

## MAGNIFICO

Development of a protective inorganic interface for using metallic Mg anodes in next-generation Mg-ion batteries

<b>Programm / Ausschreibung</b>	Energieforschung (e!MISSION), Energieforschung, Energieforschung 8. Ausschreibung	<b>Status</b>	laufend
<b>Projektstart</b>	01.01.2023	<b>Projektende</b>	31.12.2025
<b>Zeitraum</b>	2023 - 2025	<b>Projektlaufzeit</b>	36 Monate
<b>Keywords</b>	Mg-Ionen Batterien; Mg Pulveranoden; stabilisierende Elektrodenoberflächenmodifikation; Machine Learning Potential; Simulationstool		

### Projektbeschreibung

Die Magnesium-Ionen-Batterie (MIB) ist eine vielversprechende Technologie, die für stationäre Energiespeicheranwendungen potenziell höhere Energiedichten bei geringeren Kosten als Lithium-Ionen-Batterien erreichen kann. Dies ist aufgrund des natürlichen Vorkommens, der geringen Kosten, der Umweltverträglichkeit und der elektrochemischen Eigenschaften von Magnesium (Mg) möglich. Das größte Hindernis für die Weiterentwicklung von MIB ist jedoch die Inkompatibilität der Mg-Metallanode mit herkömmlichen Elektrolytlösungen (z. B. Mg(TFSI)<sub>2</sub> in Glymes). Solche Lösungen zersetzen sich an der Oberfläche des metallischen Mg und bilden eine Passivierungsschicht, welche die Mg<sup>2+</sup>-Diffusion sowie den Elektronentransport behindert.

In MAGNIFICO soll ein sicherer und nachhaltiger nasschemischer Ansatz zur Entwicklung eines Anodenmaterials der Generation 5 entwickelt werden, bei dem eine schützende intermetallische Grenzphase auf der Oberfläche der Mg-Metallpulverpartikel gebildet wird. Diese Beschichtung hat die Funktion, die Zersetzung des Elektrolyten und die Mg-Passivierung zu verhindern und gleichzeitig die Diffusionsfähigkeit der Mg<sup>2+</sup>-Kationen zu bewahren. Mit Hilfe einer neuartigen Eintopf-Synthesemethode unter Verwendung umweltfreundlicher Säurelösungen wird die Oxidschicht von der Mg-Pulveroberfläche unter inerter Atmosphäre entfernt. Gleichzeitig werden Bi- und/oder Sn-basierte Präkursoren mit der frischen Mg-Oberfläche reagieren, was zur Bildung einer intermetallischen Mg-X-Grenzphase führen wird.

Experimentelle Methoden kombiniert mit computergestützten Simulationen und Modellierungsansätzen (Dichtefunktionaltheorie (DFT)- und Machine Learning Potentiale (MLP)) werden synergetisch angewandt, um die Eigenschaften der intermetallischen Grenzphase ausführlich charakterisieren zu können. Mikroskopische (Rasterelektronenmikroskopie und Transmissionselektronenmikroskopie), spektroskopische (Röntgenphotoelektronenmikroskopie, Raman- und Infrarotspektroskopie), diffraktometrische (Röntgendiffraktometrie) und elektrochemische Methoden (galvanostatische Zyklisierung, elektrochemische Impedanzspektroskopie und zyklische Voltammetrie) werden angewandt, um die Zusammensetzung, die Morphologie, die Transporteigenschaften und die Stabilität der schützenden Grenzphase nach der Synthese sowie bei verschiedenen Ladezuständen (ex-situ) und während

des Zellbetriebes (in-situ) zu untersuchen. Es werden DFT- und MLP-Berechnungen durchgeführt, um mechanistische und molekulare Einblicke in die intermetallischen Interphasen unter rechnerisch idealen (0 K) sowie realistischen (Raumtemperatur) Bedingungen zu gewinnen. Phasenstabilität und -energetik, Defektchemie, Defektbildungsenergien und Transporteigenschaften werden im Rahmen der Modellierungsarbeit berechnet.

