



**HAL**  
open science

# Étude du vieillissement de cellules LFP : diagnostic de l'état de santé de la cellule et des électrodes en vue d'une réutilisation en seconde vie

William Wheeler, Ali Sari, Pascal Venet, Yann Bultel, Elie Rivière

## ► To cite this version:

William Wheeler, Ali Sari, Pascal Venet, Yann Bultel, Elie Rivière. Étude du vieillissement de cellules LFP : diagnostic de l'état de santé de la cellule et des électrodes en vue d'une réutilisation en seconde vie. JCGE, Jun 2022, Le Croisic, France. hal-03696184

**HAL Id: hal-03696184**

**<https://hal.science/hal-03696184>**

Submitted on 15 Jun 2022

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

# Étude du vieillissement de cellules LFP : diagnostic de l'état de santé de la cellule et des électrodes en vue d'une réutilisation en seconde vie.

William Wheeler<sup>1,2,3</sup>, Ali Sari<sup>1</sup>, Pascal Venet<sup>1</sup>, Yann Bultel<sup>2</sup>, Elie Rivière<sup>3</sup>

<sup>1</sup>Univ-Lyon, Université Claude Bernard Lyon 1, INSA Lyon, Ecole Centrale de Lyon, CNRS, Ampère, UMR5005, 69622 Villeurbanne, France

<sup>2</sup>Univ. Grenoble Alpes, Univ. Savoie Mont Blanc, CNRS, Grenoble INP, LEPMI, F-38000 Grenoble, France

<sup>3</sup>EVE System, 69440 Taluyers, France

*william.wheeler@univ-lyon1.fr*

**RESUME** – Les applications de seconde vie pour les batteries lithium-ion sont une opportunité pour l'industrie de repousser leur coût de recyclage, d'améliorer leur valeur économique et de réduire leurs impacts environnementaux. Le pronostic de la durée de vie restante (RUL) est nécessaire afin d'assurer le fonctionnement des batteries dans l'application de seconde vie visée. Pour la mise en place d'un pronostic fiable, il est nécessaire de diagnostiquer les différents phénomènes de vieillissement intervenants. Cet article propose une méthode de caractérisation de différents phénomènes de vieillissement dans des cellules Lithium-Fer-Phosphate (LFP) permettant d'identifier le vieillissement dû à la perte de lithium cyclable (LLI) et la perte de matière active à l'électrode négative (LAM<sub>NE</sub>). L'identification et l'évolution des états de santé (SoH) se basent sur une étude de vieillissement accéléré de vingt cellules 18650 LFP 1,1 Ah et 3 cellules prismatiques 72 Ah. Les résultats présentés permettent de différencier les vieillissements sur une année d'essais.

**ABSTRACT** – Second life applications for lithium-ion batteries are an opportunity for the industry to push back recycling costs, improve their economic value and reduce their environmental impacts. The prognosis of the Remaining Useful Life (RUL) is necessary to ensure second life operation. Diagnosis is necessary for the establishment of a reliable prognosis, based on all phenomena involved in cell aging. This paper proposes a method to characterize the different aging phenomena in lithium iron phosphate (LFP) cells in order to identify the aging due to the Loss of Lithium Inventory (LLI) and the Loss of Active Material at the negative electrode (LAM<sub>NE</sub>). The identification and evolution of the State of Health (SoH) is based on an accelerated aging study of 20 18650 LFP 1.1 Ah cells and 3 prismatic 72 Ah cells. The presented results allow differentiating the dynamics of aging in a year of testing.

