

Anlagenkonzept zur automatisierten Demontage von End-of-Life Batteriezellen

Mechanische Zelldemontage für das direkte Recycling

S. Henschel, P.-T. Dörner, F. Kößler, J. Fleischer

Die Ziele der Verkehrswende führen zu einem stetig steigenden Bedarf an Lithium-Ionen-Batterien. Damit diese am Ende ihres Lebenszyklus in einigen Jahren nicht als Abfall anfallen, sondern die darin enthaltenen wertvollen Rohstoffe weiter genutzt werden können, ist ein effektives Recycling im Sinne der Kreislaufwirtschaft notwendig. Hierzu wird in diesem Beitrag ein Konzept zur mechanischen Demontage von Batteriezellen als Grundstein für ein direktes Recycling vorgestellt.

STICHWÖRTER

Batteriefertigung, Recycling, Automatisierung

Mechanical battery cell disassembly for direct end-of-life battery recycling

The goals of the transportation revolution are leading to a steadily increasing demand for lithium-ion batteries. To prevent the valuable raw materials in these batteries from ending up as waste as soon as the batteries' life cycle ends in a few years and to ensure that these materials continue to be used, effective recycling in the sense of a circular economy is necessary. To this end, this paper presents an approach for mechanically disassembling battery cells as a cornerstone for direct recycling.

1 Motivation

Die Elektromobilität gewinnt aufgrund der Energie- und Verkehrswende immer mehr an Bedeutung, wie auch die neusten Anstrengungen der EU für eine alleinige Zulassung von Elektroautos ab 2035 zeigen [1]. Somit steigt der Bedarf an Traktionsbatterien, die aufgrund ihrer hohen Leistungs- und Energiedichte meist aus Lithium-Ionen-Zellen aufgebaut sind [2]. Bei der Herstellung der Zellen entfallen bis zu 60 % der Materialkosten auf Rohstoffkosten, bedingt durch den Einsatz seltener Materialien wie Kobalt, Mangan und Lithium. Die Gewinnung dieser Materialien ist sehr energieintensiv und findet häufig in Ländern statt, in denen die Abbaubedingungen weder sicher kontrollierbar noch ethisch vertretbar sind. Des Weiteren besteht die Gefahr, dass sich Deutschland und Europa im Wettbewerb um die Elektromobilität stark abhängig von wenigen produzierenden beziehungsweise raffinierenden Ländern machen. [3, 4]

Nach ihrem Primäreinsatz in Autos werden Batterien derzeit teilweise in Batteriespeicherwerken eingesetzt, um ihre Restleistung zu nutzen. Dadurch erfolgt eine zeitliche Verschiebung des Recyclingzyklus, die Problematik der Materialrückgewinnung wird jedoch nicht überwunden. Zum Start der Wiederverwertung müssen die rückläufigen Batteriepacks aus den Fahrzeugen in einzelne Batteriemodule demontiert werden. Anschließend erfolgt ein Zerlegen der Module in individuelle Zellen. Diese beiden Prozessschritte werden größtenteils manuell oder teilautomatisiert durchgeführt. Grund ist vor allem die hohe Variantenvielfalt in der Bauweise der Batteriepacks [5, 6].

Für die Verarbeitung der einzelnen Zellen gibt es bereits funktionierende Verfahren von Firmen wie Nickelhütte oder Accurec. Dabei werden die Batteriebestandteile durch Schreddern oder

Verbrennen in ein gemeinsames Gemisch überführt und dann die Rohstoffe in molekularer beziehungsweise atomarer Form wieder zurückgewonnen [7]. Beide Ansätze sind bereits im industriellen Maßstab erprobt, sind jedoch problematisch, da nur ein Teil der Rohstoffe wie Kobalt und Nickel zurückgewonnen werden. Andere Rohstoffe wie Lithium, Aluminium oder Mangan können entweder verfahrensbedingt oder bedingt durch den notwendigen hohen Energieeinsatz nicht wirtschaftlich zurückgewonnen werden.

