D. Westhoff, K. Kuchler, J. Feinauer, L. Petrich, V. Schmidt

Analysis, Modeling and Simulation of Tomographic Image Data for the 3D Microstructure of Electrode Material in Lithium-Ion Batteries

Analyse, Modellierung und Simulation von tomographischen Bilddaten für die 3D Mikrostruktur von Elektrodenmaterial in Lithium-Ionen-Batterien

Received: December 21, 2017
Accepted: January 05, 2018

Eingegangen: 21. Dezember 2017
Angenommen: 05. Januar 2018
Translation: M. Lackas

Practical Metallography downloaded from www.hanser-elibrary.com by Hanser - Library on April 3, 2018
For personal use only.

Abstract

This article describes stochastic 3D structure models for electrodes of lithium-ion batteries, which can be used for model-based optimization of the electrode morphology. First, a single particle model is presented which can be used to parametrically describe individual particles from 3D tomographic image data. By fitting parametrical distributions it is therefore also possible to simulate (statistically similar) particles. Hereafter, different approaches for the arrangement of individual particles

Kurzfassung

In diesem Artikel werden stochastische 3D Strukturmodelle für Elektroden von Lithium-Ionen-Batterien beschrieben, die zur modellbasierten Optimierung der Elektrodenmorphologie verwendet werden können. Zunächst wird ein Einzelpartikel-Modell präsentiert, mit dessen Hilfe sich einzelne Partikel aus 3D Tomographiedaten parametrisch beschreiben lassen. Durch Anpassung parametrischer Verteilungen lassen sich somit auch (statistisch ähnliche) Partikel simulieren. Im Folgenden werden verschiedene Ansätze zur Anordnung

Authors:

Daniel Westhoff, Klaus Kuchler, Julian Feinauer, Lukas Petrich, Volker Schmidt
Universität Ulm, Institut für Stochastik, Helmholtzstraße 18, 89069 Ulm;
e-mail: daniel.westhoff@uni-ulm.de

 © Carl Hanser Verlag, München

Practical Metallography downloaded from www.hanser-elibrary.com by Hanser - Library on April 3, 2018
For personal use only.

in the observation window are presented, so that system-based properties of different electrode types can be approximately matched (e.g. the connectivity of the particle system as well as the structure of the pore space). Finally, algorithms for the automatic recognition of particle cracks in tomographic image data are presented which can be used to integrate ageing effects into the models.

1. Introduction

Lithium-ion batteries are becoming more and more important in different areas of everyday life. This leads to the necessity to further improve current battery materials. To this end, particularly connections between 3D microstructure and macroscopic properties of the materials must be clarified and quantified [1]. Real laboratory experiments, however, are very costly in terms of time and money. Therefore, it is reasonable to develop stochastic microstructure models which are first calibrated via tomographic image data and can then be used to generate a wide range of virtual microstructures in 3D through model based computer simulation and test their macroscopic (usage) properties. This way, it is possible to determine 3D microstructures with optimized properties or work out structuring recommendations to make the development of new, improved materials as efficient as possible.

The development of electrochemical simulation models started with the groundbreaking work of the group of J. Newman [2] while, however, the details of cell geometry are largely ignored and only highly aggregated (averaged) parameters of the 3D microstructure like porosity of electrode material or the average particle size are considered. This paper provides an overview of the results we have achieved at Ulm Univer-

der Einzelpartikel im Beobachtungsfenster präsentiert, so dass systembasierte Eigenschaften verschiedener Elektrodentypen näherungsweise nachgebildet werden können (z. B. die Konnektivität des Partikelsystems sowie die Struktur des Porenraumes). Schließlich werden Algorithmen zur automatischen Erkennung von Partikel-Rissen in Tomographiedaten vorgestellt, mit deren Hilfe solche Alterungseffekte in die Modelle integriert werden können.

1. Einleitung

Lithium-Ionen-Batterien erlangen eine stetig wachsende Bedeutung in verschiedenen Bereichen des täglichen Lebens. Hieraus erwächst die Notwendigkeit, die derzeit vorliegenden Batterie-Materialien weiter zu verbessern. Dabei müssen insbesondere Zusammenhänge zwischen der 3D Mikrostruktur und den makroskopischen Eigenschaften der Materialien aufgeklärt und quantifiziert werden [1]. Reale Laborexperimente sind jedoch sehr aufwändig hinsichtlich Zeit und Kosten. Deshalb ist es sinnvoll, stochastische Mikrostrukturmodelle zu entwickeln, die zunächst mittels tomographischer Bilddaten kalibriert werden und die dann dafür verwendet werden können, mit modellbasierter Computersimulation ein breites Spektrum von virtuellen Mikrostrukturen in 3D zu generieren sowie deren makroskopische (Nutzungs-) Eigenschaften zu testen. Auf diese Weise können 3D Mikrostrukturen mit optimierten Eigenschaften bestimmt bzw. Strukturierungsempfehlungen erarbeitet werden, um die Entwicklung neuer, verbesserter Materialien möglichst effizient zu gestalten.

Die Entwicklung von elektrochemischen Simulationsmodellen begann mit den bahnbrechenden Arbeiten der Gruppe von J. Newman [2], wobei jedoch die Details der Zell-Geometrie weitgehend ausgeblendet werden und lediglich stark aggregierte (gemittelte) Kenngrößen der 3D Mikrostruktur, wie die Porosität von Elektrodenmaterialien bzw. die mittlere Partikelgröße, berücksichtigt werden. In diesem Beitrag wird ein Überblick über die Ergebnisse gegeben, die

Practical Metallography downloaded from www.hanser-elibrary.com by Hanser - Library on April 3, 2018
For personal use only.

sity in recent years with the method of virtual material testing based on stochastic microstructure models. In particular, the benefits of connecting high resolution tomographic imaging with stochastic 3D structure modeling and numeric modeling or the simulation of material properties is shown, see also [3]. This will be demonstrated by the example of stochastic modeling of active particle systems of the anodes of energy cells [4,5] or power cells, respectively, [6] in lithium-ion batteries. Furthermore, it will be shown that our approach is also suitable for stochastic modeling of the 3D microstructure of active particle systems in cathode materials [7], although the shapes of metal oxide particles in cathodes differ considerably from those of graphite particles in anodes. Besides, phenomena of structural material ageing in battery electrodes which are, for example, caused by particle breakage or crack formations, are discussed.