**MOTS-CLES** – Batterie, vieillissement, lithium-ion, LFP, diagnostic, état de santé, SOH, LLI, LAM.

## 1. Introduction

Le secteur de la mobilité est en pleine évolution du fait d'une multitude de réforme environnementale, dont la fin annoncée du véhicule thermique à l'horizon 2030-2050 sur le continent européen. Aujourd'hui, l'électrification des véhicules se fait par un recours massif à l'usage des batteries lithium-ion pour le stockage d'énergie que ce soit pour les véhicules électriques hybrides rechargeables ou non (PHEV et HEV) ou les véhicules électriques à batteries (BEV) [1]. Ces éléments de stockage d'énergie ont une durée de vie limitée dépendante de la chimie choisie, des conditions de stockage ainsi que des conditions d'utilisation. En vieillissant, une batterie voit sa capacité admissible diminuer ainsi que son état de santé. La notion de fin de vie ne signifie pas l'impossibilité d'utilisation de la batterie dans le véhicule électrique. Elle désigne une baisse significative de la capacité de la batterie empêchant le véhicule de réaliser son profil de mission en respectant les critères préétablis, par exemple l'autonomie ou la performance. La littérature considère pour la fin de première vie une diminution de la capacité de 20% à 30% pour un véhicule électrique. Ce sont donc des éléments qui possèdent toujours une capacité de stockage d'énergie importante, entre 80% à 70% de la capacité initiale [2,3].

Une grande quantité de batteries seront à traiter dans les années à venir. Bien que le recyclage et la récupération de 50% de la masse de la batterie soient rendus obligatoires au sein de l'Union européenne par la directive 2006/66/CE [4], cette opération représente un coût tant économique qu'environnemental. Les batteries de véhicules électriques sont considérées comme des déchets industriels. La gestion et le financement du recyclage reviennent alors au producteur du dispositif de stockage d'énergie. Les applications de seconde vie pour les batteries lithium-ion sont une opportunité pour l'industrie de

repousser les coûts de recyclage, d'améliorer la valeur économique des batteries lithium-ion et de réduire l'impact environnemental. Cependant, la remise en circulation des batteries doit être garantie par le constructeur pour un temps ou un nombre de cycles donné. La revente de batteries en seconde vie nécessite un pronostic afin de s'assurer que l'élément pourra satisfaire l'application visée. Or le vieillissement des batteries lithium-ion est très étudié pour des applications de première vie, entre 100% et 70% d'état de santé (SoH) et très peu pour des états de vieillissement prolongés au delà de ce niveau de dégradation.

Cet article propose une méthode de caractérisation de cellules industrielles afin de différencier les états de santé des cellules et des électrodes. L'étude de vieillissement se fait sur des cellules Lithium-Fer-Phosphate (LFP) neuves jusqu'à des états de santé représentatifs de la seconde vie : entre 30% et 40% des performances initiales. Les données de vieillissement sont utilisées pour comparer le vieillissement des cellules lithium-ion et d'analyser les vieillissements de leurs éléments spécifiques comme l'électrode négative. Une méthode de caractérisation des électrodes sera présentée puis utilisée pour estimer l'état de santé des électrodes par rapport à l'état de santé des cellules.

## 2. Méthodologie

### 2.1 Étude du vieillissement de cellules LFP

Les essais sont réalisés dans les laboratoires Ampère et LEPMI (UMR CNRS 5005 et 5279) avec quatre bancs de cyclage sur des cellules neuves. Deux bancs sont dédiés pour le vieillissement de cellules LFP haute capacité (72 Ah) au format prismatique utilisées dans des véhicules électriques industriels. Les deux autres bancs sont utilisés pour réaliser des tests sur vingt cellules cylindriques 18650 de 1.1Ah. Toutes les expériences sont menées en vieillissement accéléré à une température de 50°C. Les caractérisations lors des essais de vieillissement se déroulent en deux temps. Un premier temps permet de caractériser la capacité des cellules par une décharge à courant constant (CC) à un régime de C/3 et une charge à courant constant suivie d'une phase à tension constante (CCCV) à C/3 jusqu'à la tension maximale admissible de 3.65V. Le deuxième temps est une caractérisation à un faible régime en charge et décharge à C/25 afin d'obtenir le profil de tension à vide de la cellule (pseudo-OCV). La première caractérisation définit la capacité restante de la batterie, et la seconde permet l'estimation de la capacité des électrodes à partir de la méthode présentée dans le paragraphe 2.2. Ces opérations de caractérisation sont répétées tous les 100 cycles de vieillissement.

