



(10) **DE 10 2022 103 135 A1** 2023.03.09

(12) **Offenlegungsschrift**

(21) Aktenzeichen: **10 2022 103 135.7**

(22) Anmeldetag: **10.02.2022**

(43) Offenlegungstag: **09.03.2023**

(51) Int Cl.: **H01M 10/0567 (2010.01)**

H01M 10/0565 (2010.01)

H01M 10/0568 (2010.01)

H01M 10/0525 (2010.01)

(30) Unionspriorität:
202111049241.1 08.09.2021 CN

(71) Anmelder:
**GM Global Technology Operations LLC, Detroit,
US**

(74) Vertreter:
**Manitz Finsterwald Patent- und
Rechtsanwaltspartnerschaft mbB, 80336
München, DE**

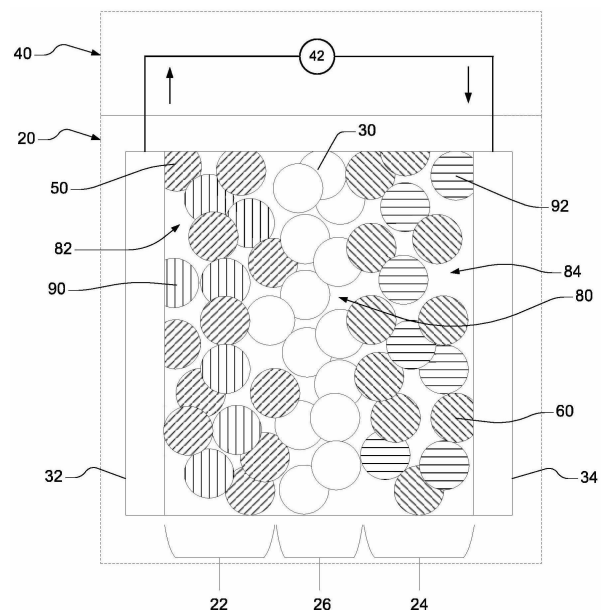
(72) Erfinder:
**Su, Qili, Shanghai, CN; Li, Zhe, Shanghai, CN; Lu,
Yong, Shanghai, CN; Liu, Haijing, Shanghai, CN**

Prüfungsantrag gemäß § 44 PatG ist gestellt.

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen.

(54) Bezeichnung: **POLYMERE GELELEKTROLYTSYSTEME FÜR HOCHLEISTUNGSFESTKÖRPERAKKUMULATOR**

(57) Zusammenfassung: Die vorliegende Offenbarung sieht einen polymeren Gelelektrolyt für eine elektrochemische Zelle vor, die Lithiumionen zyklisiert. Der polymere Gelelektrolyt umfasst größer oder gleich ungefähr 0,1 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 10 Gew.-% eines kein Lithium enthaltenden Salzes. Das kein Lithium enthaltende Salz umfasst ein kein Lithium enthaltendes Kation mit einem Ionenradius, der größer oder gleich ungefähr 80 % bis kleiner oder gleich ungefähr 250 % des Ionenradius eines Lithiumions ist. Der polymere Gelelektrolyt umfasst ferner größer oder gleich ungefähr 50 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 99,9 Gew.-% eines nichtflüchtigen Gels. Das nichtflüchtige Gel umfasst größer oder gleich 0 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 50 Gew.-% eines polymeren Wirts und größer oder gleich ungefähr 5 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 100 Gew.-% eines flüssigen Elektrolyten.



BeschreibungQUERVERWEIS AUF VERWANDTE
ANMELDUNGEN

[0001] Diese Anmeldung beansprucht den Nutzen und die Priorität der CN 202111049241.1, eingereicht am 8. September 2021. Die gesamte Offenbarung der oben genannten Anmeldung ist hierin durch Bezugnahme enthalten.

EINLEITUNG

[0002] Dieser Abschnitt enthält Hintergrundinformationen im Zusammenhang mit der vorliegenden Offenbarung, die nicht unbedingt zum Stand der Technik gehören.

[0003] Elektrochemische Energiespeichervorrichtungen, wie z.B. Lithium-Ionen-Akkumulatoren, können in einer Vielzahl von Produkten eingesetzt werden, einschließlich Automobilprodukten, wie z.B. Start-Stopp-Systeme (z.B. 12-V-Start-Stopp-Systeme), akkumulatorgestützte Systeme („ μ BAS“), Hybridelektrofahrzeuge („HEVs“) und Elektrofahrzeuge („EVs“). Typische Lithium-Ionen-Akkumulatoren umfassen zwei Elektroden und eine Elektrolytkomponente und/oder einen Separator. Eine der beiden Elektroden kann als positive Elektrode oder Kathode und die andere Elektrode als negative Elektrode oder Anode dienen. Lithium-Ionen-Akkumulatoren können außerdem verschiedene Pol- und Verpackungsmaterialien umfassen. Wiederaufladbare Lithium-Ionen-Akkumulatoren funktionieren, indem Lithiumionen reversierbar zwischen der negativen Elektrode und der positiven Elektrode hin- und hergeleitet werden. Zum Beispiel können sich Lithiumionen beim Laden des Akkumulators von der positiven Elektrode zu der negativen Elektrode und beim Entladen des Akkumulators in die entgegengesetzte Richtung bewegen.

[0004] Zwischen der negativen und der positiven Elektrode kann ein Separator und/oder ein Elektrolyt angeordnet sein. Der Elektrolyt ist geeignet, Lithiumionen zwischen den Elektroden zu leiten und kann, wie die beiden Elektroden, in fester Form, flüssiger Form und/oder einer fest-flüssigen Mischform vorliegen. Bei Festkörperakkumulatoren, die eine zwischen den Festkörperelektroden angeordnete Festkörperelektrolytschicht umfassen, trennt der Festkörperelektrolyt die Festkörperelektroden physikalisch, so dass kein gesonderter Separator erforderlich ist.

[0005] Halbfeste Akkumulatoren und Festkörperakkumulatoren weisen gegenüber Akkumulatoren, die einen Separator und einen flüssigen Elektrolyt umfassen, Vorteile auf. Diese Vorteilen umfassen eine längere Haltbarkeit bei geringerer Selbstentla-

dung, ein einfacheres Wärmemanagement, einen geringeren Verpackungsbedarf und die Fähigkeit, innerhalb eines größeren Temperaturfensters zu arbeiten. So sind beispielsweise halbfeste Elektrolyte und/oder Festkörperelektrolyte im Allgemeinen nicht flüchtig und nicht entflammbar, so dass die Zellen auch unter härteren Bedingungen zyklisiert werden können, ohne dass es zu einem verminderten Potenzial oder einem thermischen Durchgehen kommt, wie es bei der Verwendung flüssiger Elektrolyte der Fall sein kann. Festkörperakkumulatoren weisen jedoch oft eine vergleichsweise geringe Leistungsfähigkeit auf. Geringe Leistungsfähigkeiten können auf den Grenzflächenwiderstand innerhalb der Festkörperelektroden und/oder an der Elektrode sowie auf einen Grenzflächenwiderstand der Festkörperelektrolytschicht zurückzuführen sein, der durch einen begrenzten Kontakt oder Hohlräume zwischen den aktiven Festkörperteilchen und/oder den Festkörperelektrolytteilchen verursacht wird. Dementsprechend wäre es wünschenswert, hochleistungsfähige Ausführungen von Festkörperakkumulatoren und/oder halbfesten Akkumulatoren und Materialien dafür sowie Verfahren zu entwickeln, die sowohl die Leistungsfähigkeit als auch die Energiedichte verbessern.

ZUSAMMENFASSUNG

[0006] Dieser Abschnitt enthält eine allgemeine Zusammenfassung der Offenbarung und ist keine umfassende Offenbarung ihres vollen Umfangs oder aller ihrer Merkmale.

[0007] Die vorliegende Offenbarung bezieht sich auf Festkörperakkumulatoren, beispielsweise bipolare Festkörperakkumulatoren, die ein polymeres Gelelektrolytsystem umfassen und einen verbesserten Grenzflächenkontakt (sowohl im Mikroals auch im Makrobereich) aufweisen, sowie auf Verfahren zu ihrer Ausbildung.

[0008] Bei verschiedenen Aspekten sieht die vorliegende Offenbarung einen polymeren Gelelektrolyt für eine elektrochemische Zelle vor, die Lithiumionen zyklisiert. Der polymere Gelelektrolyt kann größer oder gleich ungefähr 0,1 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 10 Gew.-% eines kein Lithium enthaltenden Salzes umfassen.

[0009] Bei einem Aspekt kann das kein Lithium enthaltende Salz ein kein Lithium enthaltendes Kation mit einem Ionenradius umfassen, der größer oder gleich ungefähr 80 % bis kleiner oder gleich ungefähr 250 % des Ionenradius eines Lithiumions ist.

[0010] Bei einem Aspekt kann das kein Lithium enthaltende Kation aus der Gruppe ausgewählt sein, die aus Natrium (Na^+), Calcium (Ca^{2+}), Magnesium (Mg^{2+}), Kalium (K^+), Aluminium (Al^{3+}), Eisen (Fe^{2+}), Man-

gan (Mn^{2+}), Strontium (Sr^{2+}), Zink (Zn^{2+}) und Kombinationen davon besteht.

[0011] Bei einem Aspekt kann das kein Lithium enthaltende Salz ein Anion umfassen, das aus der Gruppe ausgewählt ist, die aus Bis-trifluormethansulfonimid (TFSI-), Bis(fluorosulfonyl)imid (FSI-), Bis(pentafluorethansulfonyl)imid (BETI-), Trifluormethylsulfonat (OTf^-), Tetrafluorborat (BF_4^-), Hexafluorophosphat (PF_6^-), Nitrat (NO_3^-), Chlorid (Cl^-), Bromid (Br^-) und Kombinationen davon besteht.

[0012] Bei einem Aspekt kann das kein Lithium enthaltende Salz aus der Gruppe ausgewählt sein, die aus Magnesium-Bis(trifluormethansulfonyl)imid ($Mg(TFSI)_2$), Calcium-Bis(trifluormethansulfonyl)imid ($Ca(TFSI)_2$), Kalium-Bis(trifluormethansulfonyl)imid (KTFSI), Natriumnitrat ($NaNO_3$), Natriumhexafluorophosphat ($NaPF_6$) und Kombinationen davon besteht.

[0013] Bei einem Aspekt kann das polymere Gelelektrolytssystem ferner größer oder gleich ungefähr 50 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 99,9 Gew.-% eines nichtflüchtigen Gels umfassen. Das nichtflüchtige Gel kann einen flüssigen Elektrolyten umfassen.

[0014] Bei einem Aspekt kann das nichtflüchtige Gel ferner einen polymeren Wirt umfassen. Beispielsweise kann das nichtflüchtige Gel größer 0 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 50 Gew.-% des polymeren Wirts und größer oder gleich ungefähr 5 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 99,9 Gew.-% des flüssigen Elektrolyten umfassen.

[0015] Bei einem Aspekt kann der polymere Wirt aus der Gruppe ausgewählt sein, die aus Polyvinylidenfluorid (PVDF), Polyvinylidenfluorid-Hexafluorpropylen (PVDF-HFP), Polyethylenoxid (PEO), Polypropylenoxid (PPO), Polyacrylnitril (PAN), Polymethacrylnitril (PMAN), Polymethylmethacrylat (PMMA), Carboxymethylcellulose (CMC), Polyvinylalkohol (PVA), Polyvinylpyrrolidon (PVP) und Kombinationen davon besteht.

[0016] Bei einem Aspekt kann der flüssige Elektrolyt ein Lithiumsalz und ein Lösungsmittel umfassen. Das Lithiumsalz kann aus der Gruppe ausgewählt sein, die aus Lithium-Bis(fluorosulfonyl)imid (LiFSI), Lithium-Bis(trifluormethansulfonyl)imid (LiTFSI), Lithium-Bis(pentafluorethansulfonyl)imid (LiBETI), Lithiumhexafluorophosphat ($LiPF_6$), Lithiumtetrafluorborat ($LiBF_4$), Lithiumtrifluormethylsulfonat (LiFO), Lithiumdifluor(oxalato)borat ($LiDFOB$) und Kombinationen davon besteht. Das Lösungsmittel kann aus der Gruppe ausgewählt sein, die aus Ethylencarbonat (EC), Propylencarbonat (PC), Gamma-Butyrolacton (GBL), Tetraethylphosphat (TEP), Fluor-

rethylencarbonat (FEC) und Kombinationen davon besteht.

[0017] Bei einem Aspekt kann das nichtflüchtige Gel ferner größer 0 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 10 Gew.-% eines Zusatzstoffs umfassen. Der Zusatzstoff kann aus der Gruppe ausgewählt sein, die aus Vinylencarbonat (VC), Fluorethylencarbonat (FEC), Vinylethylencarbonat (VEC), Butylencarbonat (BC), Ethylensulfit (ES), Propylensulfit (PS) und Kombinationen davon besteht.

[0018] Bei verschiedenen Aspekten stellt die vorliegende Offenbarung eine elektrochemische Zelle bereit, die Lithiumionen zyklisiert. Die elektrochemische Zelle kann eine erste Elektrode, eine zweite Elektrode und eine zwischen der ersten Elektrode und der zweiten Elektrode angeordnete Elektrolytschicht umfassen. Die erste Elektrode kann ein erstes elektroaktives Festkörpermaterial umfassen. Die zweite Elektrode kann ein zweites elektroaktives Festkörpermaterial umfassen. Wenigstens eine der ersten Elektrode, der zweiten Elektrode und der Elektrolytschicht kann einen polymeren Gelelektrolyt umfassen. Der polymere Gelelektrolyt kann größer oder gleich ungefähr 0,1 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 10 Gew.-% eines kein Lithium enthaltenden Salzes umfassen.

[0019] Bei einem Aspekt kann die Elektrolytschicht eine Vielzahl von Festkörperelektrolytteilchen umfassen, und das polymere Gelelektrolytssystem kann wenigstens teilweise Hohlräume zwischen den Festkörperelektrolytteilchen füllen.

[0020] Bei einem Aspekt kann die Elektrolytschicht eine freistehende Membran umfassen, die durch das polymere Gelelektrolytssystem definiert ist. Die freistehende Membran kann eine Dicke von größer oder gleich ungefähr 5 μm bis kleiner oder gleich ungefähr 1.000 μm aufweisen.

[0021] Bei einem Aspekt kann das zweite elektroaktive Festkörpermaterial ein zweidimensionales elektroaktives Material sein.

[0022] Bei einem Aspekt kann das polymere Gelelektrolytssystem einen ersten polymeren Gelelektrolyt, der wenigstens teilweise Hohlräume in dem ersten elektroaktiven Festkörpermaterial füllt, und einen zweiten polymeren Gelelektrolyten, der wenigstens teilweise Hohlräume in dem zweiten elektroaktiven Festkörpermaterial füllt, umfassen.

[0023] Bei einem Aspekt kann das kein Lithium enthaltende Salz ein kein Lithium enthaltendes Kation mit einem Ionenradius umfassen, der größer oder gleich ungefähr 80 % bis kleiner oder gleich ungefähr 250 % des Ionenradius eines Lithiumions ist.

[0024] Bei einem Aspekt kann das kein Lithium enthaltende Kation aus der Gruppe ausgewählt sein, die aus Natrium (Na^+), Calcium (Ca^{2+}), Magnesium (Mg^{2+}), Kalium (K^+), Aluminium (Al^{3+}), Eisen (Fe^{2+}), Mangan (Mn^{2+}), Strontium (Sr^{2+}), Zink (Zn^{2+}) und Kombinationen davon besteht.

[0025] Bei einem Aspekt kann das polymere Gelelektrolytssystem ferner größer oder gleich ungefähr 50 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 99,9 Gew.-% eines nichtflüchtigen Gels umfassen. Das nichtflüchtige Gel kann größer oder gleich 0 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 50 Gew.-% eines polymeren Wirts und größer oder gleich ungefähr 5 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 100 Gew.-% eines flüssigen Elektrolyten umfassen.

[0026] Bei einem Aspekt kann das nichtflüchtige Gel ferner größer 0 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 10 Gew.-% eines Zusatzstoffs umfassen. Der Zusatzstoff kann aus der Gruppe ausgewählt sein, die aus Vinylencarbonat (VC), Fluorethylencarbonat (FEC), Vinylethylencarbonat (VEC), Butylencarbonat (BC), Ethylensulfit (ES), Propylensulfit (PS) und Kombinationen davon besteht.

[0027] Bei verschiedenen Aspekten stellt die vorliegende Offenbarung eine elektrochemische Zelle bereit, die Lithiumionen zyklisiert. Die elektrochemische Zelle kann eine erste Elektrode, eine zweite Elektrode und eine zwischen der ersten Elektrode und der zweiten Elektrode angeordnete Elektrolytschicht umfassen. Die erste Elektrode kann ein erstes elektroaktives Festkörpermateriale umfassen. Die zweite Elektrode kann ein zweites elektroaktives Festkörpermateriale umfassen. Wenigstens eine der ersten Elektrode, der zweiten Elektrode und der Elektrolytschicht kann ein polymeres Gelelektrolytssystem umfassen. Das polymere Gelelektrolytssystem kann größer oder gleich ungefähr 0,1 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 10 Gew.-% eines kein Lithium enthaltenden Salzes und größer oder gleich ungefähr 50 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 99,9 Gew.-% eines nichtflüchtigen Gels umfassen. Das kein Lithium enthaltende Salz kann ein kein Lithium enthaltendes Kation umfassen, das aus der Gruppe ausgewählt ist, die aus Natrium (Na^+), Calcium (Ca^{2+}), Magnesium (Mg^{2+}), Kalium (K^+), Aluminium (Al^{3+}), Eisen (Fe^{2+}), Mangan (Mn^{2+}), Strontium (Sr^{2+}), Zink (Zn^{2+}) und Kombinationen davon besteht. Das nichtflüchtige Gel kann größer oder gleich 0 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 50 Gew.-% eines polymeren Wirts und größer oder gleich ungefähr 5 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 100 Gew.-% eines flüssigen Elektrolyten umfassen.