2. Representation of Particles by Spherical Harmonic Functions

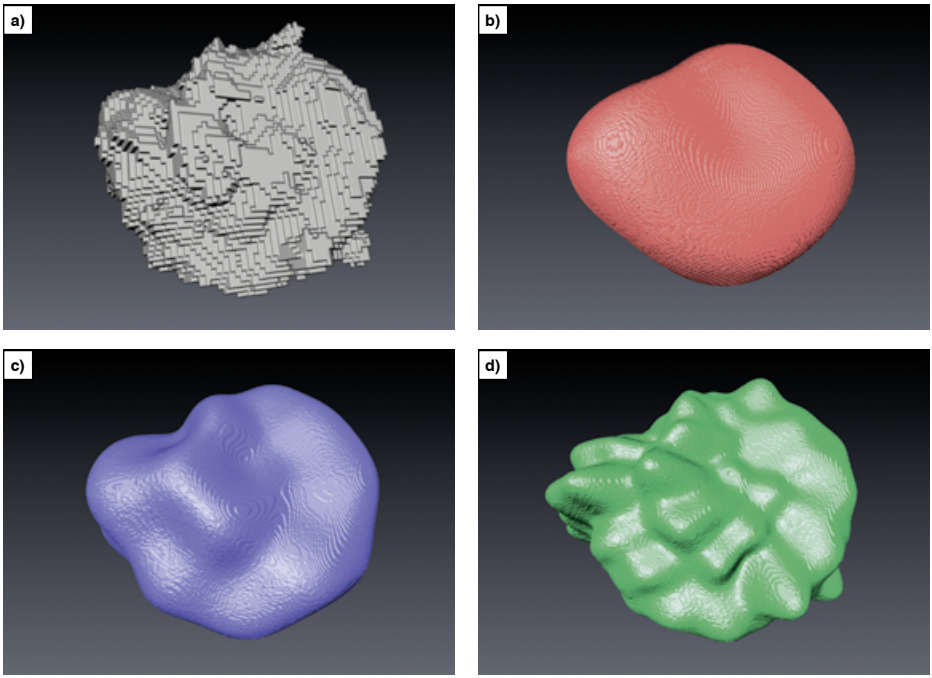
In preparation for the stochastic 3D modeling of active particle systems, a method was developed to describe the individual particles via spherical harmonic functions [11]. It is assumed that the particles can be represented by so called star-shaped quantities, i. e. each individual particle is represented by a radius function which is defined on the three-dimensional unit sphere and describes the direction dependent distances from the barycenter to the boundary of the particle. This way, the voxel based particles which first exist in the tomographic image data, can be represented by grid-free vector data. This results in a significant efficiency gain, since the specific surface and further structural parameters of the particle systems as well as the individual particles can be analytically calculated. Theoretically, the representation of the particles by spheri-

wir in den letzten Jahren an der Universität Ulm mit der Methodik des virtuellen Materialtestens auf der Basis stochastischer Mikrostrukturmodelle erzielt haben. Dabei wird insbesondere gezeigt, welche Vorteile die Verknüpfung von hochaufgelöster tomographischer Bildgebung mit stochastischer 3D Strukturmodellierung und numerischer Modellierung bzw. Simulation von Materialeigenschaften besitzt, vgl. auch [3]. Wir demonstrieren dies am Beispiel der stochastischen Modellierung von Aktivpartikel-Systemen der Anoden von Energiezellen [4,5] bzw. Leistungszellen [6] in Lithium-Ionen-Batterien. Darüber hinaus zeigen wir, dass unser Ansatz auch zur stochastischen Modellierung der 3D Mikrostruktur von Aktivpartikel-Systemen in Kathoden-Materialien geeignet ist [7], obwohl sich die Formen der Metalloxid-Partikel in Kathoden deutlich von den Formen der Graphit-Partikel in Anoden unterscheiden. Außerdem diskutieren wir Phänomene der strukturellen Materialalterung in Batterieelektroden, die z. B. durch Partikelbruch bzw. Rissbildungen hervorgerufen werden [8–10].

2. Darstellung von Partikeln durch sphärische harmonische Funktionen

Zur Vorbereitung der stochastischen 3D Modellierung von Aktiv-Partikelsystemen wurde eine Methodik entwickelt, um die einzelnen Partikel jeweils mittels sphärischer harmonischer Funktionen zu beschreiben [11]. Dabei wird vorausgesetzt, dass sich die Partikel durch sogenannte sternförmige Mengen darstellen lassen, d. h., jedes Einzelpartikel wird durch eine Radius-Funktion dargestellt, die auf der dreidimensionalen Einheitssphäre definiert ist und die richtungsabhängigen Abstände vom Schwerpunkt zum Rand des Partikels beschreibt. Auf diese Weise können die Partikel, die in den tomographischen Bilddaten zunächst voxelbasiert gegeben sind, durch gitterfreie Vektordaten dargestellt werden. Dies bietet einen wesentlichen Effizienzgewinn, weil z. B. die spezifische Oberfläche sowie weitere Strukturkenngrößen des Partikelsystems als auch der Einzelpartikel analytisch berechnet werden können. Theo-

Practical Metallography downloaded from www.hanser-elibrary.com by Hanser - Library on April 3, 2018
For personal use only.