Différents vieillissements accélérés sont étudiés. Le Tableau 1 présente les cas d'essai pour les 23 cellules avec les variations de chacun des paramètres d'utilisation : une profondeur de décharge (DoD) de 70% ou 100% ; une charge CC ou CCCV ; un régime de décharge à C/3 ou 2C ; une tension de fin de charge de 3.55V ou 3.65V ; une décharge de type véhicule électrique ou à courant constant à 2C. Le profil de décharge de type véhicule électrique est calculé à partir du standard « Worldwide harmonized Light vehicles Test Procedures » (WLTP). Le cycle est utilisé pour s'approcher d'un fonctionnement type de véhicule électrique. Les caractéristiques de ce cycle WLTP sont un régime de décharge moyen de C/3 avec un régime de décharge maximal de 2,5C. Ce cycle de décharge prend en compte la régénération d'énergie dans le cas d'un freinage du véhicule. Les résultats expérimentaux disponibles sont traités et présentés sur la Figure 4. L'état de santé (SoH) de la cellule définie par l'équation 1 atteint est de 70% à 40% selon le cas de vieillissement. Le SoH exprimé à l'équation (1) se définit comme le rapport de la capacité maximum exploitable à un état de vieillissement donné  $Q_{cell_{max}}$  par rapport à la capacité nominale de la cellule  $Q_{cell_0}$ .

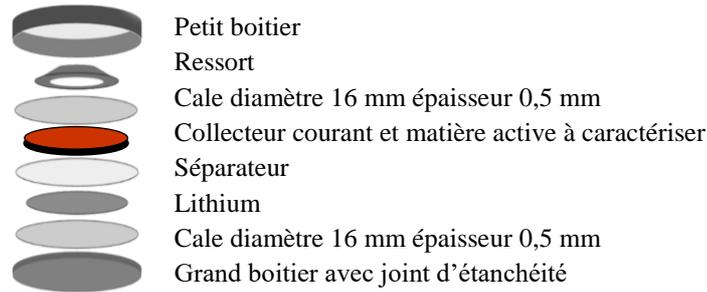
$$SoH_{cell} = 100 * \frac{Q_{cell_{max}}}{Q_{cell_0}} \quad [\%] \quad (1)$$

Tableau 1. Tableau de synthèse des différents cas de vieillissement.

Référence des cas de vieillissement	Type de Charge	Tension de coupure en fin de charge	Régime de charge	Type de décharge	Régime de charge	DoD
Cellule prismatique 1 ■	CC	3.65 V	C/3	WLTP	C/3	70 %
Cellule prismatique 2 ■	CC-CV	3.65 V	C/3	WLTP	C/3	70 %
Cellule prismatique 3 ■	CC-CV	3.55 V	C/3	WLTP	C/3	70 %
Cellule 18650 4 ○, 5 ×	CC	3.65 V	C/3	WLTP	C/3	70 %
Cellule 18650 6 ○, 7 ×, 8 *	CC	3.65 V	C/3	WLTP	C/3	100 %
Cellule 18650 9 ○, 10 ×, 11 *	CC-CV	3.55 V	C/3	WLTP	C/3	70 %
Cellule 18650 12 ○, 13 ×, 14 *	CC-CV	3.65 V	2C	WLTP	C/3	70 %
Cellule 18650 15 ○, 16 ×, 17 *	CC-CV	3.55 V	2C	WLTP	C/3	70 %
Cellule 18650 18 ○, 19 ×, 20 *	CC-CV	3.65 V	2C	CC	2C	70 %
Cellule 18650 20 ○, 21 ×, 23 *	CC-CV	3.65 V	C/3	WLTP	C/3	70 %

## 2.2 Identification du vieillissement : caractérisation des matériaux d'électrode

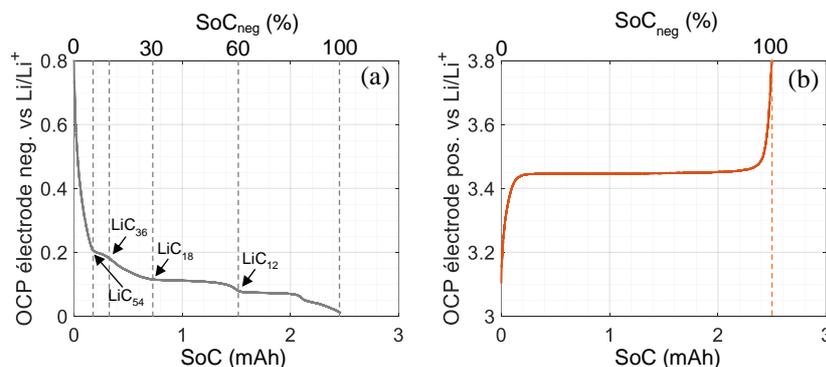
La caractérisation électrique des matériaux d'électrode se fait à partir de la réalisation d'une demi-pile réalisée dans le format bouton CR2032 présenté sur la Figure 1 à partir du démontage d'une cellule neuve. Le démontage s'effectue pour une cellule à un état de charge nul. L'électrode négative est alors à un état délithié et l'électrode positive à un état plutôt lithié. L'électrode prélevée est composée du collecteur de courant et de la matière active à caractériser. L'électrode est placée face à une électrode en lithium. Une mesure du potentiel au cours de la lithiation ou de la délithiation ne correspond pas à la valeur du potentiel d'équilibre électrochimique de l'électrode. Dans ce cas, nous parlons de pseudo potentiel de circuit ouvert (pseudo-OCP). L'obtention du pseudo-OCP se fait à des régimes très faibles (C/25) pour négliger les différences de tension dues à l'impédance de la cellule. Seule la mention OCP sera alors utilisée dans la suite du document.



