Journal of Industrial Technology, Kangwon Natl. Univ., Korea, No. 43:1 (2023) 15~23
ISSN 1229-9588
eISSN 1598-1371
https://doi.org/10.22805/JIT.2023.43.1.015

리튬이온 배터리 방전 시 발열 특성 및 냉각 실험과 유한요소 해석

Thermal Characteristics and Cooling Experiments and Analysis of Finite Elements in the Discharge of Lithium-Ion Batteries

김석일[a], 강신유[b*]
Seokil Kim[a], Shin You Kang[b*]

[a] Department of Integrated Energy Infra System, Kangwon National University, Ph.D. Candidate, Kangwon Daehakgil 1 24341
[b] Mechatronics Engineering, Kangwon National University, Professor, Kangwon Daehakgil 1 24341

Received 17 November 2023; Revised 11 December 2023; Accepted 18 December 2023

Abstract

Lithium-ion batteries are predominantly employed in electric vehicles and energy storage devices, offering the advantage of high energy density. However, they are susceptible to efficiency degradation when operated at high temperatures due to their sensitivity to the external environment. In this study, we conducted experiments using an indirect cooling method to prevent thermal runaway and explosions in lithium-ion batteries. The results were validated by comparing them with heat transfer simulations conducted through a commercial finite element analysis program. The experiments included single-cell exothermic tests and cooling experiments on a battery pack with 10 cells connected in series, utilizing 21700 lithium-ion batteries. To block external temperature influences, the experimental environment featured an extrusion method insulation in the environmental chamber. The cooling system, suitable for indirect cooling, was constructed with copper tubes and pins. The heat transfer analysis began by presenting a single-cell heating model using commercial software, which was then employed to analyze the heating and cooling of the battery pack.

Keywords: Li-ion Battery, Heat Transfer, Cooling, Finite Element Analysis

1. 서 론

화석연료의 대규모 사용으로 인해 환경 문제가 더욱 심각해지고 있는데, 이에 대한 대안으로 신재생 에너지의 중요성이 부각되고 있다. 신재생 에너지는 기존의 화석 연료를 변환하여 활용하거나 재생 가능한 에너지원을 활용하는 것으로 나뉘며, 특히 풍력발전 및 태양광 발전과 같은 재생에너지 분야에서는 에너지 저장 시스템(ESS: Energy Storage System)과의 효율적인 연계가 강조되고 있다. ESS는 생산된 전기를 배터리와 같은 저장 장치에 보관하여 필요한 시점에 공급함으로써 전력의 효율적인 활용을 도모하는 장치이다. 그러나 리튬이온 배터리를 사용한 ESS는 2017년부터 2019년까지 23건의 화재 사고가 발생하며 화재의 위험성이 부각되었다. ESS 화재의 다양한 원인으로는 배터리 보호 시스템 미흡, 운영 환경 관리 부족, 설치 부주의, ESS 통합 제어 보호 시스템 미흡 등이 있다[1].

현재 ESS의 기본 단위인 Cell로 많이 사용되는 리튬이온 배터리는 배터리 내부의 전기적 및 화학적 반응에 의해 열이 발생한다. 또한 극한의 상황에서 운영하게 되면 열폭주 현상이 발생하여 화재 사고로 이어질 수 있는 위험성이 있다. 본 연구에서는 다양한 원인 중 배터리 보호 시스템 미흡으로 인한 배터리 발열의 냉각에 초점을 맞추어 실험 및 유한요소 해석을 통한 검증을 진행하였다. 실험은 배터리 셀의 방전 시 발열과 구리 핀(Fin)을 이용한 간접 냉각에 대한 실험을 수행하였고, 유한요소 해석은 열전달 해석과 냉각 해석을 진행하였다.