Die dritte Möglichkeit ist das direkte Recycling. Dabei werden die zu recycelnden Batterien so behandelt, dass eine Funktionserhaltung der einzelnen Bestandteile erreicht wird und nicht wie bei den anderen Verfahren ein Herunterbrechen auf die molekulare beziehungsweise atomare Ebene durchgeführt wird. Dafür ist es sinnvoll, die einzelnen Komponenten bestmöglich sortenrein voneinander zu trennen, ohne sie zu schreddern oder zu verbrennen. Für diesen Prozessschritt gibt es auf der Batteriezellebene bisher weder in der Industrie noch in der Forschung hinreichende Lösungsansätze, sodass dieser Prozess mit seinen Besonderheiten und Herausforderungen Thema dieses Beitrags ist.

2 Stand der Technik und Herausforderungen bei konventionellen Recyclingverfahren

Aktuell stellen zwei Verfahrenswege den Stand der Technik für das Recycling von Lithium-Ionen-Batterien dar. Das pyrometallurgische und das hydrometallurgische Verfahren werden dabei zusammen auch als konventionelle Recyclingverfahren bezeichnet. Die Gemeinsamkeit der Verfahren besteht darin, dass sie auf der Zerkleinerung oder Zersetzung der Batteriezellen bis auf ihre

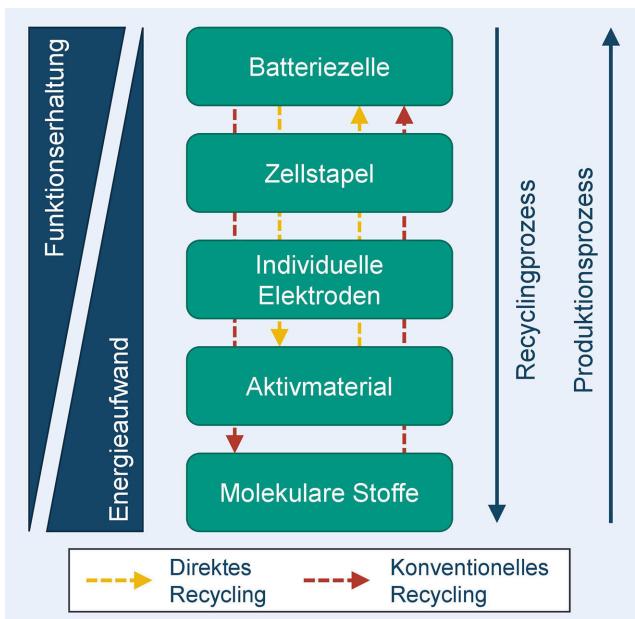


Bild 1. Übersicht der Recyclingwege. *Grafik: Eigene Darstellung*

ursprünglichen molekularen Ausgangsstoffe beruhen, wie in **Bild 1** dargestellt.

Das pyrometallurgische Verfahren nutzt thermische Energie, um die einzelnen Batteriezellen oder ganze Batteriepacks aufzuschmelzen und anschließend zu zersetzen. Dadurch ist keinerlei Vorbehandlung notwendig und der Prozess kann mit unterschiedlichsten Zellchemien und gänzlich unabhängig von Bauform oder Baugröße der Zellen durchlaufen werden. Die in der Batterie enthaltenen Rohstoffe können aus der entstandenen Schmelze teilweise zurückgewonnen werden, ein weiterer Teil verbleibt in der Schlacke. Diese prozessbedingt begrenzte Wiedergewinnung der Rohstoffe ist eine der grundlegenden Herausforderungen des pyrometallurgischen Ansatzes. Hinzu kommt der enorme Energieeinsatz, den das Aufschmelzen der Zellen benötigt. Dieser wirkt sich deutlich negativ auf die ökonomische und vor allem auf die ökologische Sinnhaftigkeit dieses Recyclingansatzes aus. [8]