**Figure 1 : constitution de la pile bouton pour la caractérisation des matériaux d'électrode.**

Avant de réaliser la mesure de l'OCP, il est nécessaire de finir l'opération de délithiation de l'électrode négative et de lithiation de l'électrode positive. Cette opération permet d'atteindre les limites d'utilisation des matériaux d'électrode et la mesure du reste de capacité non exploitée dans chacune des électrodes. Cette mesure nous donne accès au décalage à l'origine de la capacité entre les courbes de potentiel des deux électrodes pour une cellule complète  $\Delta Q_{LLI_0}$  (cf. Figure 3(a)). Dans le cas de l'électrode LFP, il faut finir la lithiation de l'électrode, i.e. décharger la pile bouton. Pour l'électrode de graphite, il est nécessaire de finir la délithiation de l'électrode, i.e. la charge de la pile bouton.

L'obtention de l'OCP en pile bouton, de l'électrode LFP se fait en charge alors que l'OCP de l'électrode graphite se fait en décharge. Cette mesure permet de connaître les caractéristiques des électrodes dans le cas de fonctionnement d'une cellule en charge à un faible régime de C/25. La Figure 2 présente l'OCP de l'électrode positive de LFP et de l'électrode négative de graphite dans ce cas de fonctionnement. La connaissance des profils de tension pour chacun des matériaux permet de reconstruire le profil de tension d'une cellule graphite-LFP 18650 neuve. La Figure 3(a) présente la reconstruction du profil de tension de la cellule à partir des profils de potentiel issus des mesures en pile bouton présentés sur la Figure 2. L'électrode négative en graphite en figure Figure 2 (a) a la particularité d'avoir une évolution du potentiel en plusieurs états successifs, dépendant du taux de lithiation de l'électrode. Elle se traduit dans l'OCP par une succession de plateau à différentes tensions se succédant au cours de la lithiation ou de la délithiation. Une variation de la tension apparaît à la transition entre chaque plateau. Les positions de ces transitions sont définies dans la littérature, chacun apparaissant à un état de lithiation spécifique [5]. Nous appellerons ces transitions les points caractéristiques. La position de ces points caractéristiques en fonction de l'état de charge de l'électrode est présentée sur la Figure 2(a). L'OCP de l'électrode positive en Figure 2(b) est comparable à celui de la littérature, plat et sans points caractéristique contrairement à l'électrode négative. Ce profil plat est directement lié aux propriétés de fonctionnement du matériau en deux phases [6]. Sans point caractéristique, le SoH de l'électrode positive ne peut être suivi par la méthode proposée.



**Figure 2 : Caractérisation de l'OCP des matériaux pour (a) l'électrode négative et (b) l'électrode positive. Caractérisation effectuée sur pile bouton CR2032, électrodes prélevées sur une cellule neuve 18650.**