Figs. 1 a to d: *From left to right: Voxel based particle representation, representation through spherical harmonic functions with parameter L = 4, L = 10 or L = 20. Reprinted from [11], with permission from Elsevier.*

Bilder 1 a bis d: *Von links nach rechts: Voxelbasierte Partikeldarstellung, Darstellung durch sphärische harmonische Funktionen mit Parameter L = 4, L = 10 bzw. L = 20. Nachgedruckt aus [11], mit Erlaubnis von Elsevier.*

cal harmonic functions is based on an infinite series expansion. However, the series expansion is truncated at a specific parameter *L*. The spherical harmonic functions are hierarchically structured, i. e. lower-order functions describe coarser shape characteristics, while finer shapes are described by higher-order functions. The choice of *L* therefore affects the accuracy of approximation as well as the smoothing of the particles (see also Fig. 1). Subsequently, a multivariate normal distribution is fitted to the coefficient vectors of the series expansion, which then results in a stochastic single particle model.

retisch beruht die Darstellung der Partikel durch sphärische harmonische Funktionen auf einer unendlichen Reihenentwicklung. Dabei wird jedoch bei der konkreten Berechnung die Reihenentwicklung ab einem gewissen Parameter *L* abgebrochen. Die sphärischen harmonischen Funktionen sind hierarchisch geordnet, d. h. Funktionen geringerer Ordnung beschreiben rauere Formmerkmale, während feinere Formen durch Funktionen höherer Ordnung beschrieben werden. Die Wahl von *L* beeinflusst deshalb sowohl die Genauigkeit der Approximation als auch die Glättung der Partikel, vgl. hierzu Bild 1. Anschließend wird an die Koeffizienten-Vektoren der Reihenentwicklung eine multivariate Normalverteilung gefittet, durch die dann ein stochastisches Einzelpartikel-Modell gegeben ist.

Practical Metallography downloaded from www.hanser-elibrary.com by Hanser - Library on April 3, 2018
For personal use only.

3. Stochastic 3D Structure Model for Active Particle Systems

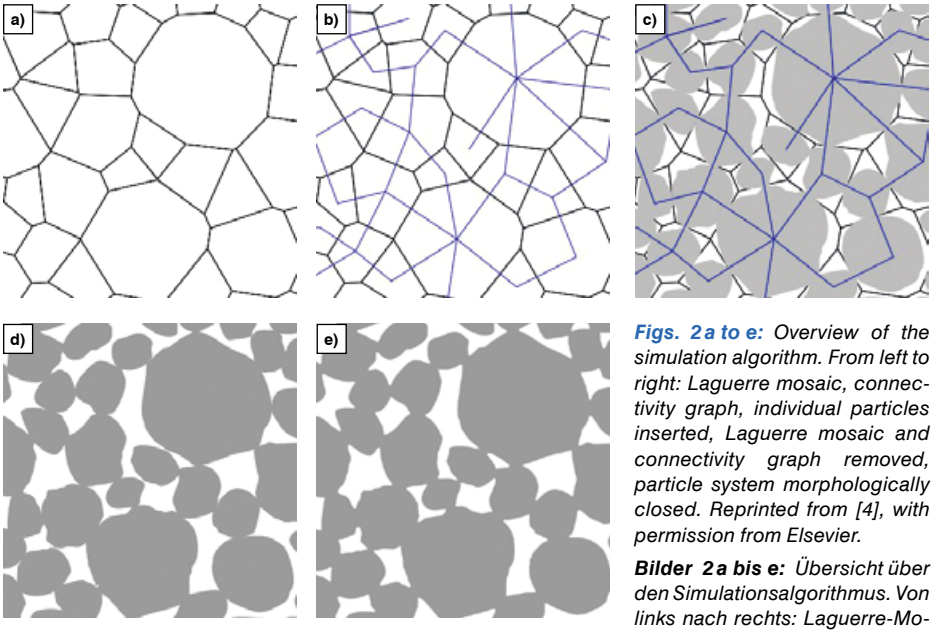
3.1 Graphite Particle in Anodes of Energy Cells

Based on the parametric representation for particles that was explained in Section 2, a parametric stochastic 3D model for the microstructure of graphite anodes in energy cells was developed [4]. This was done as follows. First, the approximate size and shape of each particle are defined through the polytopes of a Laguerre mosaic [12]. A random graph whose vertex set matches the polytopes' centre points, describes the connectivity of the particles, whereby full connectivity of the particle system is guaranteed. Then, using the stochastic single particle model (see Section 2), a particle is simulated in each Laguerre-polytope, which meets the connectivity conditions towards the adjacent particles. Through

3. Stochastisches 3D Strukturmodell für Aktivpartikel-Systeme

3.1 Graphitpartikel in Anoden von Energiezellen

Basierend auf der parametrischen Darstellung für Partikel, die in Abschnitt 2 erläutert wurde, ist ein parametrisches stochastisches 3D Modell für die Mikrostruktur von Graphit-Anoden in Energiezellen entwickelt worden [4]. Dabei wird wie folgt vorgegangen. Zunächst werden durch die Polytope eines Laguerre-Mosaiks [12] die Position, ungefähre Größe und Form jedes Partikels definiert. Ein zufälliger Graph, dessen Knotenmenge den Mittelpunkten der Polytope entspricht, beschreibt dann die Konnektivität der Partikel, wobei vollständige Konnektivität des Partikelsystems garantiert wird. Danach wird in jedem Laguerre-Polytop mit dem stochastischen Einzelpartikel-Modell, vgl. Abschnitt 2, ein Partikel simuliert, welcher die Konnektivitätsbedingungen zu den benachbar-



Figs. 2a to e: *Overview of the simulation algorithm. From left to right: Laguerre mosaic, connectivity graph, individual particles inserted, Laguerre mosaic and connectivity graph removed, particle system morphologically closed. Reprinted from [4], with permission from Elsevier.*

Bilder 2a bis e: *Übersicht über den Simulationsalgorithmus. Von links nach rechts: Laguerre-Mosaik, Konnektivitätsgraph, Einzelpartikel eingefügt, Laguerre-Mosaik und Konnektivitätsgraph entfernt, Partikelsystem morphologisch geglättet. Nachgedruckt aus [4], mit Erlaubnis von Elsevier.*

Practical Metallography downloaded from www.hanser-elibrary.com by Hanser - Library on April 3, 2018
For personal use only.

subsequent morphological smoothing, binder and carbon black are also included into the model. An overview of the single steps of the simulation algorithm is shown in Fig. 2.