Beim hydrometallurgischen Verfahren wird in der Regel ein Schredder oder anderweitig mechanisches Verfahren eingesetzt, um die Zellen in ihrer Ganzheit zu zerkleinern [9]. Das so entstehende Materialgemisch wird danach mittels unterschiedlicher Laugen und Basen prozessiert, um die einzelnen elementaren Bestandteile durch chemische Reaktionen auswaschen oder ausfällen zu können. Der Prozess wird typischerweise in einer wässrigen Lösung durchgeführt und ist stark abhängig von der eingesetzten Zellchemie, auf welche die chemischen Reaktionen entsprechend angepasst werden müssen. Somit entsteht eine sehr umfangreiche und komplexe Prozesskette, die aus ökologischer Sicht ebenso nachteilig ist wie der intensive Chemikalieneinsatz. Auch wird die Verarbeitung häufig durch eine fehlende Kennzeichnung der einzelnen Batterien und ihrer Bestandteile erschwert. [10, 11]

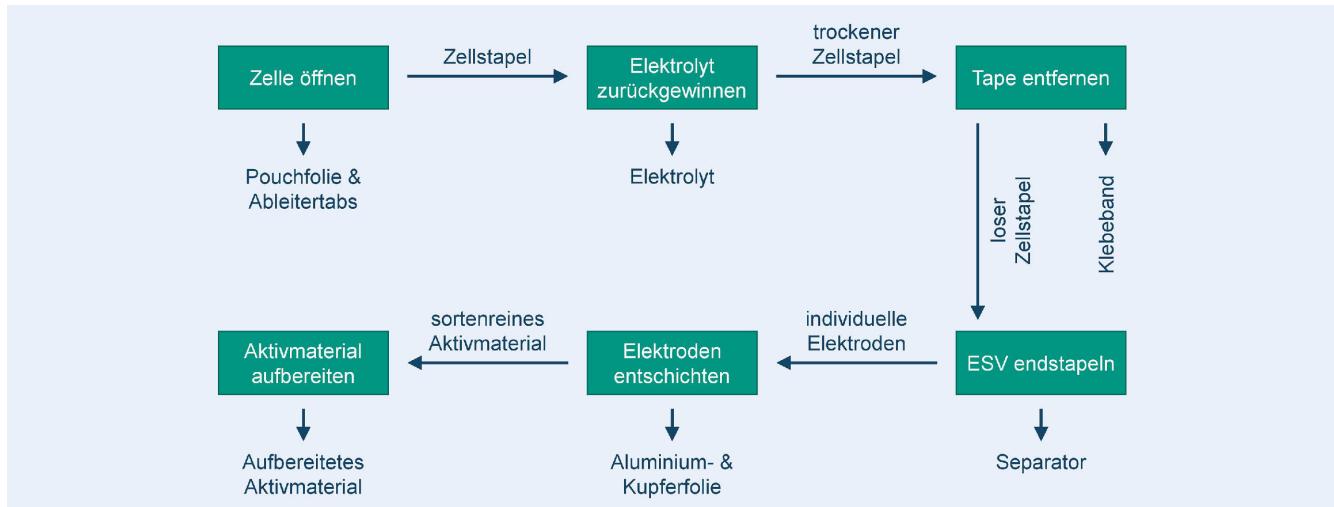
Als weitere Möglichkeit existiert eine Kombination der beiden konventionellen Verfahren. So ist ein pyrometallurgisches Aufschmelzen mit einer anschließenden hydrometallurgischen Verarbeitung der entstandenen Schlacke möglich, um die Materialausbeute zusätzlich zu erhöhen. [12]