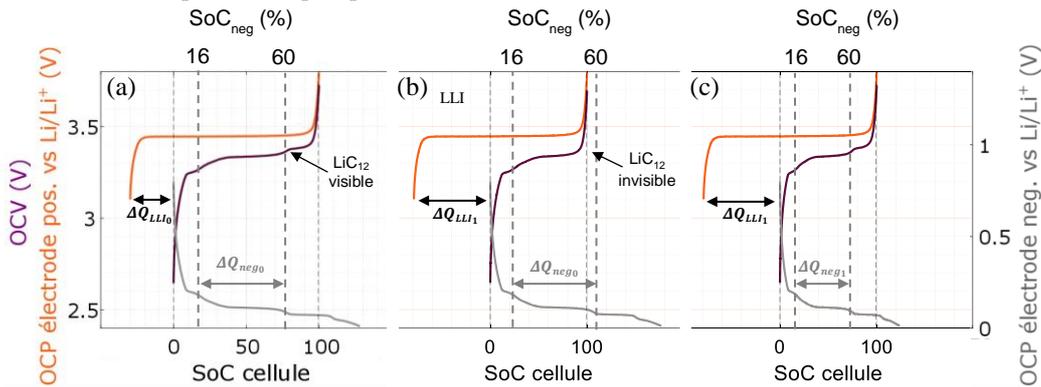
**Tableau 2. Valeurs de référence obtenues à partir de la caractérisation de l'électrode de graphite.**

État lithiation théorique	C	LiC <sub>54</sub>	LiC <sub>36</sub>	LiC <sub>18</sub>	LiC <sub>12</sub>
SoC <sub>neg</sub> [%]	0	10	16	30	60

Les valeurs de référence des points caractéristiques mesurées à C/25 à partir des essais en pile bouton CR2032 sont données dans le Tableau 2 selon les mesures de charge de l'électrode négative. Les valeurs sont exprimées en fonction de l'état de charge de l'électrode négative  $SoC_{neg}$  par l'équation (2) comme le rapport de la capacité chargée  $Q_{neg}(t)$  sur la capacité maximale disponible  $Q_{negmax}$  à un instant t donné.

$$SoC_{neg} = 100 * \frac{Q_{neg}(t)}{Q_{negmax}} \quad [\%] \quad (2)$$

La reconstruction du profil de tension de la cellule à partir des mesures précédentes est présentée sur la Figure 3(a). La reconstruction permet d'associer les points caractéristiques de l'électrode graphite au profil de tension (OCV) de la cellule complète. Ainsi, il est possible d'estimer la capacité de l'électrode à partir de mesures effectuées à C/25 sur une cellule complète grâce à la méthode présentée au paragraphe 2.3. La Figure 3(b) représente l'OCP des deux électrodes et l'OCV de la cellule dans le cas d'un vieillissement d'une cellule n'ayant subi qu'une perte de lithium cyclable (LLI). Dans ce cas, le décalage entre les OCP des deux électrodes augmente. La Figure 3(c) représente le cas d'un vieillissement combiné de perte de lithium cyclable (LLI) et de perte de matière active à l'électrode négative (LAM<sub>NE</sub>). Le décalage entre les OCP des deux électrodes augmente ( $\Delta Q_{LLI0} < \Delta Q_{LLI1}$ ) et la distance entre les points caractéristiques diminue ( $\Delta Q_{neg0} > \Delta Q_{neg1}$ ) [7]. Selon la nature du vieillissement, certains points caractéristiques sont susceptibles de ne plus être exploitables du fait de leurs disparitions de l'OCV de la cellule. Par exemple le point caractéristique LiC<sub>12</sub> disparaît sur la Figure 3(b) à cause d'un vieillissement par LLI trop importante.



**Figure 3 : OCP pour l'électrode LFP et l'électrode graphite avec OCV reconstruit pour une cellule dans le cas (a) d'une cellule complète neuve, (b) d'une cellule vieillie avec LLI et sans LAM<sub>NE</sub> et (c) d'une cellule vieillie avec LLI et LAM<sub>NE</sub>.**

### 2.3 Méthode d'estimation de l'état de santé de l'électrode négative

La détection de la position des points caractéristiques de l'électrode se fait par la méthode de la dérivation de la tension en fonction de la capacité (DVA) utilisée dans la littérature [8]. Cette méthode permet la détection des points caractéristiques de l'électrode négative à partir du profil de tension de la cellule. La solution d'estimation proposée consiste à détecter la capacité chargée entre les points caractéristiques issus de la caractérisation de la cellule. Connaissant deux points caractéristiques de l'électrode, a et b, nous pouvons définir la capacité chargée  $\Delta Q$  entre ces deux points caractéristiques par l'écart suivant :

$$\Delta Q_{neg} = |Q(LiC_a) - Q(LiC_b)| \quad [Ah] \quad (3)$$

L'estimation de la capacité de l'électrode se fait alors par recoupement de la capacité mesurée entre ces deux points caractéristiques de l'électrode et la variation du SoC entre ces deux points caractéristiques obtenus sur la Figure 2.