[0028] Weitere Anwendungsbereiche ergeben sich aus der hierin gegebenen Beschreibung. Die Beschreibung und die spezifischen Beispiele in die-

ser Zusammenfassung dienen nur der Veranschaulichung und sind nicht dazu bestimmt, den Umfang der vorliegenden Offenbarung einzuschränken.

Figurenliste

[0029] Die hierin beschriebenen Zeichnungen dienen nur zur Veranschaulichung ausgewählter Ausgestaltungen und nicht aller möglichen Ausführungen und sind nicht dazu bestimmt, den Umfang der vorliegenden Offenbarung einzuschränken.

Fig. 1A zeigt eine Veranschaulichung eines beispielhaften Festkörperakkumulators gemäß verschiedenen Aspekten der vorliegenden Offenbarung.

Fig. 1B zeigt einen beispielhaften Festkörperakkumulator mit einem polymeren Gelelektrolytssystem gemäß verschiedenen Aspekten der vorliegenden Offenbarung.

Fig. 1C zeigt eine schematische Veranschaulichung eines zweidimensionalen elektroaktiven Materials (z.B. Graphit) in Kontakt mit einem polymeren Gelelektrolytssystem.

Fig. 2 zeigt einen weiteren beispielhaften Festkörperakkumulator mit einem polymeren Gelelektrolytssystem gemäß verschiedenen Aspekten der vorliegenden Offenbarung.

Fig. 3A zeigt eine grafische Veranschaulichung, die die Leistungsfähigkeit von beispielhaften Akkumulatorzellen veranschaulicht, die gemäß verschiedenen Aspekten der vorliegenden Offenbarung hergestellt wurden.

Fig. 3B zeigt eine grafische Veranschaulichung der Entladekurven beispielhafter Akkumulatorzellen, die gemäß verschiedenen Aspekten der vorliegenden Offenbarung hergestellt wurden.

[0030] Entsprechende Bezugszeichen kennzeichnen entsprechende Teile in den verschiedenen Ansichten der Zeichnungen.

DETAILLIERTE BESCHREIBUNG

[0031] Es sind Ausführungsbeispiele bereitgestellt, so dass diese Offenbarung gründlich ist und Fachleuten der volle Umfang vermittelt wird. Es werden zahlreiche spezifische Details aufgeführt, wie Beispiele spezifischer Zusammensetzungen, Komponenten, Vorrichtungen und Verfahren, um ein genaues Verständnis der Ausgestaltungen der vorliegenden Offenbarung bereitzustellen. Für Fachleute ist es offensichtlich, dass spezifische Details nicht verwendet werden müssen, dass beispielhafte Ausgestaltungen in vielen unterschiedlichen Formen verkörpert sein können und dass keine davon so ausgelegt werden sollte, dass sie den Umfang der Offenbarung einschränkt. Bei einigen beispielhaften

Ausgestaltungen sind bekannte Prozesse, bekannte Gerätestrukturen und bekannte Technologien nicht im Detail beschrieben.

[0032] Die hierin verwendete Terminologie dient nur der Beschreibung bestimmter beispielhafter Ausgestaltungen und soll nicht einschränkend wirken. Wie hierin verwendet, können die Singularformen „ein“, „eine“ sowie „der“, „die“, „das“ auch die Pluralformen einschließen, es sei denn, aus dem Kontext geht eindeutig anderes hervor. Die Begriffe „umfassen“, „umfassend“, „enthalten“ und „aufweisen“ sind inklusiv und spezifizieren daher das Vorhandensein von angegebenen Merkmalen, Elementen, Zusammensetzungen, Schritten, ganzen Zahlen, Vorgängen und/oder Komponenten, schließen aber das Vorhandensein oder die Hinzufügung von einem oder mehreren anderen Merkmalen, ganzen Zahlen, Schritten, Vorgängen, Elementen, Komponenten und/oder Gruppen davon nicht aus. Obwohl der offene Begriff „umfassend“ als ein nicht einschränkender Begriff zu verstehen ist, der dazu dient, verschiedene hierin dargelegte Ausgestaltungen zu beschreiben und zu beanspruchen, kann der Begriff bei bestimmten Aspekten alternativ auch als ein stärker einschränkender und restriktiverer Begriff verstanden werden, wie z.B. „bestehend aus“ oder „im Wesentlichen bestehend aus“. Daher umfasst die vorliegende Offenbarung für jede gegebene Ausgestaltung, die Zusammensetzungen, Materialien, Komponenten, Elemente, Merkmale, ganze Zahlen, Vorgänge und/oder Verfahrensschritte angibt, ausdrücklich auch Ausgestaltungen, die aus solchen angegebenen Zusammensetzungen, Materialien, Komponenten, Elementen, Merkmalen, ganzen Zahlen, Vorgängen und/oder Verfahrensschritten bestehen oder im Wesentlichen daraus bestehen. Im Falle von „bestehend aus“ schließt die alternative Ausgestaltung alle zusätzlichen Zusammensetzungen, Materialien, Komponenten, Elemente, Merkmale, ganzen Zahlen, Vorgänge und/oder Verfahrensschritte aus, während im Falle von „im Wesentlichen bestehend aus“ alle zusätzlichen Zusammensetzungen, Materialien, Komponenten, Elemente, Merkmale, ganzen Zahlen, Vorgänge und/oder Verfahrensschritte, die sich erheblich auf die grundlegenden und neuartigen Eigenschaften auswirken, von einer solchen Ausgestaltung ausgeschlossen sind, aber alle Zusammensetzungen, Materialien, Komponenten, Elemente, Merkmale, ganzen Zahlen, Vorgänge und/oder Verfahrensschritte, die sich nicht erheblich auf die grundlegenden und neuartigen Eigenschaften auswirken, in der Ausgestaltung eingeschlossen sein können.

[0033] Alle hierin beschriebenen Verfahrensschritte, Prozesse und Vorgänge sind nicht so auszulegen, dass sie zwangsläufig in der bestimmten erläuterten oder veranschaulichten Reihenfolge durchgeführt werden müssen, es sei denn, sie sind ausdrücklich

als Reihenfolge der Durchführung gekennzeichnet. Es versteht sich auch, dass zusätzliche oder alternative Schritte angewendet werden können, sofern nicht anders angegeben.

[0034] Wird eine Komponente, ein Element oder eine Schicht als „auf“ oder „in Eingriff mit“ einem anderen Element oder einer anderen Schicht befindlich oder als mit dem- oder derselben „verbunden“ oder „gekoppelt“ bezeichnet, kann sie sich direkt auf oder in Eingriff mit der anderen Komponente, dem anderen Element oder der anderen Schicht befinden oder mit dem- oder derselben verbunden oder gekoppelt sein, oder es können dazwischenliegende Elemente oder Schichten vorhanden sein. Wird dagegen ein Element als „direkt“ oder „direkt in Eingriff mit“ einem anderen Element oder einer anderen Schicht befindlich oder als mit dem- oder derselben „direkt verbunden“ oder „direkt gekoppelt“ bezeichnet, dürfen keine dazwischen liegenden Elemente oder Schichten vorhanden sein. Andere Wörter, die zur Beschreibung der Beziehung zwischen Elementen verwendet werden, sollten in ähnlicher Weise ausgelegt werden (z.B. „zwischen“ gegenüber „direkt zwischen“, „benachbart“ oder „angrenzend“ gegenüber „direkt benachbart“ oder „direkt angrenzend“ usw.). Wie hierin verwendet, schließt der Begriff „und/oder“ alle Kombinationen von einem oder mehreren der zugehörigen aufgelisteten Punkte ein.

[0035] Obwohl die Begriffe „erste“, „zweite“, „dritte“ usw. hierin verwendet sein können, um verschiedene Schritte, Elemente, Komponenten, Bereiche, Schichten und/oder Abschnitte zu beschreiben, sollten diese Schritte, Elemente, Komponenten, Bereiche, Schichten und/oder Abschnitte nicht durch diese Begriffe eingeschränkt werden, sofern nicht anders angegeben. Diese Begriffe dürfen nur verwendet werden, um einen Schritt, ein Element, eine Komponente, einen Bereich, eine Schicht oder einen Abschnitt von einem anderen Schritt, einem anderen Element, einer anderen Komponente, einem anderen Bereich, einer anderen Schicht oder einem anderen Abschnitt zu unterscheiden. Begriffe wie „erste“, „zweite“ und andere numerische Begriffe implizieren, wenn sie hierin verwendet werden, keine Abfolge oder Reihenfolge, es sei denn, der Kontext weist eindeutig darauf hin. So könnte man einen ersten Schritt, ein erstes Element, eine erste Komponente, einen ersten Bereich, eine erste Schicht oder einen ersten Abschnitt, die im Folgenden besprochen werden, als zweiten Schritt, zweites Element, zweite Komponente, zweiten Bereich, zweite Schicht oder zweiten Abschnitt bezeichnen, ohne von den Lehren der Ausführungsbeispiele abzuweichen.

[0036] Räumlich oder zeitlich relative Begriffe wie „vor“, „nach“, „innere“, „äußere“, „unterhalb“, „unter“, „untere“, „über“, „obere“ und dergleichen können hie-

rin der Einfachheit halber verwendet werden, um die Beziehung eines Elements oder Merkmals zu einem oder mehreren anderen Elementen oder Merkmalen zu beschreiben, wie in den Abbildungen veranschaulicht. Räumlich oder zeitlich relative Begriffe können dazu bestimmt sein, zusätzlich zu der in den Abbildungen dargestellten Ausrichtung unterschiedliche Ausrichtungen des in Gebrauch oder Betrieb befindlichen Geräts oder Systems einzuschließen.

[0037] In dieser gesamten Offenbarung stellen die Zahlenwerte ungefähre Maße oder Grenzen für Bereiche dar, um geringfügige Abweichungen von den angegebenen Werten und Ausgestaltungen, die ungefähr den genannten Wert aufweisen, sowie solche Werte, die genau den genannten Wert aufweisen, einzuschließen. Anders als in den Arbeitsbeispielen am Ende der detaillierten Beschreibung sind alle Zahlenwerte von Parametern (z.B. von Mengen oder Bedingungen) in dieser Patentschrift, einschließlich der im Anhang befindlichen Ansprüche, so zu verstehen, dass sie in allen Fällen durch den Begriff „ungefähr“ modifiziert sind, unabhängig davon, ob „ungefähr“ tatsächlich vor dem Zahlenwert erscheint oder nicht. „Ungefähr“ bedeutet, dass der angegebene Zahlenwert eine leichte Ungenauigkeit zulässt (mit einer gewissen Annäherung an die Genauigkeit des Werts, ungefähr oder ziemlich nahe am Wert, fast). Wird die Ungenauigkeit, die durch „ungefähr“ gegeben ist, in der Technik nicht anderweitig mit dieser gewöhnlichen Bedeutung verstanden, dann bezeichnet „ungefähr“, wie es hierin verwendet wird, zumindest Abwandlungen, die sich aus gewöhnlichen Verfahren zur Messung und Verwendung solcher Parameter ergeben können. Zum Beispiel kann „ungefähr“ eine Abweichung von kleiner oder gleich 5 %, optional kleiner oder gleich 4 %, optional kleiner oder gleich 3 %, optional kleiner oder gleich 2 %, optional kleiner oder gleich 1 %, optional kleiner oder gleich 0,5 % und, bei bestimmten Aspekten, optional kleiner oder gleich 0,1 % umfassen.

[0038] Darüber hinaus umfasst die Offenbarung von Bereichen die Offenbarung aller Werte und weiter unterteilten Bereiche innerhalb des gesamten Bereichs, einschließlich der Endpunkte und der für die Bereiche angegebenen Teilbereiche.

[0039] Es werden nun beispielhafte Ausgestaltungen unter Bezugnahme auf die beigefügten Zeichnungen ausführlicher beschrieben.

[0040] Die vorliegende Technologie bezieht sich auf Festkörperakkumulatoren, zum Beispiel bipolare Festkörperakkumulatoren, und Verfahren zu deren Bildung und Verwendung. Festkörperakkumulatoren können wenigstens eine feste Komponente umfassen, z.B. wenigstens eine feste Elektrode, aber bei bestimmten Abwandlungen auch halbfeste oder gelförmige, flüssige oder gasförmige Komponenten.

Festkörperakkumulatoren können eine bipolare Stapelbauweise aufweisen, die eine Vielzahl von bipolaren Elektroden umfasst, wobei ein erstes Gemisch aus elektroaktiven Festkörpermaterialteilchen (und optionalen Festkörperelektrolytteilchen) auf einer ersten Seite eines Stromkollektors angeordnet ist und ein zweites Gemisch aus elektroaktiven Festkörpermaterialteilchen (und optionalen Festkörperelektrolytteilchen) auf einer zweiten Seite des Stromkollektors angeordnet ist, die im Wesentlichen parallel zur ersten Seite verläuft. Das erste Gemisch kann als elektroaktive Festkörpermaterialteilchen Teilchen eines positiven Elektroden- oder Kathodenmaterials umfassen. Das zweite Gemisch kann als elektroaktive Festkörpermaterialteilchen Teilchen eines negativen Elektroden- oder Anodenmaterials umfassen. Eine Reihe oder ein Stapel von bipolaren Elektroden, die die beispielhaften Festkörperakkumulatoren bilden, können durch einen Separator und/oder einen Festkörperelektrolyt, der Festkörperelektrolytteilchen umfasst, physisch getrennt sein. Die Festkörperelektrolytteilchen können in jedem Fall gleich oder unterschiedlich sein.

[0041] Solche Festkörperakkumulatoren können in Energiespeichervorrichtungen wie wiederaufladbaren Lithium-Ionen-Akkumulatoren eingebaut werden, die in Autotransportanwendungen (z.B. Motorrädern, Booten, Traktoren, Bussen, Wohnmobilen, Wohnwagen und Panzern) verwendet werden können. Die vorliegende Technologie kann jedoch auch in anderen elektrochemischen Vorrichtungen verwendet werden, zum Beispiel (nicht einschränkend) in Komponenten für die Luft- und Raumfahrt, in Konsumgütern, Geräten, Gebäuden (z.B. Häusern, Büros, Schuppen und Lagerhallen), Büroausrüstung und -möbeln sowie in Maschinen für Industrieausrüstung, in landwirtschaftlichen Geräten, Landmaschinen oder Schwermaschinen. Bei verschiedenen Aspekten sieht die vorliegende Offenbarung einen wiederaufladbaren Lithium-Ionen-Akkumulator vor, der eine hohe Temperaturtoleranz sowie verbesserte Sicherheit und überlegene Leistungsfähigkeit und Lebensdauer aufweist.

[0042] Eine beispielhafte und schematische Veranschaulichung einer elektrochemischen Festkörperzelleneinheit (auch als „Festkörperakkumulator“ und/oder „Akkumulator“ bezeichnet) 20, die Lithiumionen zyklisiert, ist in **Fig. 1A** und **Fig. 1B** gezeigt. Der Akkumulator 20 umfasst eine negative Elektrode (d.h. eine Anode) 22, eine positive Elektrode (d.h. eine Kathode) 24 und eine Elektrolytschicht 26, die einen Raum zwischen zwei oder mehreren Elektroden einnimmt. Die Elektrolytschicht 26 kann eine trennende Fest- oder Halbfestkörperschicht sein, die die negative Elektrode 22 von der positiven Elektrode 24 physikalisch trennt. Die Elektrolytschicht 26 kann eine erste Vielzahl von Festkörperelektrolytteilchen 30 umfassen. Eine zweite Vielzahl von Festkör-

perelektrolytteilchen 90 kann mit negativen elektroaktiven Festkörperteilchen 50 in der negativen Elektrode 22 gemischt sein, und eine dritte Vielzahl von Festkörperelektrolytteilchen 92 kann mit positiven elektroaktiven Festkörperteilchen 60 in der positiven Elektrode 24 gemischt sein, um ein kontinuierliches Elektrolytnetz zu bilden, das ein kontinuierliches Lithium-Ionen-Leitungsnetz sein kann.

[0043] Ein erster bipolarer Stromkollektor 32 kann an oder im Bereich der negativen Elektrode 22 angeordnet sein. Ein zweiter bipolarer Stromabnehmer 34 kann an oder im Bereich der positiven Elektrode 24 angeordnet sein. Der erste und der zweite bipolare Stromkollektor 32, 34 können gleich oder unterschiedlich sein. Zum Beispiel können der erste und der zweite bipolare Stromkollektor 32, 34 jeweils eine Dicke von größer oder gleich ungefähr 2 µm bis kleiner oder gleich ungefähr 30 µm aufweisen. Der erste und der zweite bipolare Stromkollektor 32, 34 können jeweils Metallfolien sein, die wenigstens eines der folgenden Materialien umfassen: Edelstahl, Aluminium, Nickel, Eisen, Titan, Kupfer, Zinn, Legierungen davon oder jedes andere elektrisch leitende Material, das dem Fachmann bekannt ist.

[0044] Bei bestimmten Abwandlungen können der erste bipolare Stromkollektor 34 und/oder der zweite bipolare Stromkollektor 34 eine plattierte Folie sein, bei der beispielsweise eine Seite (z.B. die erste Seite oder die zweite Seite) des Stromkollektors 32, 34 ein Metall (z.B. ein erstes Metall) und eine andere Seite (z.B. die andere Seite der ersten Seite oder der zweiten Seite) des Stromkollektors 232 ein anderes Metall (z.B. ein zweites Metall) umfasst. Nur zum Beispiel kann die plattierte Folie Aluminium-Kupfer (Al-Cu), Nickel-Kupfer (Ni-Cu), Edelstahl-Kupfer (SS-Cu), Aluminium-Nickel (Al-Ni), Aluminium-Edelstahl (Al-SS) und Nickel-Edelstahl (Ni-SS) umfassen. Bei bestimmten Abwandlungen können der erste bipolare Stromkollektor 232A und/oder der zweite bipolare Stromkollektor 232B vorbeschichtet sein, z.B. mit Graphen oder kohlenstoffbeschichteten Aluminiumstromkollektoren.

