NMC) ist ein in Li-Ionen Zellen häufig eingesetztes Elektrodenmaterial [16]. Die exakte Zusammensetzung des Kathodenmaterials der in dieser Arbeit analysierten Li-Ionen Zellen ist $\text{LiMn}_{1/3}\text{Ni}_{1/3}\text{Co}_{1/3}\text{O}_2$ (NMC 111). Vorteile von NMC 111 gegenüber reinen LiCoO_2 (LCO) Elektroden sind geringere Kosten und Sicherheitsvorteile [16]. Reines LiNiO_2 besitzt durch die Bildung von NiO und O Stabilitätsnachteile gegenüber NMC [16]. Das Kristallgitter von LiMn_2O_4 (LMO) Elektroden besitzt im Gegensatz zur Schichtstruktur von NMC eine Spinellstruktur. Die spezifische Kapazität von LMO Elektroden ist deshalb mit $100 - 120 \text{mAh g}^{-1}$ niedriger als von NMC mit $140 - 180 \text{mAh g}^{-1}$ [16]. Die Betriebsspannung von NMC-Elektroden ist etwas geringer als für LCO [17], dafür ist die spezifische Kapazität mit ca. 200mAh g^{-1} höher [18], sodass die Energiedichte mindestens genauso hoch wie bei LCO ist. Die Volumenänderung von NMC 111 während der Lithiierung ist mit $< 4\%$ im Vergleich zu LiCoO_2 oder LiNiO_2 geringer [19]. Dies begünstigt die Zyklisierbarkeit hinsichtlich Lebensdauer [19].

Die Übergangsmetalle in einer NMC-Kathode treten in den Oxidationszuständen Ni^{2+} , Ni^{4+} , Co^{3+} , Co^{4+} und Mn^{4+} auf [20, 21]. Vor dem Ladebeginn einer entladenen Li-Ionen Zelle mit einer NMC-Elektrode ist die Kathode komplett lithiiert. Für eine

Elektrodenstruktur mit $\text{Li}_{1-x}\text{Ni}_{1/3}\text{Co}_{1/3}\text{Mn}_{1/3}\text{O}_2$ ist $x = 0$. Bei der Deinterkalation von positiven Li-Ionen aus dem NMC-Wirtsgitter müssen die Ladungen ausgeglichen werden [22]. Zuerst ändert sich dabei maßgeblich die Oxidationszahl der $\text{Ni}^{2+}/\text{Ni}^{4+}$ -Ionen im Bereich $0 \leq x \leq 2/3$ [20, 23]. Die Oxidationszahl der Cobalt-Ionen $\text{Co}^{3+}/\text{Co}^{4+}$ ändert sich über den kompletten Lithierungsgrad x [20, 23]. Mangan ändert im nicht-defekten Zustand des Mischmetalloxids während der Zyklisierung seinen Oxidationszustand nicht, wodurch die Struktur Stabilität erfährt [20, 22, 23].

2.3 Solid Electrolyte Interface (SEI)

Die im Elektrolyt enthaltenen Lösemittel sind unterhalb von ca. 0.9 V gegen Li/Li⁺ chemisch nicht mehr stabil [24–26]. Dadurch entstehen in den ersten Betriebszyklen (Formierung) eine Vielzahl von unterschiedlich dichten Reaktionsprodukten in Abhängigkeit des Potentials der GR-Elektrode, der Elektrolytzusammensetzung und der Temperatur [24, 25, 27]. Diese Schichten aus Reaktionsprodukten werden folgend als *Solid Electrolyte Interface* (SEI) verstanden. Grundsätzlich ist die Bildung der SEI essentiell für ein stabiles Alterungsverhalten von Li-Ionen Zellen mit GR-Elektroden. Erst durch die Deckschichten wird eine weitere Reaktion der Elektrodenoberfläche mit dem Elektrolyten unterbunden, ohne dass dabei die ionische Leitfähigkeit stark beeinträchtigt wird.

Die SEI besteht hauptsächlich aus Reaktionsprodukten zwischen Li mit Karbonaten und Li mit Fluor (mit Lithiumhexafluorophosphat LiPF_6 als Leitsalz) [25]. Typische Elemente in der SEI sind Li, Phosphor (P), Fluor (F), Sauerstoff (O) und organische Verbindungen [28]. Dabei machen LiF und Li_2CO_3 mehr als die Hälfte der SEI-Schicht aus [13, 25, 29]. Im partikelnahen Bereich sind dichtere Produkte wie LiF und Li_2O vorzufinden, im darüberliegenden separatorenahen Bereich befinden sich organische Produkte und LiF [30]. Permittivität Ethylencarbonat (EC) wird eine entscheidende Rolle an der Deckschichtbildung zugeschrieben [7, 25, 31]. *C.R. Yang et al.* [31] fanden heraus, dass in einem binären Elektrolyten, welcher zum einen aus EC und zum anderen entweder aus Diethylcarbonat (DEC) oder Dimethylcarbonat (DMC) besteht, immer das EC umgesetzt wird und als Edukt zur Bildung der Passivierschicht auf GR einhergeht. Die Autoren vermuten, dass sich die Funktion von DEC oder DMC in einem binären Elektrolyten auf die Verbesserung der ionischen Leitfähigkeit (Permittivität und Viskosität) des flüssigen Elektrolyten beschränkt. Der Aggregatzustand von reinem EC ist unter Raumtemperatur fest.