$$Q_{negmax} = \frac{\Delta Q_{neg}}{SoC_b - SoC_a} \quad [Ah] \quad (4)$$

L'état de santé de l'électrode négative exprimé par l'équation 5 se définit au cours du vieillissement comme le rapport de la capacité maximum estimé à un état de vieillissement donné  $Q_{negmax}$  par rapport à la capacité maximum estimée  $Q_{neg0}$  à l'état neuf.

$$SoH_{neg} = \frac{Q_{negmax}}{Q_{neg0}} \quad [\%] \quad (5)$$

Tableau 3. Méthodes d'estimation proposées.

Méthode d'estimation	$LiC_a$	$SoC_{neg a}$	$LiC_b$	$SoC_{neg b}$
Méthode 1	$C$	0	$LiC_{12}$	0,6
Méthode 2	$LiC_{54}$	0,1	$LiC_{12}$	0,6
Méthode 3	$LiC_{54}$	0,1	$LiC_{18}$	0,3
Méthode 4	$LiC_{36}$	0,16	$LiC_{18}$	0,3

Le Tableau 3 propose quatre estimateurs évaluant la capacité de l'électrode négative. Les estimateurs utilisent des combinaisons différentes de points caractéristiques. La position des points caractéristiques utilisés par chaque estimateur est donnée selon l'état de charge de l'électrode négative et présentée sur la Figure 2. Les valeurs de référence de  $SoC_{neg}$  pour les points caractéristiques sont rappelées dans le Tableau 2.

### 3. Résultats

Les résultats expérimentaux de l'évolution de l'état de santé des cellules 18650 en cours de vieillissement sont présentés sur la Figure 4. Pour toutes les cellules, le vieillissement constaté est plus rapide sur les premières centaines de cycles. La diminution du SoH à une forme comparable à une loi de type racine carré ou  $x^n$  avec  $n$  dans l'intervalle  $[0,1]$ , centré en 0,5 [8,9]. Cette loi de comportement n'est plus respectée au-delà de 1000 cycles. Les essais à 70% de DoD ont des dynamiques de vieillissement similaires. Seules les cellules en essai avec une profondeur de décharge de 100% (cellules 6, 7 et 8) observent un effondrement de leurs capacités après 700-1000 cycles d'utilisation selon l'échantillon.

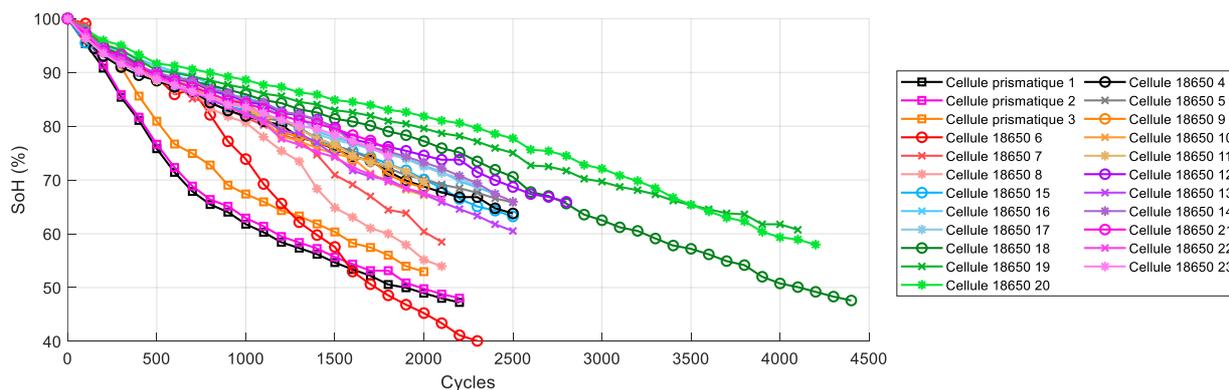


Figure 4 : Avancement des essais de vieillissement pour les cellules 18650.