[0045] In jedem Fall sammeln der erste bipolare Stromkollektor 32 und der zweite bipolare Stromkollektor 34 jeweils freie Elektronen und bewegen sie zu einem externen Stromkreis 40 und von demselben weg (wie durch die Blockpfeile dargestellt). Beispielsweise können ein unterbrechbarer externer Stromkreis 40 und eine Lastvorrichtung 42 die negative Elektrode 22 (über den ersten bipolaren Stromkollektor 32) und die positive Elektrode 24 (über den zweiten bipolaren Stromkollektor 34) verbinden.

[0046] Der Akkumulator 20 kann während der Entladung durch reversierbare elektrochemische Reaktionen, die auftreten, wenn der externe Stromkreis 40 geschlossen ist (um die negative Elektrode 22 und

die positive Elektrode 24 zu verbinden) und die negative Elektrode 22 ein geringeres Potenzial als die positive Elektrode 24 aufweist, einen elektrischen Strom erzeugen (durch Pfeile in **Fig. 1A** und **Fig. 1B** angezeigt). Die beim chemischen Potenzial vorhandene Differenz zwischen der negativen Elektrode 22 und der positiven Elektrode 24 treibt die durch eine Reaktion, z.B. die Oxidation von interkaliertem Lithium, an der negativen Elektrode 22 erzeugten Elektronen durch den externen Stromkreis 40 in Richtung der positiven Elektrode 24. Parallel werden Lithiumionen, die ebenfalls an der negativen Elektrode 22 erzeugt werden, durch die Elektrolytschicht 26 in Richtung der positiven Elektrode 24 übertragen. Die Elektronen fließen durch den externen Stromkreis 40 und die Lithiumionen wandern durch die Elektrolytschicht 26 zur positiven Elektrode 24, wo sie abgeschieden, zur Reaktion gebracht oder interkaliert werden können. Der durch den externen Stromkreis 40 fließende elektrische Strom kann nutzbar gemacht und durch die Lastvorrichtung 42 geleitet werden (in der Richtung der Pfeile), bis das Lithium in der negativen Elektrode 22 verbraucht ist und die Kapazität des Akkumulators 20 verringert ist.

[0047] Der Akkumulator 20 kann jederzeit aufgeladen oder wieder mit Strom versorgt werden, indem eine externe Stromquelle (z.B. ein Ladegerät) an den Akkumulator 20 angeschlossen wird, um die elektrochemischen Reaktionen umzukehren, die bei der Entladung des Akkumulators stattfinden. Die externe Stromquelle, die zum Aufladen des Akkumulators 20 verwendet werden kann, kann je nach Größe, Konstruktion und besonderer Endanwendung des Akkumulators 20 variieren. Einige besondere und beispielhafte externe Stromquellen umfassen unter anderem einen Wechselstrom-Gleichstrom-Wandler, der über eine Wandsteckdose und eine Kfz-Wechselstromlichtmaschine an ein Wechselstromnetz angeschlossen ist. Der Anschluss der externen Stromquelle an den Akkumulator 20 fördert eine Reaktion, z.B. eine nicht-spontane Oxidation von interkaliertem Lithium, an der positiven Elektrode 24, so dass Elektronen und Lithiumionen erzeugt werden. Die Elektronen, die durch den externen Stromkreis 40 zur negativen Elektrode 22 zurückfließen, und die Lithiumionen, die sich durch die Elektrolytschicht 26 zurück zur negativen Elektrode 22 bewegen, vereinigen sich wieder an der negativen Elektrode 22 und füllen sie mit Lithium zum Verbrauch beim nächsten Entladezyklus des Akkumulators auf. Als solcher wird jeder vollständige Entladevorgang, gefolgt von einem vollständigen Aufladevorgang, als ein Zyklus betrachtet, bei dem Lithiumionen zwischen der positiven Elektrode 24 und der negativen Elektrode 22 zyklisiert werden.

[0048] Obwohl das veranschaulichte Beispiel eine einzelne positive Elektrode 24 und eine einzelne

negative Elektrode 22 umfasst, wird der Fachmann erkennen, dass die vorliegenden Lehren auf verschiedene andere Konfigurationen anwendbar sind, einschließlich solcher mit einer oder mehreren Kathoden und einer oder mehreren Anoden, sowie auf verschiedene Stromkollektoren und Stromkollektorfolien mit elektroaktiven Teilenschichten, die auf oder benachbart zu einer oder mehreren Oberflächen davon angeordnet oder darin eingebettet sind. Ebenfalls ist anzumerken, dass der Akkumulator 20 eine Vielzahl anderer Komponenten umfassen kann, die hier zwar nicht dargestellt sind, die aber dennoch den Fachleuten bekannt sind. Zum Beispiel kann der Akkumulator 20 ein Gehäuse, Dichtungen, Polkappen und jegliche anderen herkömmlichen Komponenten oder Materialien umfassen, die sich innerhalb des Akkumulators 20, einschließlich zwischen der negativen Elektrode 22, der positiven Elektrode 24 und/oder der Elektrolytschicht 26 oder um dieselben herum, befinden können.

[0049] In vielen Anordnungen werden jeweils der Stromkollektor 32 der negativen Elektrode, die negative Elektrode 22, die Elektrolytschicht 26, die positive Elektrode 24 und der Stromkollektor 34 der positiven Elektrode als relativ dünne Schichten (z.B. mit einer Dicke von einigen Mikrometern bis zu einem Millimeter oder weniger) hergestellt und in Schichten, die in einer Reihenanordnung verbunden sind, zusammengebaut, um ein geeignetes elektrisches Energie-, Akkumulatorspannungs- und Leistungspaket bereitzustellen, z.B. um einen „SECC“ (Series-Connected Elementary Cell Core, in Reihe angeordneter elementarer Akku-Zellkern) zu erhalten. In verschiedenen anderen Fällen kann der Akkumulator 20 ferner parallel geschaltete Elektroden 22, 24 umfassen, um geeignete elektrische Energie, Akkumulatorspannung und Leistung bereitzustellen, z.B. um einen „PECC“ (Parallel-Connected Elementary Cell Core, parallel angeordneter elementarer Akku-Zellkern) zu erhalten.

[0050] Die Größe und Form des Akkumulators 20 können je nach den speziellen Anwendungen, für die er ausgelegt ist, variieren. Akkumulatorbetriebene Fahrzeuge und tragbare Geräte der Unterhaltungselektronik sind zwei Beispiele, bei denen der Akkumulator 20 sehr wahrscheinlich nach unterschiedlichen Größen-, Kapazitäts-, Spannungs-, Energie- und Leistungsspezifikationen ausgelegt wäre. Der Akkumulator 20 kann auch mit anderen ähnlichen Lithium-Ionen-Zellen oder -Akkumulatoren in Reihe oder parallel geschaltet sein, um eine höhere Ausgangsspannung, Energie und Leistung zu erzeugen, wenn dies von der Lastvorrichtung 42 benötigt wird. Der Akkumulator 20 kann einen elektrischen Strom für die Lastvorrichtung 42 erzeugen, die mit dem externen Stromkreis 40 wirkverbunden sein kann. Die Lastvorrichtung 42 kann mit dem elektrischen Strom, der durch den externen Strom-

kreis 40 fließt, wenn sich der Akkumulator 20 entlädt, vollständig oder teilweise gespeist werden. Während es sich bei der Lastvorrichtung 42 um eine beliebige Anzahl bekannter elektrisch betriebener Geräte handeln kann, umfassen einige besondere nicht einschränkende Beispiele von Strom verbrauchenden Lastvorrichtungen einen Elektromotor für ein Hybridfahrzeug oder ein vollelektrisches Fahrzeug, einen Laptop-Computer, einen Tablet-Computer, ein Mobiltelefon und schnurlose Elektrowerkzeuge oder -geräte. Die Lastvorrichtung 42 kann auch ein Stromerzeugungsgerät sein, das den Akkumulator 20 zum Zwecke der Speicherung elektrischer Energie auflädt.

[0051] Unter erneuter Bezugnahme auf **Fig. 1A** und **Fig. 1B** stellt die Elektrolytschicht 26, die halbfest sein kann, eine elektrische Trennung zwischen der negativen Elektrode 22 und der positiven Elektrode 24 bereit, wobei die elektrische Trennung einen physischen Kontakt verhindert. Die Elektrolytschicht 26 stellt außerdem einen Mindestwiderstand für den internen Durchgang von Ionen bereit. Bei verschiedenen Aspekten kann die Elektrolytschicht 26 durch eine erste Vielzahl von Festkörperelektrolytteilchen 30 definiert sein. Die Elektrolytschicht 26 kann beispielsweise in Form einer Schicht oder eines Verbundstoffs vorliegen, der die erste Vielzahl Festkörperelektrolytteilchen 30 umfasst. Die Festkörperelektrolytteilchen 30 können einen durchschnittlichen Teilchendurchmesser von größer oder gleich ungefähr 0,02 μm bis kleiner oder gleich ungefähr 20 μm , optional größer oder gleich ungefähr 0,1 μm bis kleiner oder gleich ungefähr 10 μm und bei bestimmten Aspekten optional größer oder gleich ungefähr 0,1 μm bis kleiner oder gleich ungefähr 1 μm aufweisen. Die Elektrolytschicht 26 kann in Form einer Schicht mit einer Dicke von größer oder gleich ungefähr 1 μm bis kleiner oder gleich ungefähr 1.000 μm , optional größer oder gleich ungefähr 5 μm bis kleiner oder gleich ungefähr 200 μm , optional größer oder gleich ungefähr 10 μm bis kleiner oder gleich ungefähr 100 μm , optional ungefähr 40 μm und bei bestimmten Aspekten optional ungefähr 30 μm vorliegen. Die Elektrolytschicht 26 kann eine interpartikuläre Porosität 80 zwischen den Festkörperelektrolytteilchen 30 aufweisen, die größer als 0 Vol.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 50 Vol.-%, optional größer oder gleich ungefähr 1 Vol.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 40 Vol.-% und bei bestimmten Aspekten optional größer oder gleich ungefähr 2 Vol.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 20 Vol.-% ist.

[0052] Die Festkörperelektrolytteilchen 30 können ein oder mehrere sulfidbasierte Teilchen, oxidbasierte Teilchen, metalldotierte oder substituierte Oxidteilchen mit unterschiedlicher Wertigkeit, inaktive Oxidteilchen, nitridbasierte Teilchen, hydridba-

sierte Teilchen, halogenidbasierte Teilchen und boratbasierte Teilchen umfassen.

[0053] Nur zum Beispiel können bei bestimmten Abwandlungen die sulfidbasierten Teilchen ein pseudobinäres Sulfid, ein pseudoternäres Sulfid und/oder ein pseudoquartäres Sulfid umfassen. Beispiele für pseudobinäre Sulfidsysteme umfassen $\text{Li}_2\text{S-P}_2\text{S}_5$ -Systeme (wie z.B. Li_3PS_4 , $\text{Li}_7\text{P}_3\text{S}_{11}$ und $\text{Li}_{9,6}\text{P}_3\text{S}_{12}$), $\text{Li}_2\text{S-SnS}_2$ -Systeme (wie z.B. Li_4SnS_4), $\text{Li}_2\text{S-SiS}_2$ -Systeme, $\text{Li}_2\text{S-GeS}_2$ -Systeme, $\text{Li}_2\text{S-B}_2\text{S}_3$ -Systeme, $\text{Li}_2\text{S-Ga}_2\text{S}_3$ -Systeme, $\text{Li}_2\text{S-P}_2\text{S}_3$ -Systeme und $\text{Li}_2\text{S-Al}_2\text{S}_3$ -Systeme. Beispiele für pseudoternäre Sulfidsysteme umfassen $\text{Li}_2\text{O-Li}_2\text{S-P}_2\text{S}_5$ -Systeme, $\text{Li}_2\text{S-P}_2\text{S}_5\text{-P}_2\text{O}_5$ -Systeme, $\text{Li}_2\text{S-P}_2\text{S}_5\text{-GeS}_2$ -Systeme (wie z.B. $\text{Li}_{3,25}\text{Ge}_{0,25}\text{P}_{0,75}\text{S}_4$ und $\text{Li}_{10}\text{GeP}_2\text{S}_{12}$), $\text{Li}_2\text{S-P}_2\text{S}_5\text{-LiX}$ -Systeme (wobei X für F, Cl, Br oder I steht) (wie z.B. $\text{Li}_6\text{PS}_5\text{Br}$, $\text{Li}_6\text{PS}_5\text{Cl}$, $\text{Li}_7\text{P}_2\text{S}_8\text{I}$ und $\text{Li}_4\text{PS}_4\text{I}$), $\text{Li}_2\text{S-As}_2\text{S}_5\text{-SnS}_2$ -Systeme (wie z.B. $\text{Li}_{3,833}\text{Sn}_{0,833}\text{As}_{0,166}\text{S}_4$), $\text{Li}_2\text{S-P}_2\text{S}_5\text{-Al}_2\text{S}_3$ -Systeme, $\text{Li}_2\text{S-LiX-SiS}_2$ -Systeme (wobei X für F, Cl, Br oder I steht), $0,4\text{Li}_1 \cdot 0,6\text{Li}_4\text{SnS}_4$ und $\text{Li}_{11}\text{Si}_2\text{PS}_{12}$. Beispiele für pseudoquartäre Sulfidsysteme umfassen $\text{Li}_2\text{O-Li}_2\text{S-P}_2\text{S}_5\text{-P}_2\text{O}_5$ -Systeme, $\text{Li}_{9,54}\text{S}_{1,74}\text{P}_{1,44}\text{S}_{11,7}\text{Cl}_{0,3}$, $\text{Li}_7\text{P}_{2,9}\text{Mn}_{0,1}\text{S}_{10,7}\text{I}_{0,3}$ und $\text{Li}_{10,35}[\text{Sn}_{0,27}\text{Si}_{1,08}]\text{P}_{1,65}\text{S}_{12}$.

[0054] Bei bestimmten Abwandlungen können die oxidbasierten Teilchen eine oder mehrere Granatkeramiken, Oxide vom Typ LISICON, Oxide vom Typ NASICON und Keramiken vom Typ Perowskit umfassen. Die Granatkeramik kann beispielsweise aus der Gruppe ausgewählt sein, die aus $\text{Li}_7\text{La}_3\text{Zr}_2\text{O}_{12}$, $\text{Li}_{6,2}\text{Ga}_{0,3}\text{La}_{2,95}\text{Rb}_{0,05}\text{Zr}_2\text{O}_{12}$, $\text{Li}_{6,85}\text{La}_{2,9}\text{Ca}_{0,1}\text{Zr}_{1,75}\text{Nb}_{0,25}\text{O}_{12}$, $\text{Li}_{6,25}\text{Al}_{0,25}\text{La}_3\text{Zr}_2\text{O}_{12}$, $\text{Li}_{6,75}\text{La}_3\text{Zr}_{1,75}\text{Nb}_{0,25}\text{O}_{12}$ und Kombinationen davon besteht. Die Oxide vom Typ LISICON können aus der Gruppe ausgewählt sein, die aus $\text{Li}_{2+2x}\text{Zn}_{1-x}\text{GeO}_4$ (wobei $0 < x < 1$), $\text{Li}_{14}\text{Zn}(\text{GeO}_4)_4$, $\text{Li}_{3+x}(\text{P}_{1-x}\text{Si}_x)\text{O}_4$ (wobei $0 < x < 1$), $\text{Li}_{3+x}\text{Ge}_x\text{V}_{1-x}\text{O}_4$ (wobei $0 < x < 1$) und Kombinationen davon besteht. Die Oxide vom Typ NASICON können durch $\text{LiMM}'(\text{PO}_4)_3$ definiert sein, wobei M und M' unabhängig voneinander aus Al, Ge, Ti, Sn, Hf, Zr und La ausgewählt sind. Bei bestimmten Abwandlungen können die Oxide vom Typ NASICON beispielsweise aus der Gruppe ausgewählt sein, die aus $\text{Li}_{1+x}\text{Al}_x\text{Ge}_{2-x}(\text{PO}_4)_3$ (LAGP) (wobei $0 \leq x \leq 2$), $\text{Li}_{1,4}\text{Al}_{0,4}\text{Ti}_{1,6}(\text{PO}_4)_3$, $\text{Li}_{1,3}\text{Al}_{0,3}\text{Ti}_{1,7}(\text{PO}_4)_3$, $\text{LiTi}_2(\text{PO}_4)_3$, $\text{LiGeTi}(\text{PO}_4)_3$, $\text{LiGe}_2(\text{PO}_4)_3$, $\text{LiHf}_2(\text{PO}_4)_3$ und Kombinationen davon besteht. Die Keramiken vom Typ Perowskit können aus der Gruppe ausgewählt sein, die aus $\text{Li}_{1,3}\text{La}_{0,53}\text{TiO}_3$, $\text{LiSr}_{1,65}\text{Zr}_{1,3}\text{Ta}_{1,7}\text{O}_9$, $\text{Li}_{2x-y}\text{Sr}_{1-x}\text{Ta}_y\text{Zr}_{1-y}\text{O}_3$ (wobei $x = 0,75y$ und $0,60 < y < 0,75$), $\text{Li}_{3/8}\text{Sr}_{7/16}\text{Nb}_{3/4}\text{Zr}_{1/4}\text{O}_3$, $\text{Li}_{3x}\text{La}_{(2/3-x)}\text{TiO}_3$ (wobei $0 < x < 0,25$) und Kombinationen davon besteht.