3.2 Calibration and Validation of the Structure Model

The parameters of the stochastic microstructure model were adjusted to tomographic image data. The visual comparison of tomographic and simulated data shows a very high structural similarity, see Fig. 3.

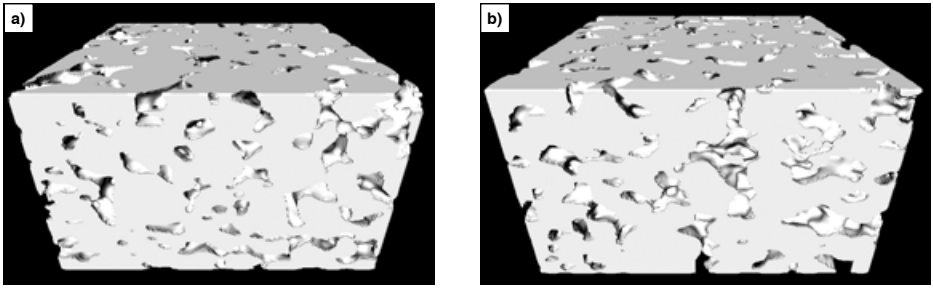
Afterwards, the model was validated using different structural parameters. Here, the validation is based on the average of 50 simulated structures or on 50 randomly selected cutouts from the tomographic image data. It was revealed that porosity and specific surface of the simulated data match the corresponding parameters of the experimental data very well. As examples for detailed structural parameters, the spherical contact distribution function and the distribution of the (local) geometrical tortuosity for experimental and virtual structures are plotted in Fig. 4. The value *H(r)* of the spherical contact distribution function (from pore to graphite phase) indicates the probability that the minimum distance between a randomly selected pore voxel and the graphite phase is not larger than *r*.

ten Partikeln erfüllt. Mit einer anschließenden morphologischen Glättung wird auch Binder und Leitruß in die Modellierung einbezogen. Eine Übersicht über die einzelnen Schritte des Simulations-algorithmus ist in Bild 2 gegeben.

3.2 Kalibrierung und Validierung des Strukturmodells

Die Parameter des stochastischen Strukturmodells wurden an tomographische Bilddaten angepasst. Der visuelle Vergleich von tomographischen und simulierten Daten zeigt eine sehr hohe strukturelle Ähnlichkeit, vgl. Bild 3.

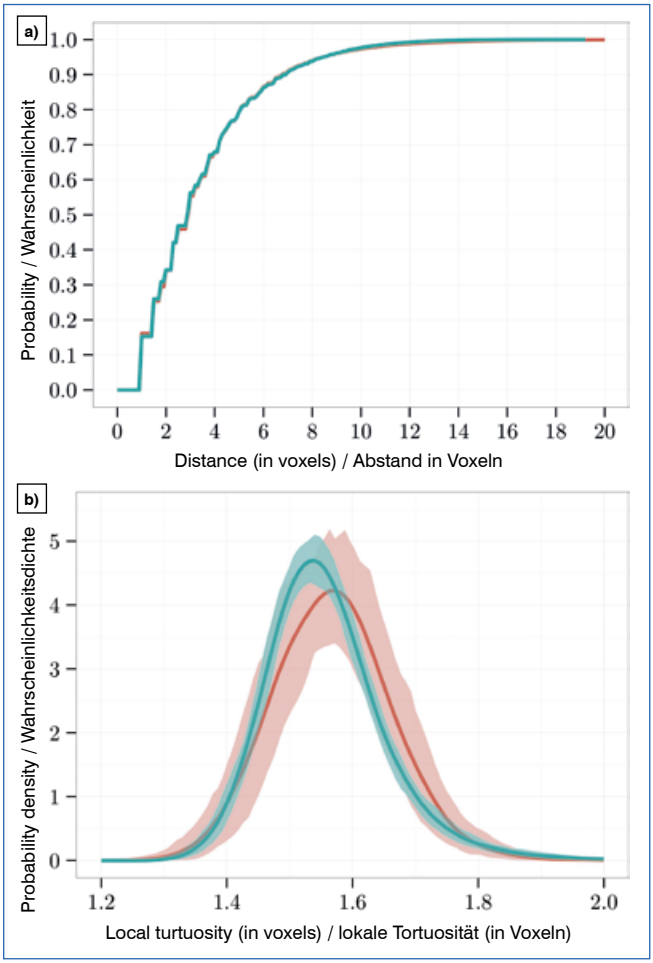
Anschließend wurde das Modell mithilfe verschiedener struktureller Kenngrößen validiert. Die Validierung beruht dabei auf dem Durchschnitt von 50 simulierten Strukturen bzw. von 50 zufällig ausgewählten Ausschnitten aus den tomographischen Daten. Dabei ergab sich, dass Porosität und spezifische Oberfläche der simulierten Daten sehr gut zu den entsprechenden Kenngrößen der experimentellen Daten passen. Als Beispiele für detailliertere strukturelle Kenngrößen sind in Bild 4, die sphärische Kontaktverteilungsfunktion und die Verteilung der (lokalen) geometrischen Tortuosität für experimentelle und virtuelle Strukturen geplottet. Dabei gibt der Wert *H(r)* der sphärischen Kontaktverteilungsfunktion (von der Poren- zur Graphitphase) die Wahrscheinlichkeit an, dass der minimale Abstand eines zufällig ausgewählten Porenvoxels zur Graphit-



Figs. 3a and b: *Cutout of a) tomographic and b) simulated image data. Reprinted from [4], with permission from Elsevier.*

Bild 3a und b: *Ausschnitt aus a) tomographischen und b) simulierten Bilddaten. Nachgedruckt aus [4], mit Erlaubnis von Elsevier.*

Practical Metallography downloaded from www.hanser-elibrary.com by Hanser - Library on April 3, 2018
For personal use only.