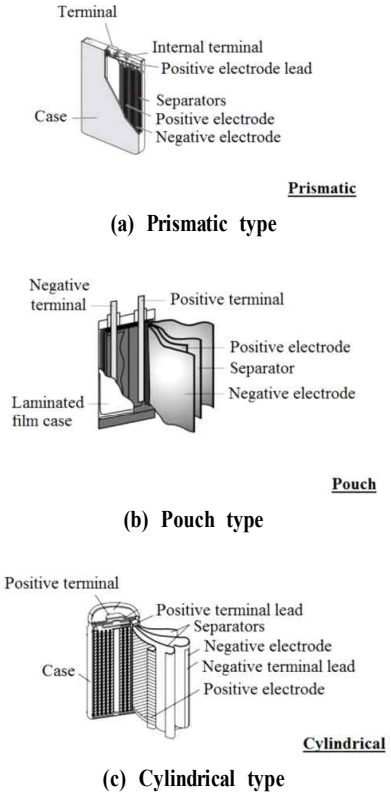
* Corresponding author. Tel.: +82-33-250-6373

E-mail address: sykang@kangwon.ac.kr (Shin You Kang).

2. 연구목적

2.1 리튬이온 배터리 종류

ESS의 기본 단위인 Cell은 Fig.1과 같이 형태에 따라서 크게 (a)각형, (b)파우치형, (c)원통형 3가지로 구분할 수 있다. 각형 리튬이온 배터리는 기계적 충격에 대한 내구성이 뛰어난 장점이 있다. 그러나 파우치형 셀에 비해 에너지 밀도가 낮고 고정된 디자인으로 설계 시 한계가 있다는 단점이 있다. 파우치형 리튬이온 배터리는 다른 형태의 셀에 비해 에너지 밀도가 높고 표면적이 넓어 열 방출이 용이하고 에너지를 안정적으로 출력할 수 있다. 그러나 단점으로 기계적 충격에 약하다. 원통형 리튬이온 배터리는 상대적으로 에너지 밀도가 낮아서 많은 수량이 필요하지만, 오랜 기간 사용하였기에 안정성이 검증되었고, 가격이 저렴해서 수급 문제가 적은 장점이 있다. 실험에서 사용되는 리튬이온 배터리는 Fig.2와 같이 원통형 리튬이온 배터리인 삼성의 SDI의 INR 21700-40T 제품을 사용하였고, 배터리의 특성은 Table 1과 같다.



(a) Prismatic type

(b) Pouch type

(c) Cylindrical type

Fig. 1 Lithium ion battery type[2]

Fig. 2 Samsung SDI 21700 lithium-ion battery

Table 1 21700 battery specification

	Specification
Model	INR 21700-40T
Rated Voltage	400 mAh
Rated Capacity	3.6 V
Maximum Charging Voltage	4.2 V

2.2 리튬이온 배터리의 발열

리튬이온 배터리에서 발생하는 열은 전기적인 상호작용으로 발생하는 비가역 열과 화학적 상호작용으로 발생하는 가역 열이 있다. Fig.3에서 보이듯 비가역 열과 가역 열의 총 합이 리튬이온 배터리에서 발생하는 총 열이 된다. 비가역 열은 줄 열(Joule Heating)로 전류에 의해서 도체 내에서 발생하는 열을 뜻하며, 이는 전류가 흐를 때 배터리 내부에서 이동하는 전자와 원자 이온의 상호작용으로 발생한다. 여기서 도체는 배터리를 의미한다. 이동하는 전자가 원자 이온과 충돌할 때 전자의 운동에너지는 감소하고 반대로 원자 이온의 에너지는 증가하게 되는데 이때 원자 이온의 증가한 에너지가 열로 나타나게 된다. 이 열을 비가역 열이라고 합니다. 비가역 열은 다음 식(1)과 같이 나타낼 수 있다.

$$\dot{Q} = I_{Cell}^2 R_i \tag{1}$$

가역 열은 화학적, 전기적 에너지가 배터리 내부에서 서로 변환될 때의 화학적 작용으로 발생하는 열이다. 충천 및 방전 과정이 일어날 때 배터리 내부 양극, 음극 화학적 반응식은 아래 식 (2), (3)과 같고 전체 화학 반응식은 식(4)와 같다.