[0055] Nur zum Beispiel können bei bestimmten Abwandlungen die metalldotierten Oxidteilchen oder die substituierten Oxidteilchen mit unterschied-

licher Wertigkeit aluminiumdotiertes (Al-dotiertes) oder niobdotiertes (Nb-dotiertes) $\text{Li}_7\text{La}_3\text{Zr}_2\text{O}_{12}$, antimondotiertes (Sb-dotiertes) $\text{Li}_7\text{La}_3\text{Zr}_2\text{O}_{12}$, galliumdotierte (Ga-dotiertes) $\text{Li}_7\text{La}_3\text{Zr}_2\text{O}_{12}$, chromdotiertes (Cr-dotiertes) und/oder mit Vanadium (V) substituiertes $\text{LiSn}_2\text{P}_3\text{O}_{12}$, mit Aluminium (Al) substituiertes $\text{Li}_{1+x+y}\text{Al}_x\text{Ti}_{2-x}\text{Si}_y\text{P}_{3-y}\text{O}_{12}$ (wobei $0 < x < 2$ und $0 < y < 3$) und Kombinationen davon umfassen.

[0056] Nur zum Beispiel können bei bestimmten Abwandlungen die inaktiven Oxidteilchen SiO_2 , Al_2O_3 , TiO_2 , ZrO_2 und Kombinationen davon umfassen; nur zum Beispiel können die nitridbasierten Teilchen Li_3N , Li_7PN_4 , LiSi_2N_3 und Kombinationen davon umfassen; nur zum Beispiel können die hydridbasierten Teilchen LiBH_4 , $\text{LiBH}_4\text{-LiX}$ (wobei X = Cl, Br oder I), LiNH_2 , Li_2NH , $\text{LiBH}_4\text{-LiNH}_2$, Li_3AlH_6 und Kombinationen davon umfassen; nur zum Beispiel können die halogenidbasierten Teilchen LiI , Li_3InCl_6 , Li_2CdCl_4 , Li_2MgCl_4 , LiCdI_4 , Li_2ZnI_4 , Li_3OCl , Li_3YCl_6 , Li_3YBr_6 und Kombinationen davon umfassen; und nur zum Beispiel können die boratbasierten Teilchen $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$, $\text{Li}_2\text{O-B}_2\text{O}_3\text{-P}_2\text{O}_5$ und Kombinationen davon umfassen.

[0057] Bei verschiedenen Aspekten kann die erste Vielzahl von Festkörperelektrolytteilchen 30 ein oder mehrere Elektrolytmaterialien umfassen, die aus der Gruppe ausgewählt sind, die aus einem $\text{Li}_2\text{S-P}_2\text{S}_5$ -System, einem $\text{Li}_2\text{S-P}_2\text{S}_5\text{-MO}_x$ -System (wobei $1 < x < 7$), einem $\text{Li}_2\text{S-P}_2\text{S}_5\text{-MS}_x$ -System (wobei $1 < x < 7$), $\text{Li}_{10}\text{GeP}_2\text{S}_{12}$ (LGPS), $\text{Li}_6\text{PS}_5\text{X}$ (wobei X für Cl, Br oder I steht) (Lithiumargyrodit), $\text{Li}_7\text{P}_2\text{S}_8\text{I}$, $\text{Li}_{10,35}\text{Ge}_{1,35}\text{P}_{1,65}\text{S}_{12}$, $\text{Li}_{3,25}\text{Ge}_{0,25}\text{P}_{0,75}\text{S}_4$ (Thio-LISICON), $\text{Li}_{10}\text{SnP}_2\text{S}_{12}$, $\text{Li}_{10}\text{SiP}_2\text{S}_{12}$, $\text{Li}_{9,54}\text{Si}_{1,74}\text{P}_{1,44}\text{S}_{11,7}\text{Cl}_{0,3}$, $(1-x)\text{P}_2\text{S}_5\text{-xLi}_2\text{S}$ (wobei $0,5 \leq x \leq 0,7$), $\text{Li}_{3,4}\text{Si}_{0,4}\text{P}_{0,6}\text{S}_4$, $\text{PLi}_{10}\text{GeP}_2\text{S}_{11,7}\text{O}_{0,3}$, $\text{Li}_{9,6}\text{P}_3\text{S}_{12}$, $\text{Li}_7\text{P}_3\text{S}_{11}$, $\text{Li}_9\text{P}_3\text{S}_9\text{O}_3$, $\text{Li}_{10,35}\text{Ge}_{1,35}\text{P}_{1,63}\text{S}_{12}$, $\text{Li}_{9,8}\text{Sn}_{0,8}\text{P}_{2,19}\text{S}_{12}$, $\text{Li}_{10}(\text{Si}_{0,5}\text{Ge}_{0,5})\text{P}_2\text{S}_{12}$, $\text{Li}_{10}(\text{Ge}_{0,5}\text{Sn}_{0,5})\text{P}_2\text{S}_{12}$, $\text{Li}_{10}(\text{Si}_{0,5}\text{Sn}_{0,5})\text{P}_2\text{S}_{12}$, $\text{Li}_{3,833}\text{Sn}_{0,833}\text{As}_{0,166}\text{S}_4$, $\text{Li}_7\text{La}_3\text{Zr}_2\text{O}_{12}$, $\text{Li}_{6,2}\text{Ga}_{0,3}\text{La}_{2,95}\text{Rb}_{0,05}\text{Zr}_2\text{O}_{12}$, $\text{Li}_{16,85}\text{La}_{2,9}\text{Ca}_{0,1}\text{Zr}_{1,75}\text{Nb}_{0,25}\text{O}_{12}$, $\text{Li}_{6,25}\text{Al}_{0,25}\text{La}_3\text{Zr}_2\text{O}_{12}$, $\text{Li}_{6,75}\text{La}_3\text{Zr}_{1,75}\text{Nb}_{0,25}\text{O}_{12}$, $\text{Li}_{6,75}\text{La}_3\text{Zr}_{1,75}\text{Nb}_{0,25}\text{O}_{12}$, $\text{Li}_{2+2x}\text{Zn}_{1-x}\text{GeO}_4$ (wobei $0 < x < 1$), $\text{Li}_{14}\text{Zn}(\text{GeO}_4)_4$, $\text{Li}_{3+x}(\text{P}_{1-x}\text{Si}_x)\text{O}_4$ (wobei $0 < x < 1$), $\text{Li}_{3+x}\text{Ge}_x\text{V}_{1-x}\text{O}_4$ (wobei $0 < x < 1$), $\text{LiMM}'(\text{PO}_4)_3$ (wobei M und M' unabhängig voneinander aus Al, Ge, Ti, Sn, Hf, Zr, und La ausgewählt sind), $\text{Li}_{3,3}\text{La}_{0,53}\text{TiO}_3$, $\text{LiSr}_{1,65}\text{Zr}_{1,3}\text{Ta}_{1,7}\text{O}_9$, $\text{Li}_{2x-y}\text{Sr}_{1-x}\text{Ta}_y\text{Zr}_{1-y}\text{O}_3$ (wobei $x = 0,75y$ und $0,60 < y < 0,75$), $\text{Li}_{3/8}\text{Sr}_{7/16}\text{Nb}_{3/4}\text{Zr}_{1/4}\text{O}_3$, $\text{Li}_{3x}\text{La}_{(2/3-x)}\text{TiO}_3$ (wobei $0 < x < 0,25$), aluminiumdotiertes (Al-dotiertes) oder niobdotiertes (Nb-dotiertes) $\text{Li}_7\text{La}_3\text{Zr}_2\text{O}_{12}$, antimondotiertes (Sb-dotiertes) $\text{Li}_7\text{La}_3\text{Zr}_2\text{O}_{12}$, galliumdotiertes (Ga-dotiertes) $\text{Li}_7\text{La}_3\text{Zr}_2\text{O}_{12}$, mit Chrom (Cr) und/oder Vanadium (V) substituiertes $\text{LiSn}_2\text{P}_3\text{O}_{12}$, mit Aluminium (Al) substituiertes $\text{Li}_{1+x+y}\text{Al}_x\text{Ti}_{2-x}\text{Si}_y\text{P}_{3-y}\text{O}_{12}$ (wobei $0 < x < 2$ und $0 < y < 3$), $\text{LiI-Li}_4\text{SnS}_4$, Li_3N , Li_7PN_4 , LiSi_2N_3 , LiBH_4 , $\text{LiBH}_4\text{-LiX}$

(wobei $x = \text{Cl, Br oder I}$), LiNH_2 , Li_2NH , $\text{LiBH}_4\text{-LiNH}_2$, Li_3AlH_6 , LiI , Li_3InCl_6 , Li_2CdCl_4 , Li_2MgCl_4 , LiCdI_4 , Li_2ZnI_4 , Li_3OCl , $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$, $\text{Li}_2\text{O-B}_2\text{O}_3\text{-P}_2\text{O}_5$ und Kombinationen davon besteht.

[0058] Bei bestimmten Abwandlungen kann die erste Vielzahl von Festkörperelektrolytteilchen 30 ein oder mehrere Elektrolytmaterialien umfassen, die aus der Gruppe ausgewählt sind, die aus einem $\text{Li}_2\text{S-P}_2\text{S}_5$ -System, einem $\text{Li}_2\text{S-P}_2\text{S}_5\text{-MO}_x$ -System (wobei $1 < x < 7$), einem $\text{Li}_2\text{S-P}_2\text{S}_5\text{-MS}_x$ -System (wobei $1 < x < 7$), $\text{Li}_{10}\text{GeP}_2\text{S}_{12}$ (LGPS), $\text{Li}_6\text{PS}_5\text{X}$ (wobei X für Cl, Br oder I steht) (Lithiumargyrodit), $\text{Li}_7\text{P}_2\text{S}_8\text{I}$, $\text{Li}_{10,35}\text{Ge}_{1,35}\text{P}_{1,65}\text{S}_{12}$, $\text{Li}_{3,25}\text{Ge}_{0,25}\text{P}_{0,75}\text{S}_4$ (Thio-LISICON), $\text{Li}_{10}\text{SnP}_2\text{S}_{12}$, $\text{Li}_{10}\text{SiP}_2\text{S}_{12}$, $\text{Li}_{9,54}\text{Si}_{1,74}\text{P}_{1,44}\text{S}_{11,7}\text{Cl}_{0,3}$, $(1-x)\text{P}_2\text{S}_5\text{-xLi}_2\text{S}$ (wobei $0,5 \leq x \leq 0,7$), $\text{Li}_{3,4}\text{Si}_{0,4}\text{P}_{0,6}\text{S}_4$, $\text{PLi}_{10}\text{GeP}_2\text{S}_{11,7}\text{O}_{0,3}$, $\text{Li}_{9,6}\text{P}_3\text{S}_{12}$, $\text{Li}_7\text{P}_3\text{S}_{11}$, $\text{Li}_9\text{P}_3\text{S}_9\text{O}_3$, $\text{Li}_{10,35}\text{Ge}_{1,35}\text{P}_{1,63}\text{S}_{12}$, $\text{Li}_{9,81}\text{Sn}_{0,81}\text{P}_{2,19}\text{S}_{12}$, $\text{Li}_{10}(\text{Si}_{0,5}\text{Ge}_{0,5})\text{P}_2\text{S}_{12}$, $\text{Li}_{10}(\text{Ge}_{0,5}\text{Sn}_{0,5})\text{P}_2\text{S}_{12}$, $\text{Li}_{10}(\text{Si}_{0,5}\text{Sn}_{0,5})\text{P}_2\text{S}_{12}$, $\text{Li}_{3,833}\text{Sn}_{0,833}\text{As}_{0,16}\text{S}_4$ und Kombinationen davon besteht.

[0059] Obwohl nicht veranschaulicht, wird der Fachmann erkennen, dass in bestimmten Fällen ein oder mehrere Bindemittelteilchen mit den Festkörperelektrolytteilchen 30 gemischt werden können. Beispielsweise kann bei bestimmten Aspekten die Elektrolytschicht 26 größer oder gleich 0 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 10 Gew.-% und bei bestimmten Aspekten optional größer oder gleich ungefähr 0,5 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 10 Gew.-% eines oder mehrerer Bindemittel umfassen. Nur zum Beispiel können das eine oder die mehreren polymeren Bindemittel Polyvinylidendifluorid (PVDF), Polytetrafluorethylen (PTFE), Ethylen-Propylen-Dien-Monomer-Kautschuk (EPDM), Nitril-Butadien-Kautschuk (NBR), Styrol-Butadien-Kautschuk (SBR) und Lithiumpolyacrylat (LiPAA) umfassen.

[0060] Die negative Elektrode 22 kann aus einem Lithiumwirtschichtmaterial gebildet sein, das in der Lage ist, als negativer Pol eines Lithium-Ionen-Akkumulators zu fungieren. Die negative Elektrode 22 kann in Form einer Schicht vorliegen, die eine Dicke von größer oder gleich ungefähr $1 \mu\text{m}$ bis kleiner oder gleich $1000 \mu\text{m}$, optional größer oder gleich ungefähr $5 \mu\text{m}$ bis kleiner oder gleich $400 \mu\text{m}$ und bei bestimmten Aspekten optional größer oder gleich ungefähr $10 \mu\text{m}$ bis kleiner oder gleich ungefähr $300 \mu\text{m}$ aufweist. Bei bestimmten Abwandlungen kann die negative Elektrode 22 durch eine Vielzahl negativer elektroaktiver Festkörperteilchen 50 definiert sein. Die negativen elektroaktiven Festkörperteilchen 50 können einen durchschnittlichen Teilchendurchmesser von größer oder gleich ungefähr $0,01 \mu\text{m}$ bis kleiner oder gleich ungefähr $50 \mu\text{m}$ und bei bestimmten Aspekten optional größer oder gleich ungefähr $1 \mu\text{m}$ bis kleiner oder gleich ungefähr $20 \mu\text{m}$ aufweisen.

[0061] Die zweite Vielzahl von Festkörperelektrolytteilchen 90 kann mit der ersten Vielzahl von Festkörperelektrolytteilchen 30 identisch oder davon verschieden sein. Bei bestimmten Abwandlungen können die negativen elektroaktiven Festkörperteilchen 50 ein oder mehrere negative elektroaktive kohlenstoffhaltige Materialien wie Graphit, Mesokohlenstoff-Mikroperlen (MCMB), Graphit-Kohlenstoff-Fasern, expandiertes Graphit, weichen Kohlenstoff, harten Kohlenstoff, Naturgraphit, Graphen, Kohlenstoffnanoröhren (CNTs) umfassen. Bei anderen Abwandlungen können die negativen elektroaktiven Festkörperteilchen 50 siliciumbasiert sein und z.B. eine Siliciumlegierung und/oder ein Silicium-Graphit-Gemisch umfassen. Die negativen elektroaktiven Festkörperteilchen 50 können ein zweidimensionales Material wie zweidimensionale Übergangsmetall-Dichalcogenide (z.B. geschichtetes MoS_2 , das eine Zwischenschichtdicke von ungefähr $0,62 \text{ nm}$ aufweisen kann) und/oder ein zweidimensionales Silicium umfassen.

[0062] In bestimmten Fällen kann die negative Elektrode 22, wie veranschaulicht, ein Verbundstoff sein, der ein Gemisch aus den negativen elektroaktiven Festkörperteilchen 50 und der zweiten Vielzahl von Festkörperelektrolytteilchen 90 umfasst. Zum Beispiel kann die negative Elektrode 22 größer oder gleich ungefähr 30 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 99,5 Gew.-% und bei bestimmten Aspekten optional größer oder gleich ungefähr 50 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 95 Gew.-% der negativen elektroaktiven Festkörperteilchen 50 und größer oder gleich 0 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 70 Gew.-%, optional größer oder gleich 0 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 50 Gew.-% und bei bestimmten Aspekten optional größer oder gleich ungefähr 5 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 20 Gew.-% der zweiten Vielzahl von Festkörperelektrolytteilchen 90 umfassen. Die zweite Vielzahl von Festkörperelektrolytteilchen 90 kann mit der ersten Vielzahl von Festkörperelektrolytteilchen 30 und/oder der dritten Vielzahl von Festkörperelektrolytteilchen 92 identisch oder davon verschieden sein. Die negativen Elektroden 22 können eine interpartikuläre Porosität 82 zwischen den negativen elektroaktiven Festkörperteilchen 50 und/oder den Festkörperelektrolytteilchen 90 aufweisen, die größer oder gleich 0 Vol.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 50 Vol.-% und bei bestimmten Aspekten optional größer oder gleich ungefähr 2 Vol.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 20 Vol.-% ist.

[0063] Obwohl nicht veranschaulicht, kann die negative Elektrode 22 bei bestimmten Abwandlungen einen oder mehrere leitfähige Zusatzstoffe und/oder Bindemittel umfassen. Beispielsweise können die negativen elektroaktiven Festkörperteilchen 50 (und/oder die optionale zweite Vielzahl von Festkörperelektrolytteilchen 90) optional mit einem oder

mehreren elektrisch leitenden Materialien (nicht gezeigt), die einen elektronenleitenden Pfad bereitstellen, und/oder wenigstens einem polymeren Bindemittelmaterial (nicht gezeigt), das die strukturelle Integrität der negativen Elektrode 22 verbessert, vermischt sein.

[0064] Zum Beispiel können die negativen elektroaktiven Festkörperelektrolytteilchen 50 (und/oder die zweite Vielzahl von Festkörperelektrolytteilchen 90 (und/oder die optionale zweite Vielzahl von Festkörperelektrolytteilchen 90) optional mit Bindemitteln vermischt sein, wie Polyvinylidendifluorid (PVDF), Polyvinylidenfluorid-Hexafluorpropylen (PVDF-HFP), Polytetrafluorethylen (PTFE), Natriumcarboxymethylcellulose (CMC), Ethylen-Propylen-Dien-Monomer-Kautschuk (EPDM), Nitril-Butadien-Kautschuk (NBR), Styrol-Butadien-Kautschuk (SBR), Styrol-Ethylen-Butylen-Styrol-Copolymere (SEBS), Styrol-Butadien-Styrol-Copolymere (SBS), Polyethylenglykol (PEG) und/oder Lithium-Polyacrylat-Bindemittel (LiPAA-Bindemittel). Elektrisch leitende Materialien können beispielsweise kohlenstoffbasierte Materialien oder ein leitfähiges Polymer sein. Kohlenstoffbasierte Materialien können beispielsweise Graphitteilchen, Acetylschwarz (z.B. KITCHEN™-Schwarz oder DENKA™-Schwarz), Kohlenstofffasern und -nanoröhren, Graphen (z.B. Graphenoxid), Ruß (z.B. Super P) und dergleichen umfassen. Beispiele für ein leitfähiges Polymer können Polyanilin, Polythiophen, Polyacetylen, Polypyrrol und dergleichen umfassen. Bei bestimmten Aspekten können Mischungen aus den leitfähigen Zusatzstoffen und/oder Bindemittelmaterialien verwendet werden.