Figs. 4a and b: *Top: spherical contact distribution function; Bottom: geometric tortuosity. Red: Experimental data; blue: simulated data. For the geometrical tortuosity, the 5 % and 95 % quantiles were additionally marked. Reprinted from [4], with permission from Elsevier.*

Bilder 4a und b: *Oben: sphärische Kontaktverteilungsfunktion; Unten: geometrische Tortuosität. Rot: experimentelle Daten; blau: simulierte Daten. Bei der geometrischen Tortuosität wurden zusätzlich die 5 %- und 95 %-Quantile eingezeichnet. Nachgedruckt aus [4], mit Erlaubnis von Elsevier.*

The geometrical tortuosity describes the relationship between the shortest path lengths through the pore space of material and the material thickness. Although there are certain deviations, the areas between the 5 % and 95 % quantiles overlap almost completely, so that we can speak of a good correlation. Overall, the model can be used to represent the structural (and transport relevant) properties of the tomographic data.

phase nicht größer als *r* ist. Die geometrische Tortuosität beschreibt das Verhältnis der kürzesten Weglängen durch den Porenraum des Materials zur Materialdicke. Hier gibt es zwar gewisse Abweichungen, allerdings überschneiden sich die Bereiche zwischen den 5 %- und 95 %- Quantilen fast vollständig, so dass noch von einer guten Übereinstimmung gesprochen werden kann. Insgesamt ist das Modell also in der Lage, die strukturellen (und transportrelevanten) Eigenschaften der tomographischen Daten abzubilden.

Practical Metallography downloaded from www.hanser-elibrary.com by Hanser - Library on April 3, 2018
For personal use only.

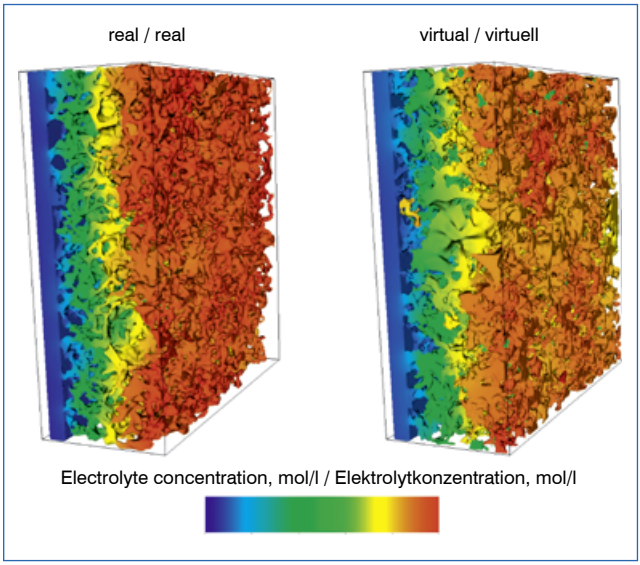


Fig. 5: *Concentration distribution in the electrolyte for experimental and virtual data. Reprinted from [5], with permission from Elsevier.*

Bild 5: *Konzentrationsverteilung im Elektrolyt für experimentelle und virtuelle Daten. Nachgedruckt aus [5], mit Erlaubnis von Elsevier.*

Realizations of the stochastic structure model are then used as input for the validation of the model in terms of physical parameters [5]. 20 experimental and 20 virtual structures were considered. The spatially-resolved results regarding concentration in the electrolyte, current density, particle flow and overvoltage show a good agreement between experimental and virtual structures, see Fig. 5.

Realisierungen des stochastischen Strukturmodells werden anschließend als Input für die Validierung des Modells bezüglich physikalischer Kenngrößen verwendet [5]. Dabei wurden je 20 experimentelle und virtuelle Strukturen betrachtet. Die ortsaufgelösten Ergebnisse bzgl. Konzentration im Elektrolyt, Stromdichte, Teilchenstrom und Überspannung zeigen eine gute Übereinstimmung zwischen experimentellen und virtuellen Strukturen, vgl. Bild 5.

4. Expansions and Applications of the Stochastic Structure Model

4.1 Structure Model for Active Particle Systems in Anodes of Power Cells

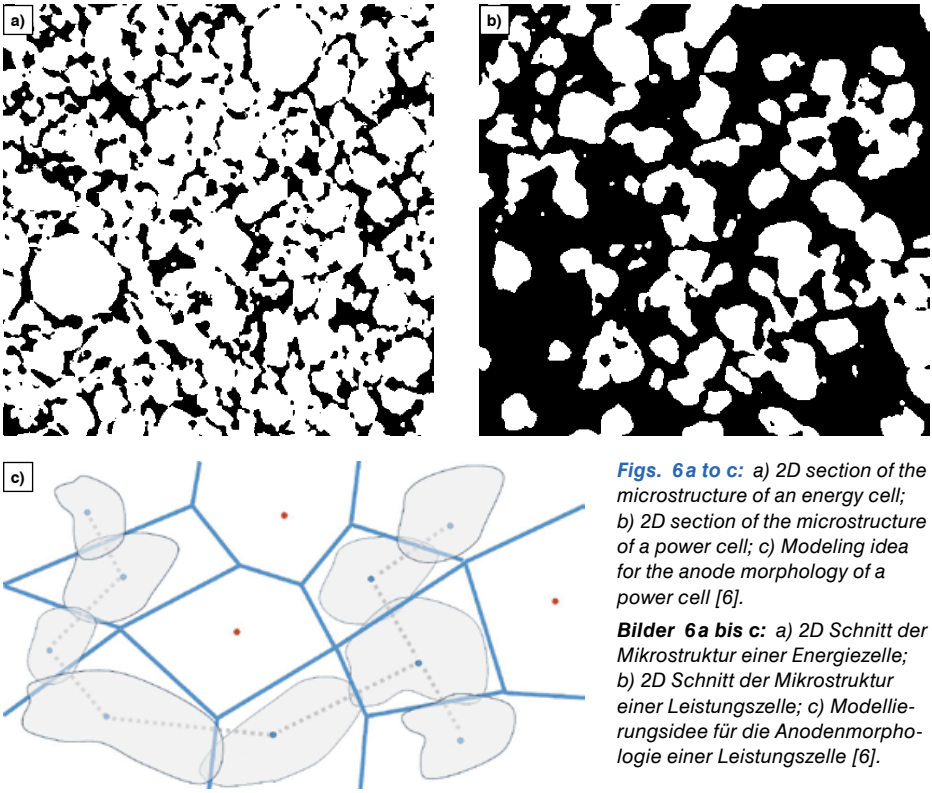
In contrast to energy cell anodes, the active particle systems of power cell anodes show a significantly lower volume volume fraction of the particle phase, see Fig. 6. Consequently, the structure model presented in Section 3 cannot directly be used for power cells. Reminder: The energy cell model explained in Section 3 first divides the space in convex polytopes and then