3 Direktes Recycling als vielversprechende Alternative

Das direkte Recycling ist die neueste Ausprägung möglicher Prozessrouten, die ein großes Potenzial mit sich bringt, Energie und Kosten einzusparen. Dies wird über eine Funktionserhaltung der einzelnen Materialien erreicht [13]. Das direkte Recycling wird in ähnlicher Ausprägung bereits in der Papier- oder Spritzgussindustrie eingesetzt. In Bezug auf die Batteriezelle erstreckt sich der eingeschlagene Prozessweg, wie in Bild 1 zu sehen, nur von der Batteriezelle hin zum Aktivmaterial. Dabei wird nicht wie bei den konventionellen Verfahren eine Aufspaltung in die molekularen und atomaren Strukturen vorgenommen. Beispielsweise soll das Aktivmaterial Nickel-Mangan-Kobalt (NMC) als Gemisch erhalten bleiben und nicht in seine einzelnen Bestandteile Nickel, Mangan und Kobalt aufgetrennt werden. So bleiben am Ende des Prozesses Stoffe erhalten, die in Teilen noch Charakteristika ihres ursprünglichen Zustandes oder ihrer Funktion aufweisen. Dieses Vorgehen spart sowohl eine Prozessstufe beim Recycling als auch eine Stufe beim Produktionsprozess von neuen Batterien basierend auf recyceltem Material ein. Dadurch wird an zwei Stellen die für die Verarbeitung nötige Energie eingespart, was einen weiteren Vorteil des direkten Recyclings darstellt.

Zudem steht beim direkten Recycling die Wiedergewinnung eines Großteils beziehungsweise aller Bestandteile der Batteriezelle im Vordergrund. So soll nicht nur, wie bisher, primär die Kathode, sondern auch die Anode, der Binder und der Elektrolyt recycelt werden. Dies kann aktuell aus verschiedenen Gründen nicht durchgeführt werden. Auf der einen Seite sind beim pyro- oder hydrometallurgischen Ansatz verfahrensbedingt nicht alle Materialien recycelbar. So dient zum Beispiel Grafit bei der pyrometallurgischen Methode der Unterstützung für die Verbrennung und wird verbraucht [13]. Andere Stoffe können in der Schlacke enden und so kaum oder nur mit erheblichem Mehraufwand zurückgewonnen werden. Auf der anderen Seite war es bisher nicht wirtschaftlich andere Bauteile als die Kathode zu recyceln. Diese enthält mit Kobalt und Nickel die derzeit wertvollsten Materialien der Batterie. Dem gegenüber stehen Materialien wie Lithium, Mangan und Aluminium, die bisher für das Recycling nicht lohnend waren. Ein weiterer Vorteil des direkten Recyclings liegt in der Reduktion des erwarteten Energieeinsatzes. Gerade das Herunterbrechen von Aktivmaterial auf die molekularen Stoffe und deren Reinigung sowie anschließende Anreicherung ist durch die verschiedenen im hydrometallurgischen Verfahren eingesetzten Waschungen mit Laugen und Säuren energieintensiv. [14]

Trotz der vielen positiven Eigenschaften des direkten Recyclings, gibt es aktuell Herausforderungen, die einen großflächigen Einsatz verhindern. Dazu zählt besonders die Frage der notwendigen initialen Demontage der Batteriezellen. Während andere Teilprozesse des direkten Recyclings bereits mit positiven Ergebnissen untersucht wurden, ist dies für die Demontage bisher kaum erfolgt. So ist es bereits gelungen, eine Entschichtung von verbrauchten Kathoden vorzunehmen und diese wieder aufzubereiten. Dabei wird die verbrauchte Kathode wieder mit Lithium angereichert, wobei Kristallstruktur, thermische Stabilität und chemische Eigenschaften nahe an denen des ursprünglichen Materials der Kathode liegen [10]. Für die Stromabnehmer aus Aluminium und Kupfer gibt es ebenso ein direktes Recyclingverfahren. Dabei werden die Abnehmer durch Waschen mit einer

**Bild 2.** Konzept für die Zelldemontage. Grafik: Eigene Darstellung

Lauge mit anschließendem Abwischen oder durch Beschallung in einem Säurebad behandelt [15].

Alle aufgezeigten Prozesse der bisherigen Studien beruhen darauf, dass vor der eigentlichen Untersuchung oder Anwendung der Recyclingprozesse die Batterien bereits zerlegt sind. Diese Zerlegung findet bisher ausschließlich manuell statt, da der Prozess für eine Automatisierung noch nicht genug beherrscht wird und zu gefährlich ist. Alle Ergebnisse wurden nur im Labormaßstab erzielt und müssen noch in automatisierbare Lösungen für das Recycling im industriellen Maßstab überführt werden.