[0065] Die negative Elektrode 22 kann größer oder gleich 0 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 30 Gew.-% und bei bestimmten Aspekten optional größer oder gleich ungefähr 2 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 10 Gew.-% des einen oder der mehreren elektrisch leitenden Zusatzstoffe und größer oder gleich 0 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 20 Gew.-% und bei bestimmten Aspekten optional größer oder gleich ungefähr 1 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 10 Gew.-% des einen oder der mehreren Bindemittel umfassen.

[0066] Die positive Elektrode 24 kann aus einem lithiumbasierten elektroaktiven Material gebildet sein, das einer Lithiuminterkalation und -deinterkalation unterzogen werden kann, während es als positiver Pol des Akkumulators 20 fungiert. Die positive Elektrode 24 kann in Form einer Schicht vorliegen, die eine Dicke von größer oder gleich ungefähr 1 µm bis kleiner oder gleich 1000 µm, optional größer oder gleich ungefähr 5 µm bis kleiner oder gleich ungefähr 400 µm und bei bestimmten Aspekten optional größer oder gleich ungefähr 10 µm bis kleiner oder gleich ungefähr 300 µm aufweist. Bei

bestimmten Abwandlungen kann die positive Elektrode 24 durch eine Vielzahl positiver elektroaktiver Festkörperteilchen 60 definiert sein. Die positiven elektroaktiven Festkörperteilchen 60 können einen durchschnittlichen Teilchendurchmesser von größer oder gleich ungefähr 0,01 µm bis kleiner oder gleich ungefähr 50 µm und bei bestimmten Aspekten optional größer oder gleich ungefähr 1 µm bis kleiner oder gleich ungefähr 20 µm aufweisen.

[0067] Bei bestimmten Abwandlungen kann die positive Elektrode 24 eine geschichtete Oxidkathode, eine Spinellkathode oder eine Polyanionkathode sein. In den Fällen einer geschichteten Oxidkathode (z.B. Steinsalz-Schichtoxide) können die positiven elektroaktiven Festkörperteilchen 60 beispielsweise ein oder mehrere positive elektroaktive Materialien umfassen, die für Lithium-Ionen-Festkörperakkumulatoren aus LiCoO_2 , $\text{LiNi}_x\text{Mn}_y\text{Co}_{1-x-y}\text{O}_2$ (wobei $0 \leq x \leq 1$ und $0 \leq y \leq 1$), $\text{LiNi}_x\text{Mn}_y\text{Al}_{1-x-y}\text{O}_2$ (wobei $0 < x \leq 1$ und $0 < y \leq 1$), $\text{LiNi}_x\text{Mn}_{1-x}\text{O}_2$ (wobei $0 \leq x \leq 1$) und $\text{Li}_{1+x}\text{MO}_2$ (wobei $0 \leq x \leq 1$) ausgewählt sind. Die Spinellkathode kann ein oder mehrere positive elektroaktive Materialien umfassen, wie z.B. LiMn_2O_4 und $\text{LiNi}_{0,5}\text{Mn}_{1,5}\text{O}_4$. Das Polyanionen kation kann zum Beispiel für Lithium-Ionen-Akkumulatoren ein Phosphat, wie LiFePO_4 , LiVPO_4 , $\text{LiV}_2(\text{PO}_4)_3$, $\text{Li}_2\text{FePO}_4\text{F}$, $\text{Li}_3\text{Fe}_3(\text{PO}_4)_4$ oder $\text{Li}_3\text{V}_2(\text{PO}_4)\text{F}_3$, und/oder ein Silikat, wie LiFeSiO_4 für Lithiumionen-Akkumulatoren, umfassen. Auf diese Weise können die positiven elektroaktiven Festkörperteilchen 60 bei verschiedenen Aspekten ein oder mehrere positive elektroaktive Materialien umfassen, die aus der Gruppe ausgewählt sind, die aus LiCoO_2 , $\text{LiNi}_x\text{Mn}_y\text{Co}_{1-x-y}\text{O}_2$ (wobei $0 \leq x \leq 1$ und $0 \leq y \leq 1$), $\text{LiNi}_x\text{Mn}_{1-x}\text{O}_2$ (wobei $0 \leq x \leq 1$), $\text{Li}_{1+x}\text{MO}_2$ (wobei $0 \leq x \leq 1$), LiMn_2O_4 , $\text{LiNi}_x\text{Mn}_{1,5}\text{O}_4$, LiFePO_4 , LiVPO_4 , $\text{LiV}_2(\text{PO}_4)_3$, $\text{Li}_2\text{FePO}_4\text{F}$, $\text{Li}_3\text{Fe}_3(\text{PO}_4)_4$, $\text{Li}_3\text{V}_2(\text{PO}_4)\text{F}_3$, LiFeSiO_4 und Kombinationen davon besteht. Bei bestimmten Aspekten können die positiven elektroaktiven Festkörperteilchen 60 beschichtet sein (z.B. mit LiNbO_3 und/oder Al_2O_3) und/oder das positive elektroaktive Material kann dotiert sein (z.B. mit Aluminium und/oder Magnesium).

[0068] Bei bestimmten Abwandlungen ist die positive Elektrode 24, wie veranschaulicht, ein Verbundstoff, der ein Gemisch aus den positiven elektroaktiven Festkörperteilchen 60 und der dritten Vielzahl von Festkörperelektrolytteilchen 92 umfasst. Zum Beispiel kann die positive Elektrode 24 größer oder gleich ungefähr 30 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 98 Gew.-% und bei bestimmten Aspekten optional größer oder gleich ungefähr 50 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 95 Gew.-% der positiven elektroaktiven Festkörperteilchen 60 und größer oder gleich 0 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 70 Gew.-%, optional größer oder gleich 0 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 50 Gew.-% und bei bestimmten Aspekten optional größer oder gleich

ungefähr 5 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 20 Gew.-% der dritten Vielzahl von Festkörperelektrolytteilchen 92 umfassen. Die dritte Vielzahl von Festkörperelektrolytteilchen 92 kann mit der ersten und/- oder zweiten Vielzahl von Festkörperelektrolytteilchen 30, 90 identisch oder davon verschieden sein. Die positiven Elektroden 24 können eine interpartikuläre Porosität 84 zwischen den positiven elektroaktiven Festkörperteilchen 60 und/oder den Festkörperelektrolytteilchen 92 aufweisen, die größer oder gleich 0 Vol.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 50 Vol.-% und bei bestimmten Aspekten optional größer oder gleich ungefähr 2 Vol.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 20 Vol.-% ist.

[0069] Obwohl nicht veranschaulicht, kann die positive Elektrode 24 bei bestimmten Abwandlungen einen oder mehrere leitfähige Zusatzstoffe und/oder Bindemittel umfassen. Beispielsweise können die positiven elektroaktiven Festkörperteilchen 60 (und/oder die dritte Vielzahl von Festkörperelektrolytteilchen 92) optional mit einem oder mehreren elektrisch leitenden Materialien (nicht gezeigt), die einen elektronenleitenden Pfad bereitstellen, und/oder wenigstens einem polymeren Bindemittelmaterial (nicht gezeigt), das die strukturelle Integrität der positiven Elektrode 24 verbessert, vermischt sein.

[0070] Zum Beispiel können die positiven elektroaktiven Festkörperelektrolytteilchen 60 (und/oder die dritte Vielzahl von Festkörperelektrolytteilchen 92) optional mit Bindemitteln vermischt sein, wie Polyvinylidendifluorid (PVDF), Polyvinylidenfluorid-Hexafluorpropylen (PVDF-HFP), Polytetrafluorethylen (PTFE), Natriumcarboxymethylcellulose (CMC), Ethylen-Propylen-Dien-Monomer-Kautschuk (EPDM), Nitril-Butadien-Kautschuk (NBR), Styrol-Butadien-Kautschuk (SBR), Styrol-Ethylen-Butylen-Styrol-Copolymere (SEBS), Styrol-Butadien-Styrol-Copolymere (SBS), Polyethylenglykol (PEG) und/oder Lithium-Polyacrylat-Bindemittel (LiPAA-Bindemittel). Elektrisch leitende Materialien können beispielsweise kohlenstoffbasierte Materialien oder ein leitfähiges Polymer sein. Kohlenstoffbasierte Materialien können beispielsweise Graphitteilchen, Acetylschwarz (z.B. KITCHEN™-Schwarz oder DENKA™-Schwarz), Kohlenstofffasern und -nanoröhren, Graphen (z.B. Graphenoxid), Ruß (z.B. Super P) und dergleichen umfassen. Beispiele für ein leitendes Polymer können Polyanilin, Polythiophen, Polyacetylen, Polypyrrol und dergleichen umfassen. Bei bestimmten Aspekten können Mischungen aus den leitfähigen Zusatzstoffen und/oder Bindemittelmaterialien verwendet werden.

[0071] Die positive Elektrode 24 kann größer oder gleich 0 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 30 Gew.-% und bei bestimmten Aspekten optional größer oder gleich ungefähr 2 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 10 Gew.-% des einen oder der meh-

ren elektrisch leitenden Zusatzstoffe und größer oder gleich 0 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 20 Gew.-% und bei bestimmten Aspekten optional größer oder gleich ungefähr 1 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 10 Gew.-% des einen oder der mehreren Bindemittel umfassen.

[0072] Wie in **Fig. 1A** veranschaulicht, kann der direkte Kontakt zwischen den elektroaktiven Festkörperteilchen 50, 60 und/oder den Festkörperelektrolytteilchen 30, 90, 92 viel geringer sein als der Kontakt zwischen einem flüssigen Elektrolyt und elektroaktiven Festkörperteilchen in vergleichbaren Akkumulatoren, die keine Festkörperakkumulatoren sind. Wie in **Fig. 1A** veranschaulicht, kann ein Akkumulator 20 in umweltschonender Ausführung beispielsweise eine interpartikuläre Gesamtporosität aufweisen, die größer oder gleich ungefähr 10 Vol.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 40 Vol.-% ist. Bei bestimmten Abwandlungen kann ein polymerer Gelelektrolyt (z.B. ein halbfester Elektrolyt) in einem Festkörperakkumulator so angeordnet sein, dass er die Grenzflächen benetzt und/oder die Hohlräume zwischen den Festkörperelektrolytteilchen und/oder den aktiven Festkörpermaterialteilchen ausfüllt. Derartige polymere Gelelektrolyte ermöglichen jedoch häufig keine schnelle Lithium-Ionen-Interkalation und -Deinterkalation, insbesondere im Falle von graphithaltigen negativen Elektroden.

[0073] Die vorliegende Offenbarung sieht ein polymeres Gelelektrolytsystem 100 vor. Ein Gelelektrolytsystem weist eine Viskosität von größer oder gleich ungefähr 10.000 Centipoise auf. Bei verschiedenen Aspekten umfasst das polymere Gelsystem 100 kein Lithium enthaltende Kationen, die eine Interkalation vor der Lithiierung ermöglichen und dadurch die Leistung verbessern, z.B. bei 10 °C. Zum Beispiel kann, wie in **Fig. 1B** veranschaulicht, das polymere Gelelektrolytsystem 100 innerhalb des Akkumulators 20 zwischen den Festkörperelektrolytteilchen 30, 90, 92 und/oder den elektroaktiven Festkörperteilchen 50, 60 angeordnet sein, um nur zum Beispiel die interpartikuläre Porosität 80, 82, 84 zu verringern und den Ionenkontakt zu verbessern und/oder eine höhere thermische Stabilität zu ermöglichen. Bei bestimmten Abwandlungen kann der Akkumulator 20 größer oder gleich ungefähr 0,5 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 50 Gew.-% und bei bestimmten Aspekten optional größer oder gleich ungefähr 5 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 35 Gew.-% des polymeren Gelelektrolytsystems 100 umfassen.

[0074] In der veranschaulichten Figur hat es zwar den Anschein, dass keine Poren oder Hohlräume verbleiben, dennoch kann abhängig von der Penetration des polymeren Gelelektrolytsystems 100 zwischen benachbarten Teilchen eine gewisse Porosität verbleiben (beispielsweise zwischen den elektroakti-

ven Festkörperteilchen 50 und/oder den Festkörperelektrolytteilchen 90 und/oder den Festkörperelektrolytteilchen 30 und zwischen den elektroaktiven Festkörperteilchen 60 und/oder den Festkörperelektrolytteilchen 92 und/oder den Festkörperelektrolytteilchen 30). Beispielsweise kann ein Akkumulator 20, der das polymere Gelelektrolytssystem 100 umfasst, eine Porosität von kleiner oder gleich ungefähr 50 Vol.-% und bei bestimmten Aspekten optional kleiner oder gleich ungefähr 30 Vol.-% aufweisen.

[0075] Bei verschiedenen Aspekten umfasst das polymere Gelelektrolytssystem 100 ein nichtflüchtiges Gel und ein kein Lithium enthaltendes Salz. Zum Beispiel kann das polymere Gelelektrolytssystem 100 größer oder gleich ungefähr 50 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 99,9 Gew.-% und bei bestimmten Aspekten optional größer oder gleich ungefähr 80 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 99,5 Gew.-% des nichtflüchtigen Gels und größer oder gleich ungefähr 0,1 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 20 Gew.-% und bei bestimmten Aspekten optional größer oder gleich ungefähr 0,5 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 10 Gew.-% des kein Lithium enthaltenden Salzes umfassen.

[0076] Ein nichtflüchtiges Gel ist ein Gel, das einen niedrigen Dampfdruck aufweist, z.B. kleiner oder gleich ungefähr 10 mmHg bei 25 °C. Bei verschiedenen Aspekten kann das nichtflüchtige Gel größer oder gleich 0 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 50 Gew.-% und bei bestimmten Aspekten optional größer oder gleich ungefähr 1 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 20 Gew.-% des polymeren Wirts und größer oder gleich ungefähr 5 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 100 Gew.-% und bei bestimmten Aspekten optional größer oder gleich ungefähr 80 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 90 Gew.-% des flüssigen Elektrolyten umfassen. Bei bestimmten Abwandlungen umfasst das nichtflüchtige Gel ferner einen Zusatzstoff. Beispielsweise kann das nichtflüchtige Gel größer oder gleich 0 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 20 Gew.-% und bei bestimmten Aspekten optional größer oder gleich ungefähr 0,1 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 10 Gew.-% des Zusatzstoffs umfassen.

[0077] Der polymere Wirt kann aus der Gruppe ausgewählt sein, die aus Polyvinylidenfluorid (PVDF), Polyvinylidenfluorid-Hexafluorpropylen (PVDF-HFP), Polyethylenoxid (PEO), Polypropylenoxid (PPO), Polyacrylnitril (PAN), Polymethacrylnitril (PMAN), Polymethylmethacrylat (PMMA), Carboxymethylcellulose (CMC), Polyvinylalkohol (PVA), Polyvinylpyrrolidon (PVP) und Kombinationen davon besteht.

[0078] Der flüssige Elektrolyt kann ein Lithiumsalz und ein Lösungsmittel umfassen. Zum Beispiel kann der flüssige Elektrolyt größer oder gleich unge-

fähr 5 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 70 Gew.-% und bei bestimmten Aspekten optional größer oder gleich ungefähr 10 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 50 Gew.-% des Lithiumsalzes und größer oder gleich ungefähr 30 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 95 Gew.-% und bei bestimmten Aspekten optional größer oder gleich ungefähr 50 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 90 Gew.-% des Lösungsmittels umfassen.

[0079] Das Lithiumsalz kann zum Beispiel Lithiumhexafluorarsenat (LiAsF₆), Lithiumhexafluorophosphat (LiPF₆), Lithium-bis(fluorosulfonyl)imid (LiFSI), Lithiumperchlorat (LiClO₄), Lithiumtetrafluorborat (LiBF₄), Lithium-cyclo-difluormethan-1,1 -bis(sulfonyl)imid (LiDMSI), Lithium-bis(trifluormethansulfonyl)imid (LiTFSI), Lithiumbis(pentafluorethansulfonyl)imid (LiBETI), Lithium-bis(oxalato)borat (LiBOB), Lithiumdifluor(oxalato)borat (LiDFOB), Lithium-bis(monofluoromalonato)borat (LiBFMB), Lithium-difluorophosphat (LiPO₂F₂), Lithiumfluorid (LiF) und Kombinationen davon umfassen. Bei bestimmten Abwandlungen kann das Lithiumsalz aus der Gruppe ausgewählt sein, die aus Lithium-Bis(fluorosulfonyl)imid (LiFSI), Lithium-Bis(trifluormethansulfonyl)imid (LiTFSI), Lithium-Bis(pentafluorethansulfonyl)imid (LiBETI), Lithiumhexafluorophosphat (LiPF₆), Lithiumtetrafluorborat (LiBF₄), Lithiumtrifluormethylsulfonat (LiTFO), Lithiumdifluor(oxalato)borat (LiDFOB) und Kombinationen davon besteht.