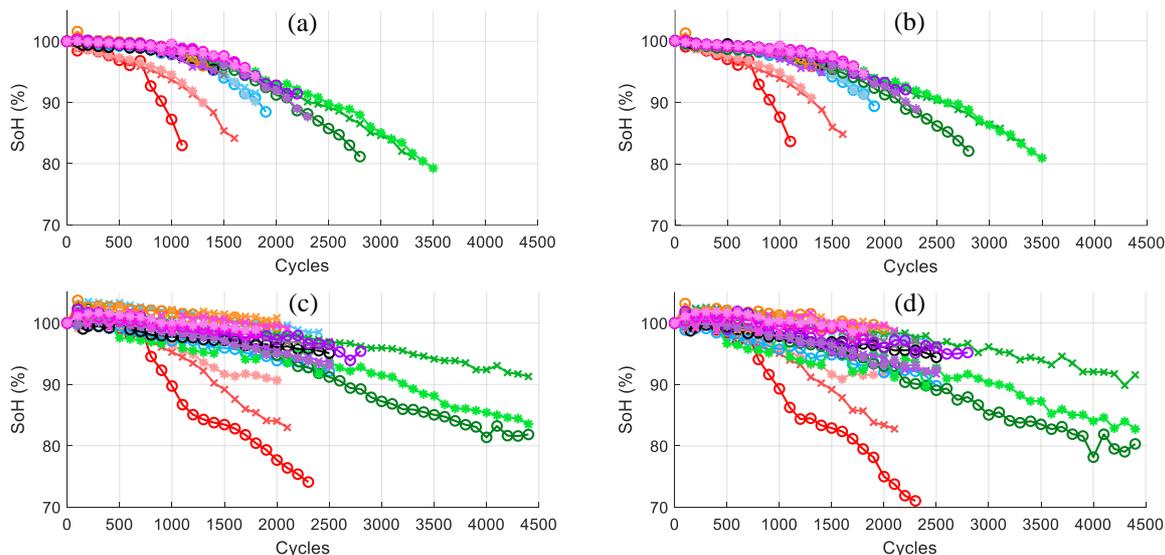


Figure 5 : Évaluation de l'état de santé de l'électrode négative en fonction du nombre de cycles pour les estimateurs 1 (a), 2 (b), 3 (c) et 4 (d).

Les résultats des quatre estimateurs sont présentés sur la Figure 5. Les estimateurs 1 et 2 sont rendus inutilisables après un certain nombre de cycles : entre 1000 et 3500 selon le cas de vieillissement. Ils ne sont exploitables que jusqu'à 90-80% de SoH (Figure 5(a) et Figure 5(b)). Cela s'explique par la sortie du point caractéristique LiC<sub>12</sub> de l'OCV expliqué au paragraphe 2.2 et illustré par la Figure 3(b). Les estimateurs 3 et 4 ne rencontrent pas ce problème du fait de l'utilisation de points caractéristiques situés à des états de charges plus faibles. Les indicateurs 1 et 2 permettent néanmoins de vérifier les résultats obtenus avec les estimateurs 3 et 4 sur leurs plages de fonctionnement.

Les estimations de SoH 1 et 2 ainsi que 3 et 4 diffèrent avec le vieillissement. Les estimateurs 1 et 2 indiquent un vieillissement plus rapide que les estimateurs 3 et 4 avant de ne plus être exploitables. La position des points caractéristiques de l'électrode négative par rapport à son état de charge (SoC<sub>neg</sub>) correspond à des états de lithiation constants. La proportionnalité des capacités chargées entre ces points doit être conservée. Or l'écart de variation du vieillissement entre les indicateurs 1-2 et 3-4 n'est pas cohérent avec cette hypothèse. Un changement de position des états de lithiation spécifiques du tableau 2 peut expliquer cet écart. Ce changement sera à étudier, l'évolution d'autres paramètres comme l'augmentation de la résistance au cours du vieillissement peut impacter la mesure du profil de tension. L'impact de la résistance à C/25 est à étudier. Par comparaison de l'évolution du vieillissement entre l'état de santé des cellules (Figure 4) et l'état de santé des électrodes négatives (Figure 5), nous montrons que l'évolution des SoH au cours du vieillissement est différente. Dans le cadre de nos essais, la superposition de ces deux phénomènes de vieillissement LLI et LAM<sub>NE</sub> entraîne une évolution de l'OCV de la cellule comparable à la Figure 3 (c).