Gründe dafür sind vor allem die vielen auf die Demontage wirkenden Einflussfaktoren, wie etwa der Batterietyp, die genaue Geometrie und die stoffliche Zusammensetzung. Die beiden letzten Faktoren variieren je nach Hersteller stark und sind bisher nicht standardisiert. Für eine Demontage in Einzelkomponenten müsste somit eine Anlage für jeden Subtyp an Batterie beziehungsweise Batteriegeometrie eingesetzt werden, was mit hohem Aufwand verbunden ist. Weiterhin sind die mechanischen Eigenschaften der verbrauchten oder demontierten Komponenten nicht ausreichend untersucht, was eine kontrollierte Interaktion mit Automatisierungstechnik wie Robotern erschwert.

Bisher wurde nur eine Demontagesequenz für die Anoden, Kathoden und Separatoren mit experimentellem Aufbau im Labormaßstab realisiert. Diese ist aber nicht für eine umfassende Automatisierung geeignet und weist noch Erweiterungsbedarf hinsichtlich der Anpassbarkeit auf unterschiedliche Zellgeometrien auf [16].

4 Konzeptvorstellung für eine automatisierte Zelldemontage

Um dem zuvor erwähnten Problem der notwendigen Demontage der individuellen Batteriezellen zu begegnen, wird in diesem Abschnitt ein Konzept für eine automatisierte Zelldemontage vorgestellt. Der dafür notwendige Prozessverlauf ist in **Bild 2** zu sehen.

Die für dieses Konzept ausgewählten Systemgrenzen liegen auf der einen Seite in Form der individuellen Batteriezellen und auf der anderen Seite mit den individuellen Komponenten vor. Das verfolgte Ziel besteht darin, die einzelnen Elektroden sortenrein zu trennen, sodass Anoden und Kathoden getrennt voneinander

vorliegen. Nebenprodukte sind dabei die Pouchfolie, die Ableiter tabs und der Separator. Auch der Elektrolyt muss im Prozessverlauf entfernt werden und sollte im Sinne der Kreislaufwirtschaft zurückgewonnen werden. Das vorliegende Konzept fokussiert sich auf Z-faltete oder einzelblattgestapelte Pouchzellen.

Im entwickelten Prozessablauf wird die Zelle im ersten Schritt durch einen Scher- oder Stanzschmitt geöffnet, was die Entnahme des Zellstapels erlaubt. Dieser kann in diesem Stadium bereits getrocknet werden, um den Elektrolyten zurückzugewinnen. Alternativ ist eine Trocknung erst nach der Separation der einzelnen Sheets möglich. Dabei könnte aufgrund des vorteilhafteren Oberflächenverhältnisses eine deutlich schnellere Trocknungszeit erreicht werden. Nachteilig ist die schwierigere Verarbeitung der noch feuchten Elektroden und Separator Sheets. Der zweite Prozessschritt ist das Entfernen des Tapes, sodass anschließend ein loser Zellstapel vorliegt. Dafür kommt ein Rasiermesserschnitt zum Einsatz, wobei es notwendig ist, den Verbleib des Tapes auf den obersten und untersten Elektroden zu evaluieren. Momentan kann nicht ausgeschlossen werden, dass das Tape gänzlich entfernt werden muss, um eine weitere, sinnvolle Prozessierung zu ermöglichen.