[0080] Das Lösungsmittel löst das Lithiumsalz auf, um eine gute Leitfähigkeit der Lithiumionen zu ermöglichen, und weist gleichzeitig einen niedrigen Dampfdruck auf (z.B. kleiner ungefähr 10 mmHg bei 25 °C), um dem Zellherstellungsprozess zu entsprechen. Bei verschiedenen Aspekten umfasst das Lösungsmittel beispielsweise Carbonat-Lösungsmittel (z.B. Ethylencarbonat (EC), Propylencarbonat (PC), Glycerincarbonat, Vinylencarbonat, Fluorethylencarbonat, 1,2 Butylencarbonat und dergleichen), Lactone (z.B. γ -Butyrolacton (GBL), δ -Valerolacton und dergleichen), Nitrile (z.B. Succinonitril, Glutaronitril, Adiponitril und dergleichen), Sulfone (z.B. Tetramethylsulfon, Ethylmethylsulfon, Vinylsulfon, Phenylsulfon, 4-Fluorphenylsulfon, Benzylsulfon und dergleichen), Ether (z.B. Triethylenglykoldimethylether (Triglyme, G3), Tetraethylenglykoldimethylether (Tetraglyme, G4), 1,3-Dimethoxypropan, 1,4-Dioxan und dergleichen), Phosphate (z.B. Triethylphosphat, Trimethylphosphat und dergleichen), ionische Flüssigkeiten einschließlich Kationen von ionischen Flüssigkeiten (z.B. 1-Ethyl-3-methylimidazolium ([Emim]⁺), 1-Propyl-1-methylpiperidinium ([PP₁₃]⁺), 1-Butyl-1-methylpiperidinium ([PP₁₄]⁺), 1-Methyl-1-ethylpyrrolidinium ([Pyr₁₂]⁺), 1-Propyl-1-methylpyrrolidinium ([Pyr₁₃]⁺), 1-Butyl-1-methylpyrrolidinium ([Pyr₁₄]⁺) und dergleichen) und Anionen von ionischen Flüssigkeiten (z.B. Bis(trifluormethansulfonyl)imid (TFSI), Bis(fluorsulfonyl)imid

(FS) und dergleichen) sowie Kombinationen davon. Das Lösungsmittel kann beispielsweise aus der Gruppe ausgewählt sein, die aus Ethylencarbonat (EC), Propylencarbonat (PC), Gamma-Butyrolacton (GBL), Tetraethylphosphat (TEP), Fluorethylencarbonat (FEC) und Kombinationen davon besteht.

[0081] Der Zusatzstoff kann so ausgewählt sein, dass er die Bildung einer robusten und dünnen Festkörperelektrolyt-Zwischenschicht (SEI) auf oder benachbart zu einer oder mehreren Oberflächen der negativen Elektrode 22 fördert, zum Beispiel auf der Oberfläche der negativen Elektrode 22, die der Elektrolytschicht 26 gegenüberliegt. Bei verschiedenen Aspekten kann das erste Additiv beispielsweise ungesättigte kohlenstoffgebundene Verbindungen (z.B. Vinylencarbonat (VC), Vinylethylencarbonat (VEC) und ähnliche), schwefelhaltige Verbindungen (z.B. Ethylensulfid (ES), Propylensulfid (PyS) und dergleichen), halogenhaltige Verbindungen (z.B. Fluorethylencarbonat (FEC), Chlorethylencarbonat (Cl-EC) und dergleichen), methylsubstituierte Glykolidderivate, Maleinimidzusatzstoffe (MI-Zusatzstoffe), Zusatzstoffe oder Verbindungen mit elektronenziehenden Gruppen und Kombinationen davon umfassen. Der Zusatzstoff kann beispielsweise aus der Gruppe ausgewählt sein, die aus Vinylencarbonat (VC), Fluorethylencarbonat (FEC), Vinylethylencarbonat (VEC), Butylencarbonat (BC), Ethylensulfid (ES), Propylensulfid (PS) und Kombinationen davon besteht.

[0082] Das kein Lithium enthaltende Salz sollte in dem Lösungsmittel (z.B. Ethylencarbonat (EC), Propylencarbonat (PC), Gamma-Butyrolacton (GBL), Tetraethylphosphat (TEP) und/oder Fluorethylencarbonat (FEC)) des flüssigen Elektrolyten löslich sein. Das kein Lithium enthaltende Salz umfasst ein kein Lithium enthaltendes Kation und ein Anion. Das kein Lithium enthaltende Kation sollte einen Ionenradius aufweisen, der mit dem Radius eines Lithiumions (Li^+) vergleichbar oder größer ist als dieser. Zum Beispiel kann das kein Lithium enthaltende Kation einen Ionenradius aufweisen, der größer oder gleich ungefähr 80 % bis kleiner oder gleich ungefähr 250 %, optional größer oder gleich ungefähr 100 % bis kleiner oder gleich ungefähr 250 %, optional größer oder gleich ungefähr 110 % bis kleiner oder gleich ungefähr 250 %, optional größer oder gleich ungefähr 120 % bis kleiner oder gleich ungefähr 250 %, optional größer oder gleich ungefähr 130 % bis kleiner oder gleich ungefähr 250 %, optional größer oder gleich ungefähr 140 % bis kleiner oder gleich ungefähr 250 %, optional größer oder gleich ungefähr 150 % bis kleiner oder gleich ungefähr 250 %, optional größer oder gleich ungefähr 160 % bis kleiner oder gleich ungefähr 250 %, optional größer oder gleich ungefähr 170 % bis kleiner oder gleich ungefähr 250 %, optional größer oder gleich ungefähr 180 % bis kleiner oder gleich ungefähr 250 %, optional grö-

ßer oder gleich ungefähr 190 % bis kleiner oder gleich ungefähr 250 %, optional größer oder gleich ungefähr 200 % bis kleiner oder gleich ungefähr 250 %, optional größer oder gleich ungefähr 210 % bis kleiner oder gleich ungefähr 250 %, optional größer oder gleich ungefähr 220 % bis kleiner oder gleich ungefähr 250 %, optional größer oder gleich ungefähr 230 % bis kleiner oder gleich ungefähr 250 % und bei bestimmten Aspekten optional größer oder gleich ungefähr 240 % bis kleiner oder gleich ungefähr 250 % eines Ionenradius eines Lithiumions ist. Bei bestimmten Abwandlungen kann das kein Lithium enthaltende Kation aus der Gruppe ausgewählt sein, die aus Natrium (Na^+), Calcium (Ca^{2+}), Magnesium (Mg^{2+}), Kalium (K^+), Aluminium (Al^{3+}), Eisen (Fe^{2+}), Mangan (Mn^{2+}), Strontium (Sr^{2+}), Zink (Zn^{2+}) und Kombinationen davon besteht. Ein Lithiumion (Li^+) kann einen Radius (pm) von ungefähr 76 aufweisen. Ein Magnesiumion (Mg^{2+}) kann einen Radius (pm) von ungefähr 72 aufweisen. Ein Calciumion (Ca^{2+}) kann einen Radius (pm) von ungefähr 100 aufweisen. Ein Kaliumion (K^+) kann einen Radius (pm) von ungefähr 138 aufweisen.

[0083] Das Anion kann mit dem Anion des flüssigen Elektrolyten identisch oder davon verschieden sein. Bei bestimmten Abwandlungen kann das Anion beispielsweise aus der Gruppe ausgewählt sein, die aus Bis(trifluormethansulfonimid (TFSI⁻), Bis(fluorosulfonyl)imid (FSI⁻), Bis(pentafluorethansulfonyl)imid (BETI⁻), Trifluormethylsulfonat (OTf⁻), Tetrafluorborat (BF_4^-), Hexafluorophosphat (PF_6^-), Nitrat (NO_3^-), Chlorid (Cl^-), Bromid (Br^-) und Kombinationen davon besteht. Somit kann das kein Lithium enthaltende Salz aus der Gruppe ausgewählt sein, die aus Magnesium-Bis(trifluormethansulfonyl)imid ($\text{Mg}(\text{TFSI})_2$), Calcium-Bis(trifluormethansulfonyl)imid ($\text{Ca}(\text{TFSI})_2$), Kalium-Bis(trifluormethansulfonyl)imid (KTFSI), Natriumnitrat (NaNO_3), Natriumhexafluorophosphat (NaPF_6) und Kombinationen davon besteht.

[0084] Bei jeder Abwandlung ist das kein Lithium enthaltende Kation so ausgewählt, dass es sich vor der Lithiierung in das elektroaktive Material (z.B. Graphit) der negativen Elektrode 22 einlagert, so dass das kein Lithium enthaltende Kation als Pfeiler dienen kann, um den nachfolgenden Lithiumtransport zu ermöglichen. Das kein Lithium enthaltende Kation kann sich vor der Lithiierung infolge chemischer Potenzialdifferenzierung in das elektroaktive Material der negativen Elektrode 22 einlagern. Das heißt, das elektrochemische Potenzial der Einlagerung von kein Lithium enthaltenden Kationen in das elektroaktive Material der negativen Elektrode 22 ist höher als das elektrochemische Potenzial der Einlagerung von Lithiumionen in das elektroaktive Material der negativen Elektrode 22. Bei bestimmten Abwandlungen kann die Potentialdifferenz für das kein Lithium enthaltende Kation und die Lithiumionen größer oder

gleich ungefähr 0,1 V bis kleiner oder gleich ungefähr 3 V sein.

[0085] Fig. 1C zeigt eine schematische Veranschaulichung eines zweidimensionalen elektroaktiven Materials (z.B. Graphit) 50 in Kontakt mit einem polymeren Gelelektrolytssystem 100. Wie veranschaulicht, lagern sich während der Bildung des Akkumulators 20 kein Lithium enthaltende Kationen 102 aus dem polymeren Gelelektrolytssystem 100 in Schichten des zweidimensionalen elektroaktiven Materials 50 ein und dehnen diese aus, und während der anschließenden Ladevorgänge 110 und Entladevorgänge 120 bewegen sich Lithiumionen 104 im Verhältnis zu den kein Lithium enthaltenden Kationen in das elektroaktive Material hinein und aus ihm heraus. Die Einlagerung der kein Lithium enthaltenden Kationen 102 kann den d-Abstand, auch Zwischenschichtabstand genannt, des zweidimensionalen elektroaktiven Materials 50 vergrößern, um die Durchgänge für Lithiumionen zu verbreitern und dadurch den Transport von Lithiumionen zu verbessern.

[0086] Eine beispielhafte und schematische Veranschaulichung einer anderen elektrochemischen Festkörperzelleneinheit 200, die Lithiumionen zyklisiert, ist in Fig. 2 gezeigt. Wie der Akkumulator 20 umfasst der Akkumulator 220 eine negative Elektrode (d.h. Anode) 222, einen ersten bipolaren Stromkollektor 232, der sich an oder benachbart zu einer ersten Seite der negativen Elektrode 222 befindet, eine positive Elektrode (d.h. Kathode) 224, einen zweiten bipolaren Stromkollektor 234, der sich an oder benachbart zu einer ersten Seite der positiven Elektrode 224 befindet, und eine Elektrolytschicht 226, die zwischen einer zweiten Seite der negativen Elektrode 222 und einer zweiten Seite der positiven Elektrode 224 angeordnet ist, wobei die zweite Seite der negativen Elektrode 222 im Wesentlichen parallel zu der ersten Seite der negativen Elektrode 222 verläuft und die zweite Seite der positiven Elektrode 224 im Wesentlichen parallel zu der ersten Seite der positiven Elektrode 224 verläuft.

[0087] Wie die negative Elektrode 22, die in Fig. 1A und Fig. 1B veranschaulicht ist, kann die negative Elektrode 222 eine Vielzahl negativer elektroaktiver Festkörperteilchen 250 umfassen, die mit einer optionalen ersten Vielzahl von Festkörperelektrolytteilchen 290 gemischt sind. Die negative Elektrode 222 kann ferner ein erstes polymeres Gelelektrolytssystem 282 umfassen, das die Hohlräume zwischen den negativen elektroaktiven Festkörperteilchen 250 und/oder den optionalen Festkörperelektrolytteilchen 290 wenigstens teilweise ausfüllt.

[0088] Wie die positive Elektrode 24, die in Fig. 1A und Fig. 1B veranschaulicht ist, kann die positive Elektrode 224 eine Vielzahl positiver elektroaktiver

Festkörperteilchen 260 umfassen, die mit einer optionalen zweiten Vielzahl von Festkörperelektrolytteilchen 292 gemischt sind. Die positive Elektrode 224 kann ferner ein zweites polymeres Gelsystem 284 umfassen, das die Hohlräume zwischen den positiven elektroaktiven Festkörperteilchen 260 und/oder den optionalen Festkörperelektrolytteilchen 292 wenigstens teilweise ausfüllt. Das zweite polymeres Gelsystem 284 kann mit dem ersten polymeren Gelsystem 282 identisch oder davon verschieden sein.

[0089] Wie das polymeres Gelelektrolytssystem, das in Fig. 1A und Fig. 1B veranschaulicht ist, umfassen das erste und das zweite polymeres Gelsystem 282, 284, die in Fig. 2 veranschaulicht sind, ein nichtflüchtiges Gel und ein kein Lithium enthaltendes Salz.

[0090] Die Elektrolytschicht 226 kann eine Trennschicht sein, die die negative Elektrode 222 von der positiven Elektrode 224 physikalisch trennt. Bei der Elektrolytschicht 226 kann es sich um eine freistehende Membran 280 handeln, die durch ein drittes polymeres Gelelektrolytssystem definiert ist, das ein nichtflüchtiges Gel und ein kein Lithium enthaltendes Salz umfasst, ähnlich dem polymeren Gelelektrolytssystem, das in Fig. 1A und Fig. 1B veranschaulicht ist. Bei bestimmten Abwandlungen kann die freistehende Membran 280 eine Dicke von größer oder gleich ungefähr 5 µm bis kleiner oder gleich ungefähr 1.000 µm und bei bestimmten Aspekten optional größer oder gleich ungefähr 2 µm bis kleiner oder gleich ungefähr 100 µm aufweisen.

[0091] Obwohl dies nicht veranschaulicht ist, wird der Fachmann erkennen, dass bei bestimmten Abwandlungen die negative Elektrode 222 frei von einem ersten polymeren Gelelektrolytssystem 282 sein kann und/oder die positive Elektrode 224 frei von einem zweiten polymeren Gelelektrolytssystem 284 sein kann. Obwohl dies nicht veranschaulicht ist, wird der Fachmann angesichts der Lehren von Fig. 1A und Fig. 1B ebenso erkennen, dass bei bestimmten Abwandlungen die negative Elektrode 22, die positive Elektrode 24 und/oder die Elektrolytschicht 26 frei von dem polymeren Gelelektrolytssystem 100 sein können. Das bedeutet, dass im Fall von Fig. 1B die negative Elektrode 22, die positive Elektrode 24 und/oder die Elektrolytschicht 26 ein polymeres Gelelektrolytssystem 100 umfassen können.

[0092] Bei verschiedenen Aspekten sieht die vorliegende Offenbarung Verfahren zur Herstellung eines Akkumulators mit einem Gelelektrolytssystem vor, wie z.B. des in Fig. 1B veranschaulichten Akkumulators 20 und/oder des in Fig. 2 veranschaulichten Akkumulators 200.

[0093] Bei bestimmten Abwandlungen sieht die vorliegende Offenbarung beispielsweise ein Verfahren

zum Herstellen einer ersten Elektrode vor, wobei das Verfahren im Allgemeinen das Inkontaktbringen einer ersten Vorläuferflüssigkeit mit einem ersten oder negativen Elektrodenvorläufer in Form einer ersten oder negativen elektroaktiven Materialschicht und das parallele oder gleichzeitige Inkontaktbringen einer zweiten Vorläuferflüssigkeit mit einem zweiten oder positiven Elektrodenvorläufer in Form einer zweiten oder positiven elektroaktiven Materialschicht umfasst. Die erste Vorläuferflüssigkeit kann mit der zweiten Vorläuferflüssigkeit identisch oder davon verschieden sein. In solchen Fällen umfasst das Verfahren ferner das Trocknen oder Reagieren (z.B. Vernetzen) der ersten Vorläuferflüssigkeit, um eine gelgestützte erste oder negative Elektrode zu bilden, die einen ersten polymeren Gelelektrolyt umfasst, und das parallele oder gleichzeitige Trocknen oder Reagieren (z.B. Vernetzen) der zweiten Vorläuferflüssigkeit, um eine gelgestützte zweite oder positive Elektrode zu bilden, die einen zweiten polymeren Gelelektrolyt umfasst.

[0094] Das Verfahren kann außerdem das parallel oder gleichzeitig mit dem ersten und/oder zweiten Kontakt erfolgende Inkontaktbringen einer dritten Vorläuferflüssigkeit mit einer Vorläuferelektrolytschicht umfassen, die eine Vielzahl von Festkörperelektrolytteilchen umfasst, und das Trocknen oder Reagieren (z.B. Vernetzen) der dritten Vorläuferflüssigkeit, um eine gelgestützte Elektrolytschicht zu bilden, die einen dritten polymeren Gelelektrolyten umfasst. Bei anderen Abwandlungen kann das Verfahren ferner das parallel oder gleichzeitig mit dem ersten und/oder zweiten Kontakt erfolgende Bilden einer freistehenden Membran umfassen, die durch ein polymeres Gel definiert ist (wie es z.B. aus der dritten Vorläuferflüssigkeit gebildet wird). Die dritte Vorläuferflüssigkeit kann mit der ersten Vorläuferflüssigkeit und/oder der zweiten Vorläuferflüssigkeit identisch oder davon verschieden sein. Die erste, die zweite und die dritte Vorläuferflüssigkeit umfassen ein nichtflüchtiges Gel und ein kein Lithium enthaltendes Salz, wie oben im Zusammenhang mit **Fig. 1B** detailliert beschrieben.

[0095] In jedem Fall umfasst das Verfahren im Wesentlichen das Ausrichten und/oder Stapeln der ersten oder negativen Elektrolytschicht, der zweiten oder positiven Elektrolytschicht und der gelgestützten Elektrolytschicht und/oder der freistehenden Membran, die durch das polymere Gel definiert ist. Obwohl in der vorstehenden Erörterung eine einzelne negative Elektrode, eine einzelne positive Elektrode und eine einzelne Elektrolytschicht beschrieben sind, wird der Fachmann erkennen, dass die vorliegenden Lehren auf verschiedene andere Konfigurationen anwendbar ist, einschließlich solcher mit einer oder mehreren Anoden, einer oder mehreren Kathoden und einer oder mehreren Elektrolytschichten, sowie verschiedener Stromkol-

lektoren und Stromkollektorfolien mit elektroaktiven Teilenschichten, die auf oder benachbart zu einer oder mehreren Oberflächen davon angeordnet oder darin eingebettet sind.