## 4. Conclusion

La méthode d'estimation permet d'observer les dynamiques de vieillissement à l'électrode négative indépendamment du vieillissement de la cellule. Une différence dans la dynamique du vieillissement de la cellule par rapport à l'électrode négative est mesurée. La suite des travaux doit permettre l'identification d'une loi de fonctionnement prenant en compte les phénomènes impactant l'état de santé à plus long terme.

La méthode d'estimation montre un vieillissement de l'électrode négative qui s'accélère au cours de l'utilisation. La poursuite des travaux accentuera l'étude sur le lien entre l'impact du vieillissement de l'électrode négative et le vieillissement de la cellule. L'impact du vieillissement de l'électrode sur la cellule doit être étudié pour des états de vieillissement avancé, inférieur à 70% de SoH. Une fin des essais expérimentaux est prévue pour un état de santé compris entre 40% et 30% de l'état de santé initial des cellules. L'éligibilité d'une batterie en seconde vie ainsi que le temps de vie restant (RUL) dépend des phénomènes de vieillissement intervenants dans la cellule.

## Références

- [1] U.S. DOE, Energy Storage Grand Challenge: Energy Storage Market Report, (2020). [https://www.energy.gov/sites/prod/files/2020/12/f81/Energy Storage Grand Challenge Roadmap.pdf](https://www.energy.gov/sites/prod/files/2020/12/f81/Energy%20Storage%20Grand%20Challenge%20Roadmap.pdf).
- [2] E. Martinez-Laserna, E. Sarasketa-Zabala, I. Villarreal Sarria, D.I. Stroe, M. Swierczynski, A. Warnecke, J.M. Timmermans, S. Goutam, N. Omar, P. Rodriguez, Technical Viability of Battery Second Life: A Study from the Ageing Perspective, *IEEE Trans. Ind. Appl.* 54 (2018) 2703–2713. doi:10.1109/TIA.2018.2801262.
- [3] H. Quinard, E. Redondo-Iglesias, S. Pelissier, P. Venet, Fast Electrical Characterizations of High-Energy Second Life Lithium-Ion Batteries for Embedded and Stationary Applications, *Batteries*. 5 (2019) 33. doi:10.3390/batteries5010033.
- [4] Directive 2006/66/CE du Parlement Européen et du Conseil du 6 septembre 2006 relative aux piles et accumulateurs ainsi qu'aux déchets de piles et d'accumulateurs et abrogeant la directive 91/157/CEE, 2006.
- [5] R. Yazami, Y. Reynier, Thermodynamics and crystal structure anomalies in lithium-intercalated graphite, *J. Power Sources*. 153 (2006) 312–318. doi:10.1016/j.jpowsour.2005.05.087.
- [6] D. Li, H. Zhou, Two-phase transition of Li-intercalation compounds in Li-ion batteries, *Mater. Today*. 17 (2014) 451–463. doi:10.1016/j.mattod.2014.06.002.
- [7] C.R. Birkl, M.R. Roberts, E. McTurk, P.G. Bruce, D.A. Howey, Degradation diagnostics for lithium ion cells, *J. Power Sources*. 341 (2017) 373–386. doi:10.1016/j.jpowsour.2016.12.011.
- [8] L. Zheng, J. Zhu, D.D.C. Lu, G. Wang, T. He, Incremental capacity analysis and differential voltage analysis based state of charge and capacity estimation for lithium-ion batteries, *Energy*. 150 (2018) 759–769. doi:10.1016/j.energy.2018.03.023.
- [9] J. Wang, P. Liu, J. Hicks-Garner, E. Sherman, S. Soukiazian, M. Verbrugge, H. Tataria, J. Musser, P. Finamore, Cycle-life model for graphite-LiFePO<sub>4</sub> cells, *J. Power Sources*. 196 (2011) 3942–3948. doi:10.1016/j.jpowsour.2010.11.134.
- [10] E. Sarasketa-Zabala, I. Gandiaga, E. Martinez-Laserna, L.M. Rodriguez-Martinez, I. Villarreal, Cycle ageing analysis of a LiFePO<sub>4</sub>/graphite cell with dynamic model validations: Towards realistic lifetime predictions, *J. Power Sources*. 275 (2015) 573–587. doi:10.1016/j.jpowsour.2014.10.153.