4. Erweiterungen und Anwendungen des stochastischen Strukturmodells

4.1 Strukturmodell für Aktivpartikel-Systeme in Anoden von Leistungszellen

Die Aktivpartikelsysteme von Leistungszellenanoden weisen im Gegensatz zu Energiezellenanoden einen deutlich geringeren Volumenanteil der Partikelphase auf, vgl. Bild 6. Deshalb lässt sich das in Abschnitt 3 vorgestellte Strukturmodell nicht direkt für Leistungszellen anwenden. Zur Erinnerung: Das in Abschnitt 3 erläuterte Modell für die Energiezelle unterteilt zunächst den Raum in konvexe

Practical Metallography downloaded from www.hanser-elibrary.com by Hanser - Library on April 3, 2018
For personal use only.



Figs. 6a to c: *a) 2D section of the microstructure of an energy cell; b) 2D section of the microstructure of a power cell; c) Modeling idea for the anode morphology of a power cell [6].*

Bilder 6a bis c: *a) 2D Schnitt der Mikrostruktur einer Energiezelle; b) 2D Schnitt der Mikrostruktur einer Leistungszelle; c) Modellierungsidee für die Anodenmorphologie einer Leistungszelle [6].*

inserts particles in these polytopes. Here, the connectivity of the particles can only be guaranteed if they fill out a reasonably large part of "their" polytope, see Fig. 2. If the particles are only allowed to fill out a smaller part of their polytopes, it is usually no longer possible to meet all boundary conditions given by the connectivity graph. Therefore, in the extended model for power cells, particles are no longer placed in every polytope, but empty polytopes are also created [6]. Here, the connectivity of the particle phase is still guaranteed, see Fig. 6c, empty polytopes are created by the points highlighted in red, particle polytopes are marked in blue.

Polytope und legt dann Partikel in diese Polytope. Dabei kann die Konnektivität der Partikel nur gewährleistet werden, wenn diese einen angemessen großen Teil "ihres" Polytops ausfüllen, vgl. Bild 2. Wenn die Partikel nun nur einen kleineren Anteil ihrer Polytope ausfüllen dürfen, ist es im Allgemeinen nicht mehr möglich, alle Randbedingungen, die durch den Konnektivitätsgraphen gegeben sind, in sinnvoller Weise zu erfüllen. Daher werden in dem erweiterten Modell für Leistungszellen nun nicht mehr in alle Polytope Partikel gelegt, sondern auch Leerpolytope erzeugt [6]. Dabei wird natürlich die Konnektivität der Partikelphase trotzdem gewährleistet, vgl. Bild 6c, wo Leerpolytope von den in rot markierten Punkten erzeugt werden, und Partikelpolytope von blauen Punkten.

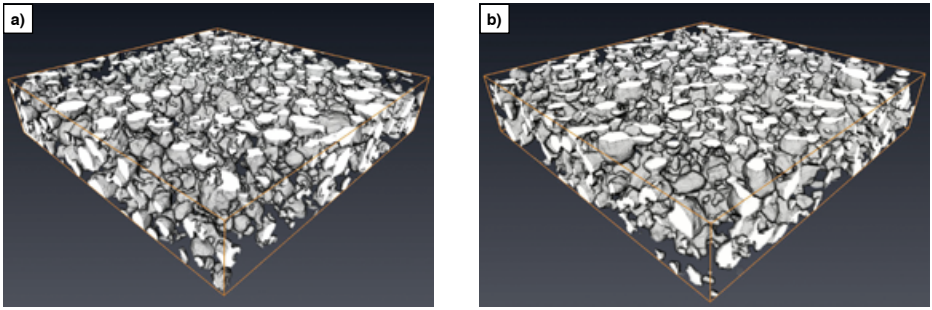
Practical Metallography downloaded from www.hanser-elibrary.com by Hanser - Library on April 3, 2018
For personal use only.

4.2 Structure Model for Active Particles in Cathodes

The anode models explained in Sections 3.1 and 4.1, can be refined in a way that the 3D morphology of active particle systems in cathode materials can also be represented, although the shapes of the metal oxide particles in cathodes differ significantly from the shapes of the graphite particles in anodes. In particular, the metal oxide particles are much more spherical than the graphite particles. Like in the power cell model, empty polytopes are also created in the cathode model. A modification of the algorithm ensures, however, that the polytopes already have a shape in which nearly spherical particles can be well embedded. Moreover, the parameter L of the spherical harmonics series expansion is flexibly chosen to obtain the smoothest possible particle surfaces for a few connectivity conditions, but still be able to meet all if there are many connectivity conditions. Fig. 7 shows a cutout from tomographic image data along with an accordingly simulated structure. The validation by means of morphological image parameters shows a good match between tomographic and simulated particle systems. It was also demonstrated that the model can be ad-