[0096] Bei anderen Abwandlungen sieht die vorliegende Offenbarung ein Verfahren zum Herstellen einer ersten Elektrode vor, wobei das Verfahren im Allgemeinen einen In-situ-Prozess umfasst, der das Inkontaktbringen eines polymeren Vorläufers und eines Akkumulators (z.B. des in **Fig. 1A** veranschaulichten Akkumulators 20) mit einer interpartikulären Porosität umfasst. Das Inkontaktbringen kann das Zugeben eines oder mehrerer Tropfen des polymeren Vorläufers zu dem Akkumulator umfassen. Das Verfahren umfasst ferner das Trocknen oder Reagieren (z.B. Vernetzen) des polymeren Vorläufers, um ein polymeres Gelelektrolytsystem zu bilden, wie das polymere Gelelektrolytsystem 100, das in **Fig. 1B** veranschaulicht ist. Bei bestimmten Abwandlungen kann das Verfahren das Herstellen des polymeren Vorläufers umfassen. Das Herstellen des polymeren Vorläufers kann das Inkontaktbringen eines nichtflüchtigen Gels und eines kein Lithium enthaltenden Salzes umfassen, wie oben im Zusammenhang mit **Fig. 1B** detailliert beschrieben.

[0097] Bestimmte Merkmale der vorliegenden Technologie sind ferner durch die folgenden nicht einschränkenden Beispiele veranschaulicht.

Beispiel 1

[0098] Beispielhafte Akkumulatorzellen können gemäß verschiedenen Aspekten der vorliegenden Offenbarung hergestellt werden. Die beispielhaften Akkumulatorzellen können beispielsweise ein polymeres Gelelektrolytsystem mit einem nichtflüchtigen Gel und einem kein Lithium enthaltenden Salz umfassen. Eine erste beispielhafte Akkumulatorzelle 310 kann ein erstes polymeres Gelelektrolytsystem 312 umfassen. Das erste polymere Gelelektrolytsystem 312 kann ungefähr 1 Gew.-% Magnesium-bis(trifluormethansulfonyl)imid ($\text{Mg}(\text{TFSI})_2$) als das kein Lithium enthaltende Salz umfassen. Eine zweite beispielhafte Akkumulatorzelle 320 kann ein zweites polymeres Gelelektrolytsystem 322 umfassen. Das zweite polymere Gelelektrolytsystem 322 kann ungefähr 1 Gew.-% Calcium-bis(trifluormethansulfonyl)imid ($\text{Ca}(\text{TFSI})_2$) umfassen. Das erste und das zweite polymere Gelelektrolytsystem 312, 322 können jeweils Polyvinylidenfluorid-Hexafluorpropylen (PVDF-HFP) als polymeren Wirt und einen flüssigen Elektrolyt mit 0,4 M Lithium-bis(trifluormethansulfonyl)imid (LiTFSI) und 0,4 M Lithiumtetrafluorborat (LiBF_4) in einem Lösungsmittelgemisch umfassen. Das Lösungsmittelgemisch (z.B. 4:6 v/v) kann Ethylencarbonat (EC) und Gamma-Butyrolacton (GBL) umfassen.

[0099] Wie der Akkumulator 20, der in **Fig. 1A** und **Fig. 1B** veranschaulicht ist, umfassen die erste und die zweite beispielhafte Akkumulatorzelle 310, 320 eine erste oder negative Elektrode, die eine Vielzahl negativer elektroaktiver Festkörpermaterialeilchen umfasst, und optional eine erste Vielzahl von Festkörperelektrolyteilchen, die auf oder benachbart zu einer ersten Oberfläche eines ersten bipolaren Stromkollektors angeordnet sind. Die beispielhaften Akkumulatorzellen 310, 320 können ferner eine zweite oder positive Elektrode parallel zur negativen Elektrode umfassen. Die positive Elektrode kann eine Vielzahl positiver elektroaktiver Festkörpermaterialeilchen und optional eine zweite Vielzahl von Festkörperelektrolyteilchen umfassen, die auf oder benachbart zu einer ersten Oberfläche eines zweiten bipolaren Stromkollektors angeordnet sind. Die beispielhaften Akkumulatorzellen 310, 320 können ferner eine Festkörperelektrolytschicht umfassen, die zwischen der negativen Elektrode und der positiven Elektrode angeordnet ist und diese physikalisch trennt. Insbesondere kann die Festkörperelektrolytschicht die Vielzahl negativer elektroaktiver Festkörpermaterialeilchen (und die optionale erste Vielzahl von Festkörperelektrolyteilchen) und die Vielzahl positiver elektroaktiver Festkörpermaterialeilchen (und die optionale zweite Vielzahl von Festkörperelektrolyteilchen) trennen. Die negativen Elektroden und/oder die positiven Elektroden und/oder die Festkörperelektrolytschicht können gemäß verschiedenen Aspekten der vorliegenden Offenbarung polymere Gelelektrolytsysteme 312, 322 umfassen.

[0100] **Fig. 3A** zeigt eine grafische Veranschaulichung, die die Leistungsfähigkeit der beispielhaften Akkumulatorzellen 310, 320 mit den polymeren Gelelektrolytsystemen 312, 322 gemäß verschiedenen Aspekten der vorliegenden Offenbarung und einer vergleichbaren Akkumulatorzelle 330 mit der gleichen Konfiguration wie die beispielhaften Akkumulatorzellen 310, 320, aber ohne ein polymeres Gelelektrolytsystem zeigt. Die x-Achse 300 stellt die Entladungsrate (z.B. C-Rate) dar. Die C-Rate ist ein Maß für die Geschwindigkeit, mit der ein Akkumulator im Verhältnis zu seiner maximalen Kapazität entladen wird. Eine Rate von 1C zeigt zum Beispiel an, dass der Entladestrom den gesamten Akkumulator 1 Stunde lang entlädt. Die y-Achse 302 stellt die Ladungshaltung (%) dar. Wie veranschaulicht, weisen die beispielhaften Akkumulatorzellen 310, 320 eine verbesserte Langzeit- und Hochleistung auf.

[0101] **Fig. 3B** zeigt eine grafische Veranschaulichung, die die Zellenentladung der beispielhaften Akkumulatorzellen 310, 320 mit den polymeren Gelelektrolytsystemen 312, 322 gemäß verschiedenen Aspekten der vorliegenden Offenbarung und einer vergleichbaren Akkumulatorzelle 330 mit der gleichen Konfiguration wie die beispielhaften Akkumulatorzellen 310, 320, aber ohne ein polymeres

Gelelektrolytsystem zeigt. Die x-Achse 304 stellt die Ladungshaltung (%) dar. Die y-Achse 306 stellt die Spannung (V) dar. Zeile 340 zeigt die Gelelektrolytentladung bei einer Rate von 1C. Zeile 310 zeigt die Entladekurve für die beispielhafte Akkumulatorzelle 310 bei einer Rate von 10C. Zeile 320 zeigt die Entladekurve für den beispielhaften Akkumulator 320 bei einer Rate von 10C. Zeile 330 zeigt die Entladekurve für den Vergleichsakkumulator 330 bei einer Rate von 10C. Wie veranschaulicht, weisen die beispielhaften Akkumulatorzellen 310, 320 im Vergleich zu dem Vergleichsakkumulator 330 eine verbesserte Hochleistung auf, insbesondere bei einer Rate von 10C.

[0102] Die vorstehende Beschreibung der Ausgestaltungen dient der Veranschaulichung und Beschreibung. Sie ist nicht dazu bestimmt, vollständig zu sein oder die Offenbarung einzuschränken. Einzelne Elemente oder Merkmale einer bestimmten Ausgestaltung sind im Allgemeinen nicht auf diese bestimmte Ausgestaltung beschränkt, sondern sind optional austauschbar und können in einer ausgewählten Ausgestaltung verwendet werden, auch wenn sie nicht speziell gezeigt oder beschrieben sind. Dieselben können auch auf vielerlei Weise abgewandelt werden. Solche Abwandlungen sind nicht als Abweichung von der Offenbarung zu betrachten, und alle diese Änderungen sind dazu bestimmt, in dem Umfang der Offenbarung enthalten zu sein.

Patentansprüche

1. Polymerer Gelelektrolyt für eine elektrochemische Zelle, die Lithiumionen zyklisiert, wobei der polymerer Gelelektrolyt umfasst: größer oder gleich ungefähr 0,1 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 10 Gew.-% eines kein Lithium enthaltenden Salzes.
2. Polymerer Gelelektrolyt nach Anspruch 1, wobei das kein Lithium enthaltende Salz umfasst: ein kein Lithium enthaltendes Kation mit einem Ionenradius, der größer oder gleich ungefähr 80 % bis kleiner oder gleich ungefähr 250 % des Ionenradius eines Lithiumions ist.
3. Polymerer Gelelektrolyt nach Anspruch 2, wobei das kein Lithium enthaltende Kation aus der Gruppe ausgewählt ist, die aus Natrium (Na⁺), Calcium (Ca²⁺), Magnesium (Mg²⁺), Kalium (K⁺), Aluminium (Al³⁺), Eisen (Fe²⁺), Mangan (Mn²⁺), Strontium (Sr²⁺), Zink (Zn²⁺) und Kombinationen davon besteht.
4. Polymerer Gelelektrolyt nach Anspruch 1, wobei das kein Lithium enthaltende Salz umfasst: ein Anion, das aus der Gruppe ausgewählt ist, die aus Bis-trifluormethansulfonimid (TFSI), Bis(fluoro-

sulfonyl)imid (FSI-), Bis(pentafluorethansulfonyl)imid (BETI-), Trifluormethylsulfonat (OTf-), Tetrafluorborat (BF_4^-), Hexafluorophosphat (PF_6^-), Nitrat (NO_3^-), Chlorid (Cl^-), Bromid (Br^-) und Kombinationen davon besteht.

5. Polymerer Gelelektrolyt nach Anspruch 1, wobei das kein Lithium enthaltende Salz aus der Gruppe ausgewählt ist, die aus Magnesium-Bis(trifluormethansulfonyl)imid ($\text{Mg}(\text{TFSI})_2$), Calcium-Bis(trifluormethansulfonyl)imid ($\text{Ca}(\text{TFSI})_2$), Kalium-Bis(trifluormethansulfonyl)imid (KTFSI), Natriumnitrat (NaNO_3), Natriumhexafluorophosphat (NaPF_6) und Kombinationen davon besteht.

6. Polymerer Gelelektrolyt nach Anspruch 1, wobei das polymere Gelelektrolytsystem ferner umfasst:
größer oder gleich ungefähr 50 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 99,9 Gew.-% eines nichtflüchtigen Gels, wobei das nichtflüchtige Gel einen flüssigen Elektrolyten umfasst.

7. Polymerer Gelelektrolyt nach Anspruch 6, wobei das nichtflüchtige Gel ferner einen polymeren Wirt umfasst,
wobei das nichtflüchtige Gel größer 0 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 50 Gew.-% des polymeren Wirts und größer oder gleich ungefähr 5 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 99,9 Gew.-% des flüssigen Elektrolyten umfasst.

8. Polymerer Gelelektrolyt nach Anspruch 7, wobei der polymere Wirt aus der Gruppe ausgewählt ist, die aus Polyvinylidenfluorid (PVDF), Polyvinylidenfluorid-Hexafluorpropylen (PVDF-HFP), Polyethylenoxid (PEO), Polypropylenoxid (PPO), Polyacrylnitril (PAN), Polymethacrylnitril (PMAN), Polymethylmethacrylat (PMMA), Carboxymethylcellulose (CMC), Polyvinylalkohol (PVA), Polyvinylpyrrolidon (PVP) und Kombinationen davon besteht.

9. Polymerer Gelelektrolyt nach Anspruch 6, wobei der flüssige Elektrolyt umfasst:
ein Lithiumsalz, das aus der Gruppe ausgewählt ist, die aus Lithium-Bis(fluorosulfonyl)imid (LiFSI), Lithium-Bis(trifluormethansulfonyl)imid (LiTFSI), Lithium-Bis(pentafluorethansulfonyl)imid (LiBETI), Lithiumhexafluorophosphat (LiPF_6), Lithiumtetrafluorborat (LiBF_4), Lithiumtrifluormethylsulfonat (LiTFO), Lithiumdifluor(oxalato)borat (LiDFOB) und Kombinationen davon besteht, und
ein Lösungsmittel, das aus der Gruppe ausgewählt ist, die aus Ethylencarbonat (EC), Propylencarbonat (PC), Gamma-Butyrolacton (GBL), Tetraethylphosphat (TEP), Fluorethylencarbonat (FEC) und Kombinationen davon besteht.

10. Polymerer Gelelektrolyt nach Anspruch 6, wobei das nichtflüchtige Gel ferner umfasst:

größer 0 Gew.-% bis kleiner oder gleich ungefähr 10 Gew.-% eines Zusatzstoffs, wobei der Zusatzstoff aus der Gruppe ausgewählt ist, die aus Vinylencarbonat (VC), Fluorethylencarbonat (FEC), Vinylethylencarbonat (VEC), Butylencarbonat (BC), Ethylensulfit (ES), Propylensulfit (PS) und Kombinationen davon besteht.