Es folgt der Hauptschritt der Demontage, das Entstapeln des Elektroden-Separator-Verbundes (ESV). Dazu sind verschiedene Methoden denkbar. Vor allem bei noch mit Elektrolyt getränkten Elektroden ist es wichtig, dass die Sheets in einer abschälenden Bewegung voneinander separiert werden. Dies ist nötig, um die aufgrund der Feuchtigkeit verstärkt wirkenden Adhäsionskräfte zielführend zu überwinden. Dies kann zum Beispiel durch eine Universalkinematik erreicht werden, die ähnlich zur manuellen Demontage einzelne Sheets greift und sie somit entstapelt. Ein alternatives Konzept ist die Verwendung von sektorisch ansteuerbaren Vakuumsaugrollen, die die Sheets jeweils vom Elektrodenstapel abwickeln. Auch eine komplexe Kinematik mit einzelnen Punktsaugern zum Aufnehmen und Abschälen der Sheets ist denkbar. Ähnlich wie in der normalen Produktion ist bei allen Ausprägungen wichtig, eine Querkontamination der Anoden- und Kathodenmaterialien untereinander strengstens zu vermeiden, um eine anschließende weitere Verarbeitung der Materialien zu vereinfachen. Bei einem Aufbau mit Z-Faltung muss weitergehend der kontinuierliche Separator in einzelne Sheets zerlegt werden, um eine Entstapelung zu ermöglichen. Alternativ ist auch die

Ausnutzung der kontinuierlichen Bahn denkbar, um so die einzelnen Elektroden voneinander zu lösen.

Um eine automatisierte Anlagentechnik für den beschriebenen Prozess entwickeln zu können, müssen in einem ersten Schritt die auftretenden Prozesskräfte ermittelt und eine mechanische Charakterisierung der Zwischen- und Endprodukte des Prozesses bestimmt werden. Zu den Prozesskräften zählen etwa die notwendige Abschälkraft und die Zugfestigkeit der Elektroden am Ende ihres Lebenszyklus. Es wird ebenfalls erwartet, dass sich die Oberflächenbeschaffenheit der Elektroden im Laufe der Batterienutzung verändert.

Um diese und weitere Charakteristika zu bestimmen, wurde ein modularer Versuchsaufbau konzipiert. Er besteht aus einer Grundplatte, auf der eine Universalkinematik befestigt ist. Über eine angeflanschte Kraftmessdose können die Prozesskräfte präzise ermittelt werden. Der angestrebte modulare Aufbau erlaubt es, den Versuchsstand unter gewöhnlichen Umgebungsbedingungen zu testen und zu programmieren. Anschließend kann dieser für die eigentliche Versuchsdurchführung in eine geschützte Umgebung wie etwa unter einen Abzug transportiert werden. Diese ist insbesondere aufgrund der gesundheitsgefährdenden Elektrolyte notwendig, da das darin enthaltene Lösungsmittel kontrolliert abgeführt werden muss, um nicht zu einer Gefahr für die Bediener des Versuchsstandes zu werden.

5 Ausblick

Das vorgestellte Konzept für die Demontage wird in den nächsten Jahren im Rahmen von unterschiedlichen Forschungsprojekten aufgebaut und weiterentwickelt. Dazu werden die angesprochenen mechanischen Charakterisierungen durchgeführt und anschließend ein modularer Versuchsstand zur automatisierten Demontage von Batteriezellen entwickelt und aufgebaut.

Damit können anschließend relevante Prozessparameter ermittelt werden, die eine stabile Prozessdurchführung erlauben und so einen industriellen Einsatz des direkten Recyclings und der mechanischen Demontage von Batteriezellen weiter vorbereiten.

FÖRDERHINWEIS

Die vorgestellten Forschungsarbeiten werden im Rahmen des Center for Electrochemical Energy Storage Ulm | Karlsruhe (CELEST) und des Batterietechnikums des KIT (BATEC) durchgeführt. Sie wurden unterstützt durch den KIT-Publikationsfond des Karlsruher Instituts für Technologie.