4.2 Strukturmodell für Aktivpartikel-Systeme in Kathoden

Die in den Abschnitten 3.1 und 4.1 erläuterten Anodenmodelle lassen sich so weiterentwickeln, dass auch die 3D Morphologie von Aktivpartikel-Systemen in Kathodenmaterialien dargestellt werden kann, obwohl sich die Formen der Metalloxid-Partikel in Kathoden deutlich von den Formen der Graphit-Partikel in Anoden unterscheiden. Insbesondere sind die Metalloxid-Partikel deutlich sphärischer als die Graphitpartikel. So wie im Leistungszellenmodell werden auch im Kathodenmodell Leerpolytope erzeugt. Durch eine Modifikation des Algorithmus wird jedoch sichergestellt, dass bereits die Polytope eine Form haben, in die nahezu sphärische Partikel gut eingebettet werden können. Des Weiteren wird der Parameter L der Spherical-Harmonics-Reihenentwicklung flexibel gewählt, um bei wenigen Konnektivitätsbedingungen möglichst glatte Partikel-Oberflächen zu erhalten, aber bei vielen Konnektivitätsbedingungen diese immer noch erfüllen zu können [7]. In Bild 7 ist ein Ausschnitt aus tomographischen Bilddaten zusammen mit einer entsprechend simulierten Struktur dargestellt. Die Validierung anhand morphologischer Bildkenngrößen zeigt eine gute Übereinstimmung zwischen tomographischen und simulierten Partikelsystemen. Darü-



Figs. 7a and b: *a) Cutout from the original data of a cathode; b) Realization of a virtual cathode microstructure [7].*

Bilder 7a und b: *a) Ausschnitt aus den Originaldaten einer Kathode; b) Realisierung einer virtuellen Kathodenmikrostruktur [7].*

Practical Metallography downloaded from www.hanser-elibrary.com by Hanser - Library on April 3, 2018
For personal use only.

justed to cathode structures for new as well as aged cathodes by a suitable choice of parameters [7].

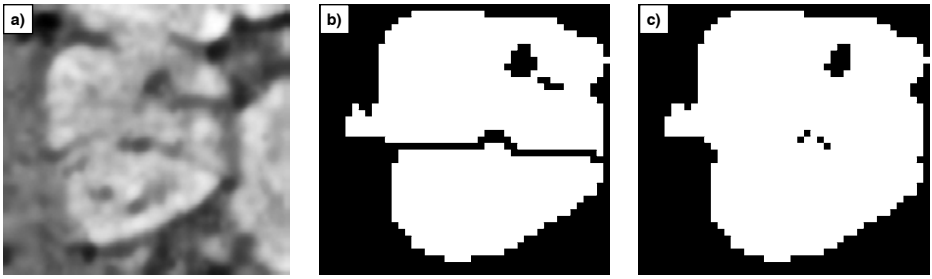
4.3 Algorithms for the Recognition of Particle Breakage or Crack Formations

In further studies, deformations of individual particles were observed during loading and unloading [8] as well as for particle breakage or crack formations [9, 10]. In [9, 10], particles were examined which are broken or show inner cracks. This is important to extend the modeling to further scenarios. Here, the first challenge is to suitably segment the underlying tomographic image data. Using conventional methods like watershed procedures, which are usually used for segmentation, broken particles would be recognized as two different particles, see Fig. 8. On the one hand, this leads to errors in the distribution of particle sizes and shapes. On the other hand, the information about which particles show cracks or fractures is not used. To circumvent this problem, algorithms which are able to virtually „reassemble“ broken particles were developed. One of these algorithms is based on methods of mechanical learning. At first the algorithm learns about the characteristics of the fracture point between two segments of a broken particle

ber hinaus wurde gezeigt, dass sich das Modell durch eine geeignete Wahl der Parameter an Kathodenstrukturen sowohl für neuwertige als auch gealterte Kathoden anpassen lässt [7].

4.3 Algorithmen zur Erkennung von Partikelbruch bzw. Rissbildungen

In weiteren Studien sind Verformungen einzelner Partikel bei Be- bzw. Entladung [8] sowie Partikelbruch bzw. Rissbildungen [9, 10] betrachtet worden. So wurden in [9, 10] Partikel untersucht, die auseinandergebrochen sind oder innere Risse aufweisen. Dies ist z. B. wichtig, um die Modellierung auf weitere Szenarien auszudehnen. Dabei besteht die erste Herausforderung darin, die zugrundeliegenden tomographischen Bilddaten geeignet aufzubereiten. Mit gängigen Verfahren, wie z. B. Watershed-Verfahren, die klassischerweise zur Segmentierung angewendet werden, würden zerbrochene Partikel als zwei verschiedene Partikel erkannt werden, vgl. Bild 8. Das führt zum einen zu Fehlern in den Verteilungen von Partikelgrößen und -formen. Zum anderen wird die Information, an welchen Partikeln Risse oder Brüche auftreten, nicht verwendet. Um dieses Problem zu umgehen, wurden Algorithmen entwickelt, die in der Lage sind, zerbrochene Partikel virtuell wieder „zusammenzufügen“. Einer dieser Algorithmen basiert auf Methoden des maschinellen Lernens [9]. Der Algorithmus lernt dazu zunächst



Figs. 8a to c: *a) Original grayscale image of the particle; b) Segmentation with standard watershed algorithm; c) Assembled particle [9].*

Bilder 8a bis c: *a) Original Graustufenbild des Partikels; b) Segmentierung mit Standard-Watershed-Algorithmus; c) Zusammengefügtes Partikel [9].*

Practical Metallography downloaded from www.hanser-elibrary.com by Hanser - Library on April 3, 2018
For personal use only.

by using manually segmented data. Such fracture points can then be automatically detected in similar sets of data. To validate the results, the stochastic model presented in Section 3.1 was used to generate image data and virtually break particles. This data can be used to quantify the success of the algorithm. As an alternative to this approach, a parametric segmentation algorithm was developed in [10], which can also detect cracks that did not lead to the complete fracture of the particle into two pieces and which does not require manually segmented image data to train the algorithm. This approach was also validated by the examination of simulated structures and the applicability for different real structures was shown.