Es folgen 6 Seiten Zeichnungen

Anhängende Zeichnungen

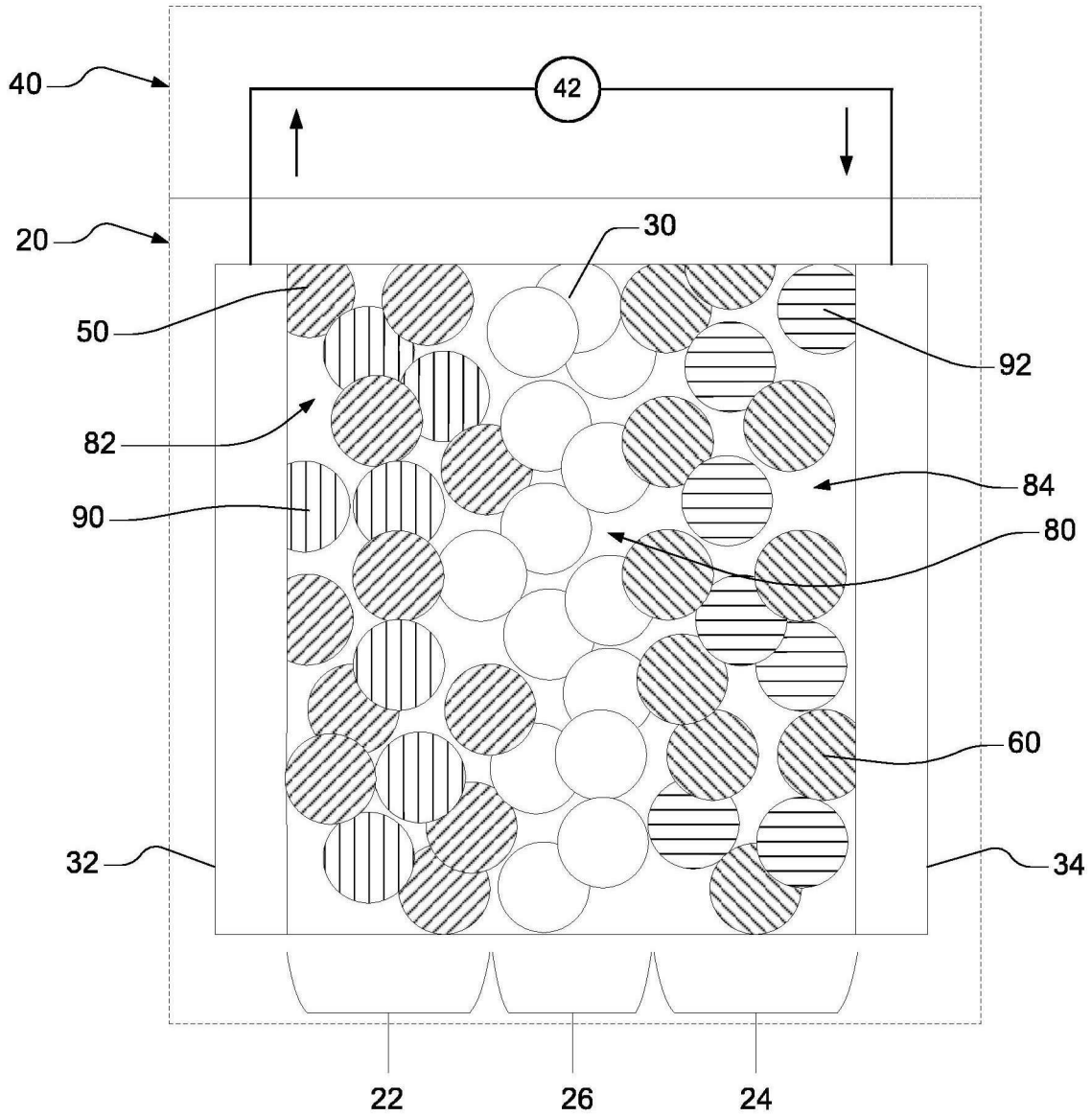


FIG. 1A

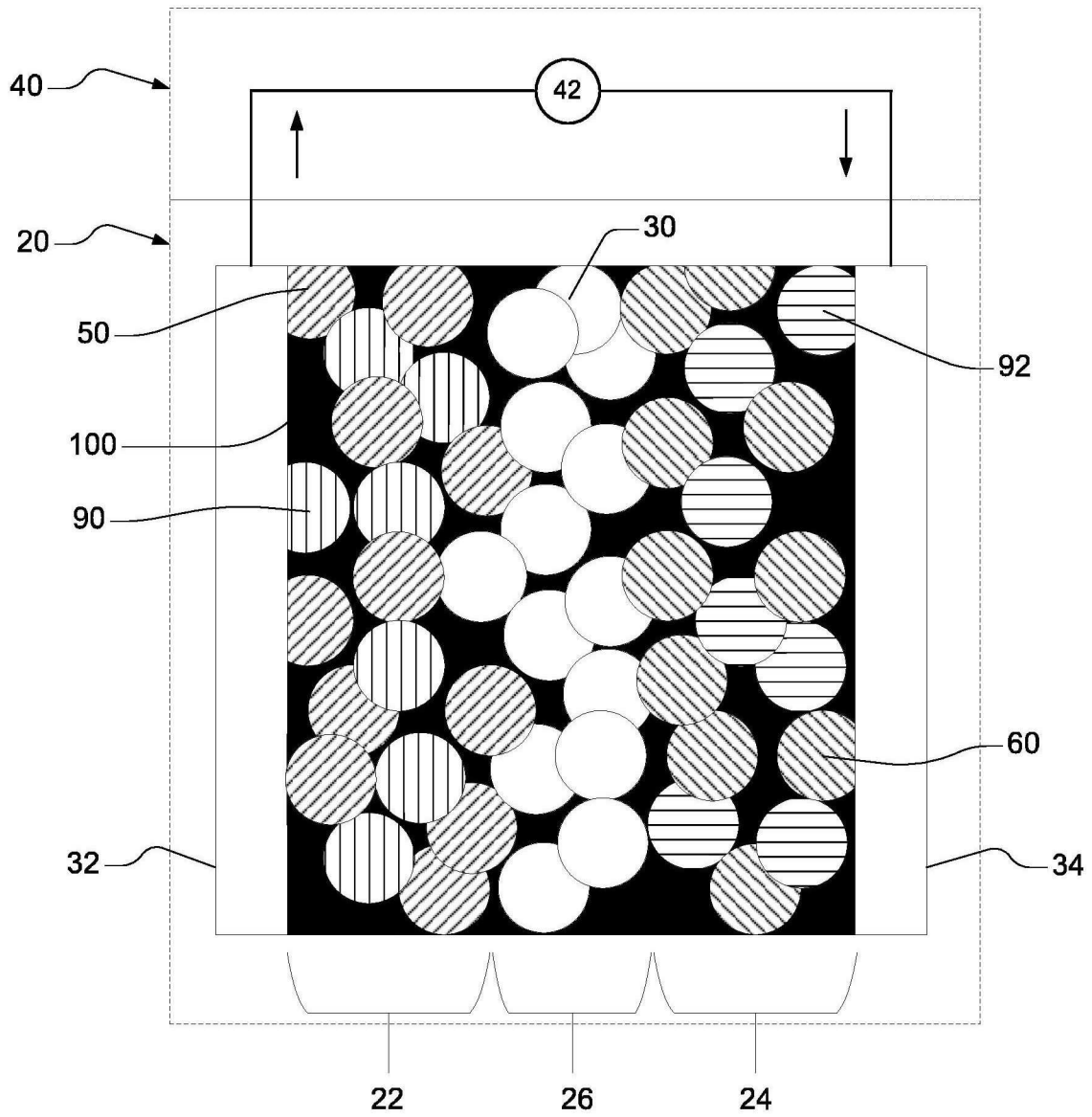


FIG. 1B

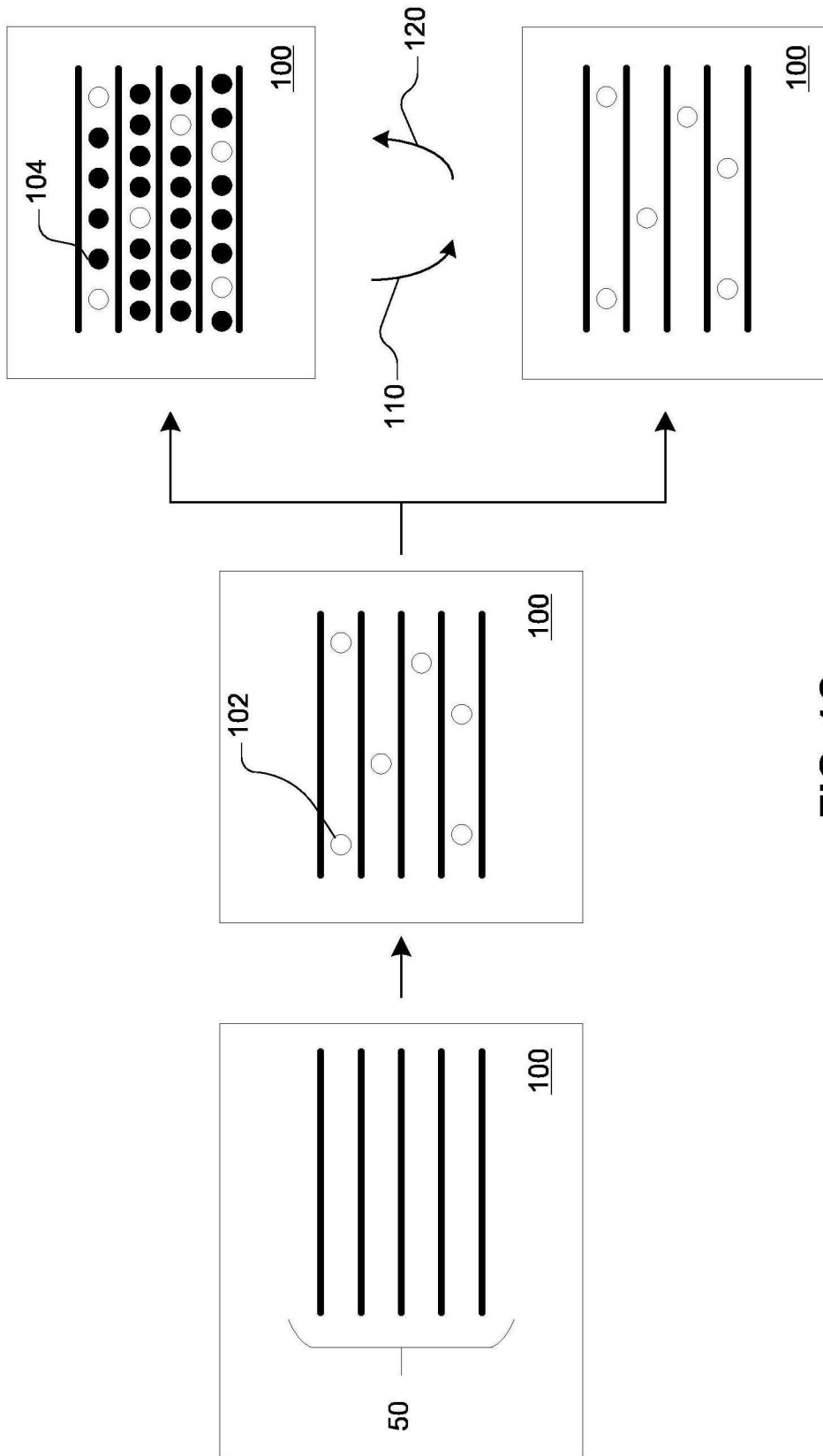


FIG. 1C

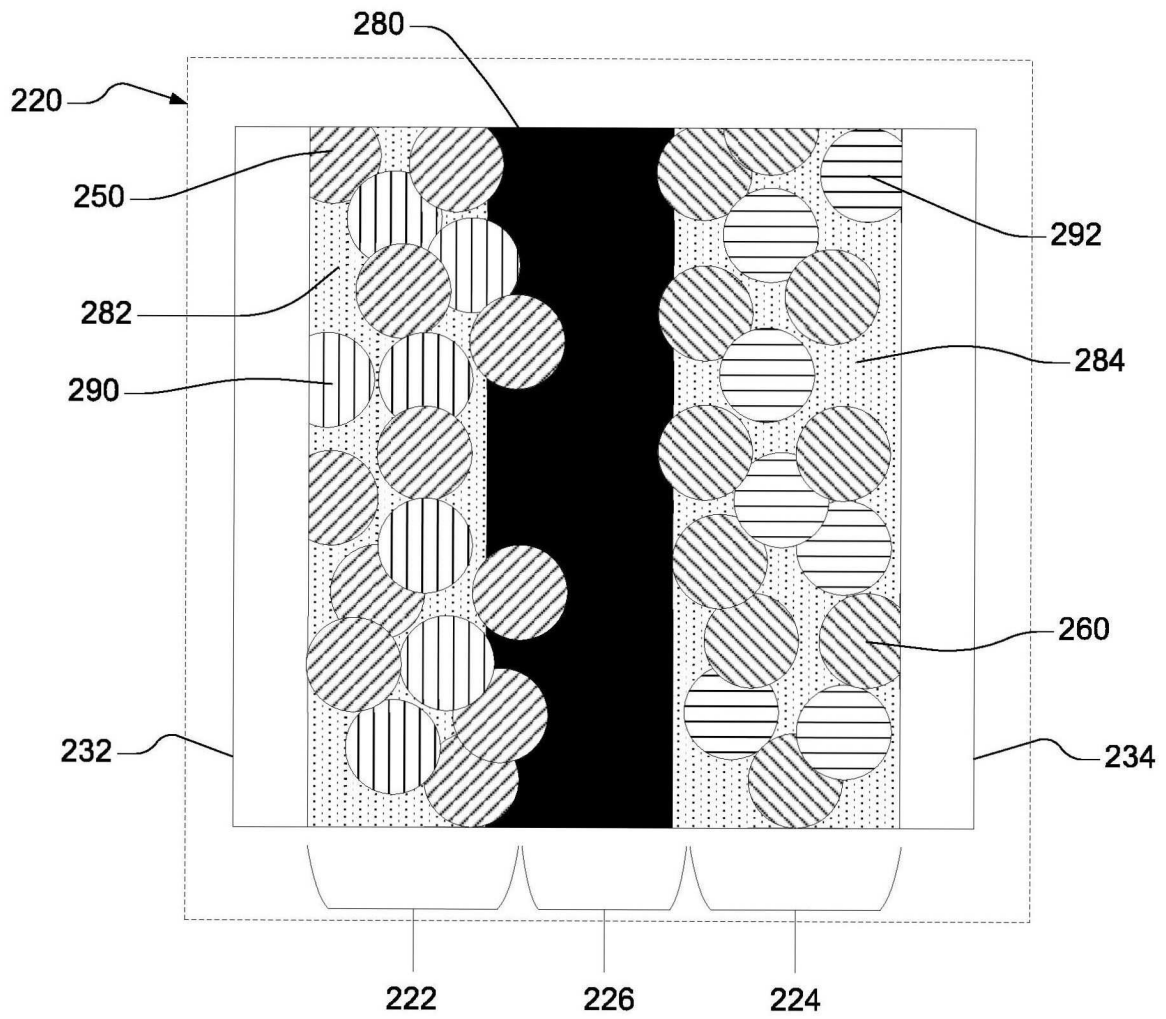


FIG. 2

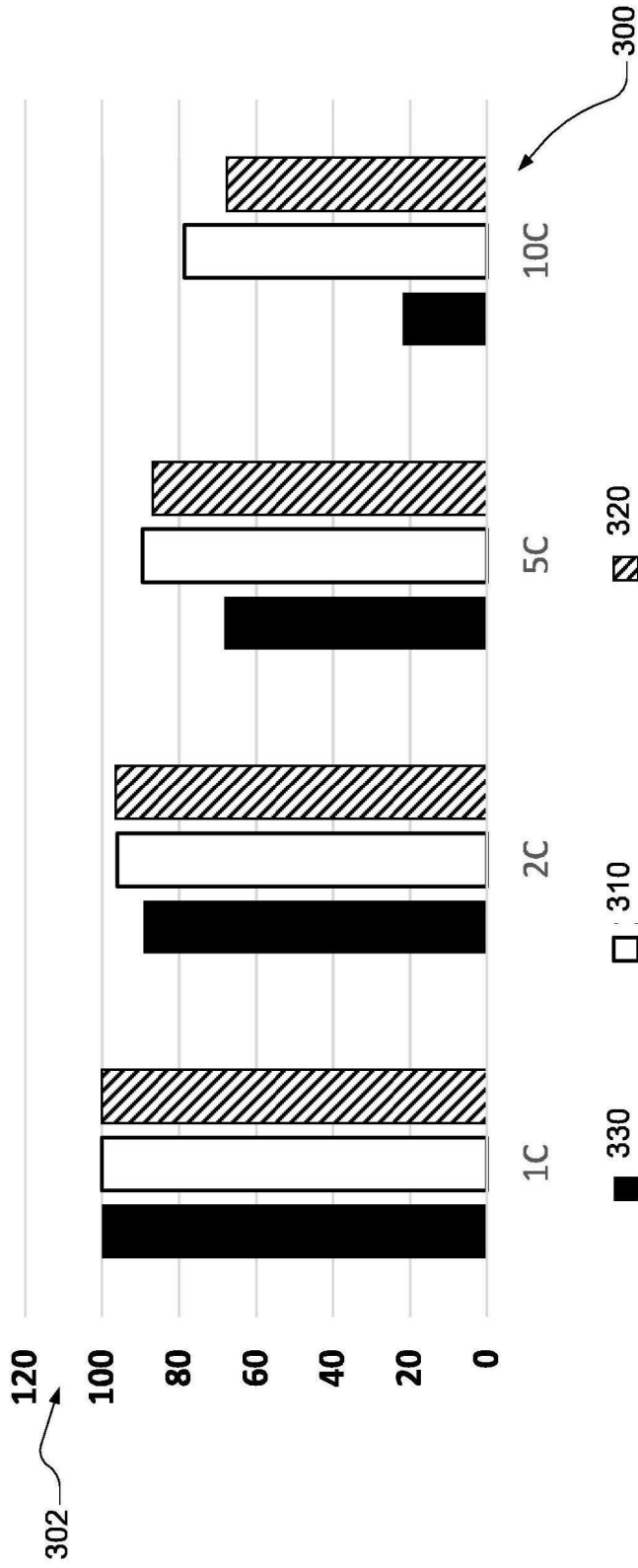


FIG. 3A

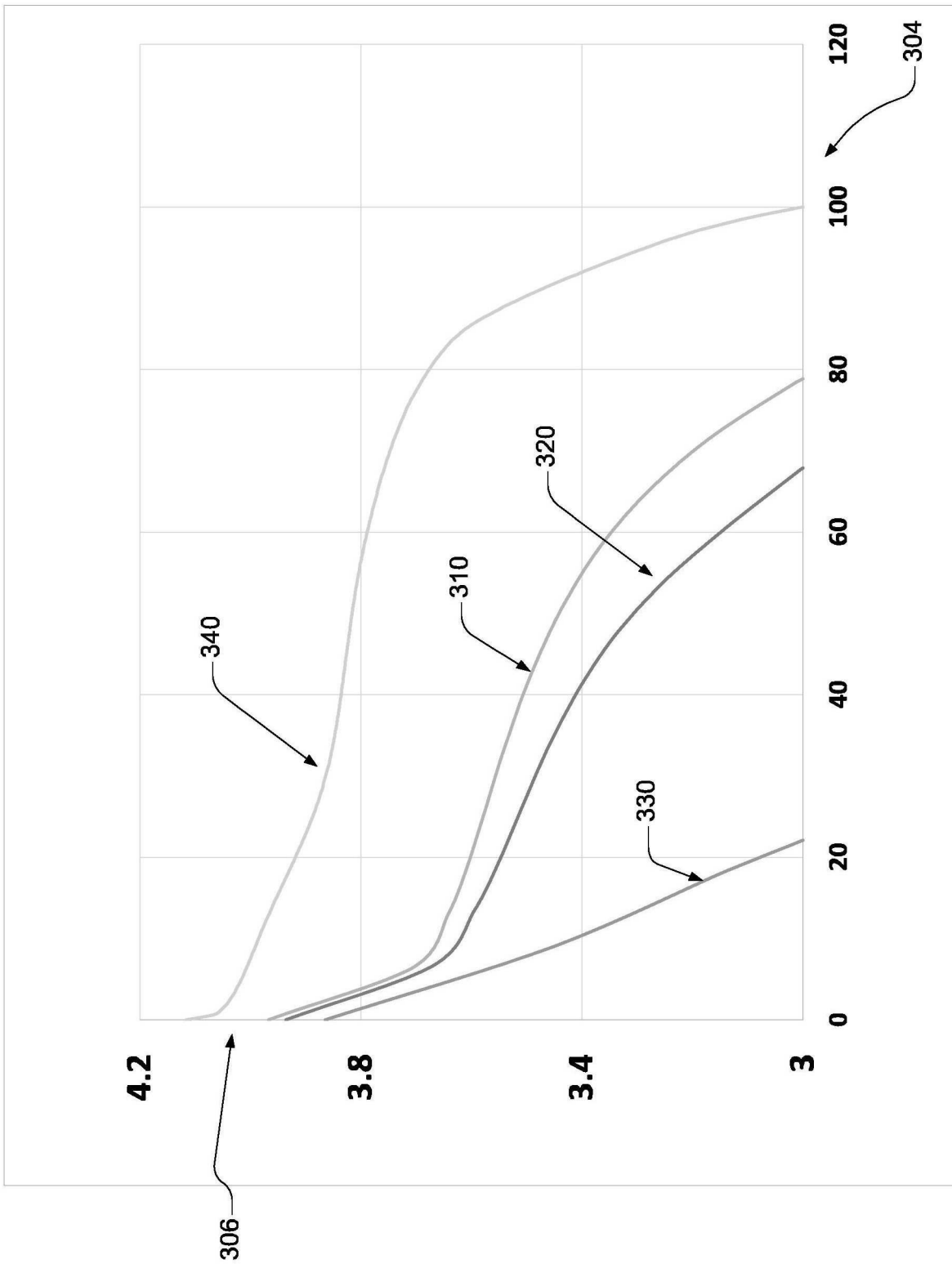


FIG. 3B