Durch die gezielte Kombination von computergestützten und experimentellen Ansätzen zum Materialdesign wird MAGNIFICO innovative Strategien zur Entwicklung von Mg-Pulveranoden entwickeln und die MIB über den Stand der Technik hinausbringen. Der TRL-Wert zu Beginn des Projekts beträgt 1, da Grundlagenforschung und umfangreiche experimentelle Arbeiten erforderlich sind, um die Oberfläche der Mg-Metallpartikel mit einer schützenden intermetallischen Grenzphase zu versehen. Außerdem werden beträchtliche Rechenressourcen benötigt, und es werden zum ersten Mal Machine Learning Potentiale zur Durchführung von hochkomplexen atomistischen Berechnungen für Mg-Batterieanodenmaterialien entwickelt und eingesetzt. Am Ende von MAGNIFICO wird eine oberflächenbearbeitete Mg-Pulveranode unter Verwendung einer Hochspannungs-Kathode aus dem niedrigkritischen Rohstoff  $\text{MgMn}_2\text{O}_4$ -Material in eine umweltverträgliche 3-V-Mg-Ionen-Batterie für stationäre Energiespeicheranwendungen integriert. Es wird erwartet, dass die geschützte Mg-Pulveranode lange Zelllebensdauern (über 4000 Zyklen) erreicht und damit den derzeitigen Stand der Technik für MIB übersteigt. Am Ende von MAGNIFICO wird daher ein TRL von 3 durch den Aufbau eines 3,0-V-Konzeptnachweises erreicht werden. Die in MAGNIFICO entwickelten innovativen Strategien werden es auch ermöglichen, die Mg-Pulveranode mit konventionellen Techniken aus der LIB-Produktion zu verarbeiten und somit die bereits entwickelte LIB-Infrastruktur in Europa zu nutzen.

## Abstract

The magnesium-ion battery (MIB) is a promising technology which can potentially achieve higher energy densities at lower cost than lithium-ion batteries for stationary energy storage applications. This is possible thanks to the natural abundance, low cost, environmental sustainability and electrochemical properties of magnesium (Mg). However, the major obstacle in the further development of MIBs is the incompatibility of the Mg metal anode with conventional electrolyte solutions (e.g.  $\text{Mg}(\text{TFSI})_2$  in glymes). These solutions decompose at the surface of metallic Mg, forming a passivation layer that inhibits the  $\text{Mg}^{2+}$  diffusion and electronic transport.

In MAGNIFICO, a safe and sustainable wet-chemical approach will be applied to develop a Generation 5 anode material by generating a protective intermetallic interphase on the surface of Mg metal powder particles. This coating layer will prevent electrolyte decomposition and Mg passivation, while maintaining the diffusivity of the  $\text{Mg}^{2+}$  cations. Via a novel, one-pot synthesis method, the native oxide layer will be removed from the Mg powder surface using environmentally friendly acid solutions under inert atmosphere. At the same time, Bi and/or Sn-based precursors will react with the fresh Mg surface, resulting in the formation of an intermetallic Mg-X interphase.

Experimental methods and computational calculations (density functional theory and machine learning potentials) will be used synergistically to characterise the properties of the intermetallic interphase. Microscopic (scanning electron microscopy and transmission electron microscopy), spectroscopic (X-ray photoelectron microscopy, Raman and infrared spectroscopies), diffractometric (X-ray diffraction) and electrochemical techniques (galvanostatic cycling, electrochemical impedance spectroscopy and cyclic voltammetry) will be applied to evaluate the composition, morphology, transport properties, and stability of the artificial protective layer after synthesis, as well as at different states of charge (ex-situ) and during cell cycling (in-situ). First principles (DFT) and machine learning potential (MLP) calculations will be performed to gain

mechanistic and molecular-level insights on the intermetallic interphases at computationally ideal (0 K) and realistic (application temperature) conditions. Phase stability and energetics, defect chemistry, defect formation energies, transport properties, etc. will be computed throughout the project.

Combining computational and experimental approaches to material design, MAGNIFICO will develop cutting-edge strategies for engineering Mg-powder anodes and push MIBs beyond the State of the Art. The TRL at the start of the project is 1, since basic research and extensive experimental work is necessary for engineering the surface of the Mg metal particles with a protective intermetallic interphase. Furthermore, significant computational resources will be required and machine learning potential calculations will be performed for the first time on Mg-battery anode materials. At the end of MAGNIFICO, surface-engineered Mg powder anodes will be integrated into an environmentally sustainable 3 V Mg-ion battery for stationary energy storage applications using a high voltage  $\text{MgMn}_2\text{O}_4$  cathode, low in critical raw materials. The as-protected Mg metal anode is expected to achieve long cell lifetimes (over 4000 cycles), thereby exceeding the current State of the Art for MIBs. At the end of MAGNIFICO, a TRL of 3 will be attained by assembling a 3.0 V proof of concept cell. This innovative strategy will also allow the Mg-powder based anode to be processed and fabricated using conventional techniques and battery production infrastructure, which is already developed in Europe for LIBs.

### **Projektkoordinator**

- AIT Austrian Institute of Technology GmbH

### **Projektpartner**

- Institute of Science and Technology - Austria