These algorithms can be used to enable a segmentation of heavily aged electrodes, which also considers cracks and fractures of particles and serves as the basis for further modeling.

auf von Hand segmentierten Daten, welche Eigenschaften die Bruchstelle zwischen zwei Fragmenten eines gebrochenen Partikels hat. Solche Bruchstellen können dann automatisch in ähnlichen Datensätzen detektiert werden. Zur Validierung der Ergebnisse wurden mit dem in Abschnitt 3.1 präsentierten stochastischen Strukturmodell Bilddaten generiert und zusätzlich Partikel virtuell zerbrochen. Mit Hilfe dieser Daten konnte dann der Erfolg des Algorithmus quantifiziert werden. Als Alternative zu diesem Ansatz wurde in [10] ein parametrischer Segmentieralgorithmus entwickelt, der auch Risse in Partikeln, die nicht zum vollständigen Bruch in zwei Teile führen, detektiert, und keine von Hand segmentierten Bilddaten zum Training des Algorithmus benötigt. Auch dieser Ansatz wurde durch Untersuchung simulierter Strukturen validiert sowie die Anwendbarkeit für verschiedene reale Strukturen gezeigt.

Mithilfe dieser Algorithmen kann eine Segmentierung von stark gealterten Elektroden ermöglicht werden, die auch die Risse und Brüche von Partikeln berücksichtigt und die Grundlage für eine weiterführende Modellierung darstellt.

Acknowledgements

An earlier version of this work has been published in “Fortschritte in der Metallographie. Sonderband zur 51. Metallographie-Tagung in Aalen, T. Bernthaler, G. Schneider (Hrsg.), Aalen, 13.–15.09.2017, 189–194.”

Danksagung

Eine frühere Fassung dieser Arbeit wurde in „Fortschritte in der Metallographie. Sonderband zur 51. Metallographie-Tagung in Aalen, T. Bernthaler, G. Schneider (Hrsg.), Aalen, 13.–15.09.2017, 189–194.“ veröffentlicht.

References / Literatur

[1] Schmidt, D.; Kleinbach, M.; Kamlah, M.; Knoblauch, V., in: Fortschritte in der Metallographie. Sonderband der Praktischen Metallographie zur 51. Metallographie-Tagung in Aalen, T. Bernthaler, G. Schneider (Hrsg.), Aalen, 13.–15.09.2017, 61–66

[2] Newman, J.; Thomas, K.; Hafezi, H.; Wheeler, D.: J. Power Sources 119 (2003), 838–843 DOI: 10.1016/S0378–7753(03)00282–9

[3] Feinauer, J., Hein, S.; Rave, S.; Schmidt, S.; Westhoff, D.; Zausch, J.; Iliev, O.; Latz, A.; Ohlberger, M.; Schmidt, V.: MULTIBAT: Unified workflow for fast electrochemical 3D simulations of lithium-ion cells combining virtual stochastic microstructures, electrochemical degradation models and model order reduction. J. Comput. Sci. (under revision)

[4] Feinauer, J.; Brereton, T.; Spettl, A.; Weber, M.; Manke, I.; Schmidt, V.: Comput. Mater. Sci. 109 (2015), 137–146 DOI: 10.1016/j.commatsci.2015.06.025

Practical Metallography downloaded from www.hanser-elibrary.com by Hanser - Library on April 3, 2018
For personal use only.

[5] Hein, S.; Feinauer, J.; Westhoff, D.; Manke, I.; Schmidt, V.; Latz A.: J. Power Sources 336 (2016), 161–171
DOI: 10.1016/j.jpowsour.2016.10.057

[6] Westhoff, D.; Feinauer, F.; Kuchler, K.; Mitsch, T.; Manke, I.; Hein, S.; Latz, A.; Schmidt, V.: Comput. Mat. Sci. 126 (2017) 453–467
DOI: 10.1016/j.commatsci.2016.09.006

[7] Kuchler, K.; Westhoff, D.; Feinauer, J.; Mitsch, T.; Manke, I.; Schmidt V.: Stochastic model of the 3D microstructure of Li-ion battery cathodes under various cyclical aging scenarios, Model. Simul. Mater. Sci. Eng. (in print)

[8] Pietsch, P.; Westhoff, D.; Feinauer, J.; Eller, J.; Marone, F.; Stampanoni, M.F.M.; Schmidt, V.; Wood, V.: Nat. Commun. 7 (2016) 12909
DOI: 10.1038/ncomms12909

[9] Petrich, L.; Westhoff, D.; Feinauer, J.; Finegan, D.P.; Daemi, S.R.; Shearing, P.R.; Schmidt, V.: Comput. Mat. Sci. 136 (2017) 297–305
DOI: 10.1016/j.commatsci.2017.05.012

[10] Westhoff, D; Finegan, D.P.; Shearing, P.R.; Schmidt, V.: Algorithmic structural segmentation of defective particle systems: A lithium-ion battery study. Journal of Microscopy (im Druck),
DOI: 10.1111/jmi.12653

[11] Feinauer, J.; Spettl, A.; Manke, I.; Strege, S.; Kwade, A.; Pott, A.; Schmidt, V.: Mater. Charact. 106 (2015) 123–133.
DOI: 10.1016/j.matchar.2015.05.023

[12] Chiu, S.N.; Stoyan, D.; Kendall, W.S.; Mecke, J.: Stochastic Geometry and its Applications, 3 Auflage, J. Wiley & Sons, Chichester, 2013.
DOI: 10.1002/9781118658222

Bibliography

DOI 10.3139/147.110501
Pract. Metallogr. 55 (2018) 3; page 134–146
© Carl Hanser Verlag GmbH & Co. KG
ISSN 0032–678X

Daniel Westhoff

is a PhD student at the Institute of Stochastics at Ulm University under the supervision of Prof. Dr. Volker Schmidt. In his research he deals with structural segmentation, statistical analysis and stochastic modeling of 3D image data with a focus on the microstructure of functional materials.

Volker Schmidt

is Professor at the Institute of Stochastics at Ulm University. He received his PhD from the Technical University of Freiberg. His research interests include stochastic modeling and simulation of 3D microstructures, using tools of stochastic geometry and spatial statistics.