L i t e r a t u r

- [1] Tagesschau: EU beschließt weitgehendes Verbrenner-Aus – Ausnahme für E-Fuel-Fahrzeuge. Stand: 28.03.2023. Internet: www.tagesschau.de/wirtschaft/eu-beschliesst-verbrenner-kompromiss-101.html. Zugriff am 19.06.2023
- [2] Korthauer, R. (ed.): Lithium-Ion Batteries Basics and Applications. Heidelberg: Springer-Verlag 2018
- [3] Orangi, S.; Strømman, A.: A Techno-Economic Model for Benchmarking the Production Cost of Lithium-Ion Battery Cells. *Batteries* 8 (2022) 8, p. 83
- [4] Ciez, R. E.; Whitaire, J. F.: Examining different recycling processes for lithium-ion batteries. *Nature Sustainability* 2 (2019) 2, pp. 148–156
- [5] Gerlitz, E.; Greifenstein, M.; Hofmann, J. et al.: Analysis of the Variety of Lithium-Ion Battery Modules and the Challenges for an Agile Automated Disassembly System. *Procedia CIRP* 96 (2021), pp. 175–180
- [6] Fleischer, J.; Gerlitz, E.; Rie, S. et al.: Concepts and Requirements for Flexible Disassembly Systems for Drive Train Components of Electric Vehicles. *Procedia CIRP* 98 (2021), pp. 577–582
- [7] Armand, M.; Axmann, P.; Bresser, D. et al.: Lithium-ion batteries – Current state of the art and anticipated developments. *Journal of Power Sources* 479 (2020), # 228708
- [8] Kurz, L.; Forster, S.; Wörner, R. et al.: Environmental Impacts of Specific Recyclates in European Battery Regulatory-Compliant Lithium-Ion Cell Manufacturing. *Sustainability* 15 (2023) 1, pp. 103
- [9] Holzer, A.; Zimmermann, J.; Wiszniewski, L. et al.: A Combined Hydro-Mechanical and Pyrometallurgical Recycling Approach to Recover Valuable Metals from Lithium-Ion Batteries Avoiding Lithium Slagging. *Batteries* 9 (2023) 1, pp. 15
- [10] Montoya, A. T.; Yang, Z.; Dahl, E. U. et al.: Direct Recycling of Lithium-Ion Battery Cathodes: A Multi-Stage Annealing Process to Recover the Pristine Structure and Performance. *ACS Sustainable Chemistry & Engineering* 10 (2022) 40, pp. 13319–13324
- [11] Xu, P.; Yang, Z.; Yu, X. et al.: Design and Optimization of the Direct Recycling of Spent Li-Ion Battery Cathode Materials. *ACS Sustainable Chemistry & Engineering* 9 (2021) 12, pp. 4543–4553
- [12] Windisch-Kern, S.; Gerold, E.; Nigl, T. et al.: Recycling chains for lithium-ion batteries: A critical examination of current challenges, opportunities and process dependencies. *Waste management* 138 (2022), pp. 125–139
- [13] Harper, G.; Sommerville, R.; Kendrick, E. et al.: Recycling lithium-ion batteries from electric vehicles. *Nature* 575 (2019) 7781, pp. 75–86
- [14] Gaines, L.; Richa, K.; Spangenberger, J.: Key issues for Li-ion battery recycling. *MRS Energy & Sustainability* 5 (2018) 12, doi.org/10.1557/mre.2018.13
- [15] Zhu, P.; Driscoll, E. H.; Dong, B. et al.: Direct Reuse of Aluminium and Copper Current Collectors from Spent Lithium-ion Batteries. *Green chemistry* 25 (2023), doi.org/10.1039/D2GC03940K
- [16] Li, L.; Zheng, P.; Yang, T. et al.: Disassembly Automation for Recycling End-of-Life Lithium-Ion Pouch Cells. *JOM* 71 (2019) 12, pp. 4457–4464



Sebastian Henschel, M.Sc.

Foto: Autor

Philipp-Tobias Dörner, B.Sc.

Florian Köbler, M.Sc.

Prof. Dr.-Ing. Jürgen Fleischer

Karlsruher Institut für Technologie (KIT)

wbk Institut für Produktionstechnik

Kaiserstr. 12, 76131 Karlsruhe

Tel.+49 1523 / 9502568

sebastian.henschel@kit.edu

www.wbk.kit.edu

L I Z E N Z



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