양 극 :

$$LiCoO_2 \leftrightarrow \bigcirc CoCO_2 + Li^+ + e^- \tag{2}$$

음 극 :

$$Li^{+} + e^{-} + \bigcirc C_6 \leftrightarrow LiC_6 \quad (3)$$

전체반응 :

$$LiCoO_2 + \bigcirc C_6 \leftrightarrow LiC_6 + \bigcirc CoO_2 \quad (4)$$

(○: 리튬이온 공극)

깁스 자유 에너지(Gibbs Free Enrgy) 식(5)를 사용해서 배터리의 화학 반응의 전체 에너지 평형을 표현할 수 있다.

$$\triangle G = \triangle H - T\triangle S \quad (5)$$

$\triangle H$는 엔탈피 변화로 반응이 진행되는 동안 전기와 열로 변환되는 전체 에너지를 뜻한다. $\triangle S$는 엔트로피 변화로 온도와의 곱으로 표현하여 가역 반응열을 표현한다. $\triangle G$는 깁스 자유에너지의 변화로 일정한 온도와 압력이 유지된 상태에서의 화학 반응의 평형 조건을 알 수 있다. 위의 깁스 자유 에너지 식을 사용하여 가역반응열 $\dot{Q}_r$을 아래 식(6)과 같이 표현할 수 있다.

$$(\dot{Q}_r) = \frac{T_{Cell} I_{Cell} (\triangle V_{OC})}{\triangle T_{Cell}} \quad (6)$$

식 (6)의 변수의 의미는 다음과 같다.

$\dot{Q}_r$: 가역반응 열

T_{cell} : 배터리 온도

I_{cell} : 충전 및 방전 전류

V_{OC} : 개회로 전압(Open Circuit Voltage)를 의미하고 위의 식에서 배터리의 온도와 개회로 전압을 이용해 가역열을 예측할 수 있다[3].

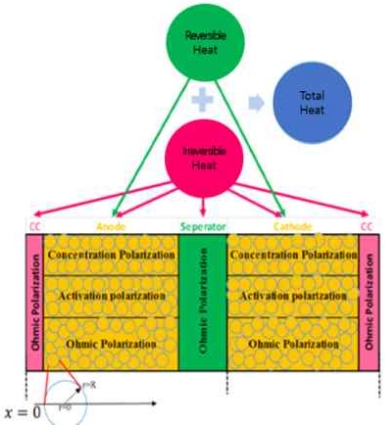


Fig. 3 Heat mechanism of lithium-ion battery[3]

2.3 냉각 방식의 종류

냉각 방식은 대상을 직접적, 간접적으로 냉각하는 방법과 냉각 유체의 종류에 따라 구분된다. Fig.4와 같이 냉각 대상을 직접 냉각 시키는 직접 냉각 방식과 냉각 대상에 연결된 장치를 통해 냉각하는 간접 냉각 방식으로 구분되며, 냉매의 상태에 따라 수랭식과 공랭식으로 나뉜다. 직접 냉각 방식은 냉각 대상의 특정 부분에 열이 집중되어 온도의 편차가 발생할 수 있는 단점이 있다[3]. 따라서 본 논문에서는 각 배터리의 온도 편차를 줄일 수 있는 방법인 냉각핀을 사용하는 간접 냉각 방식을 택하여 실험을 진행하였다.

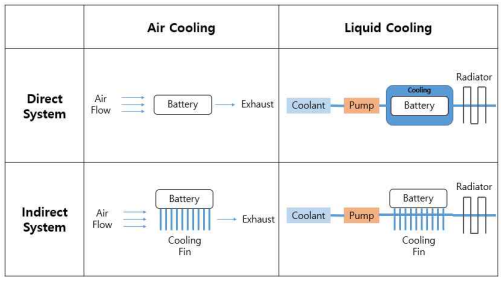
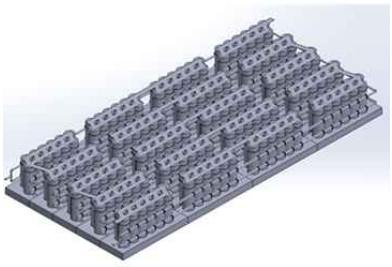


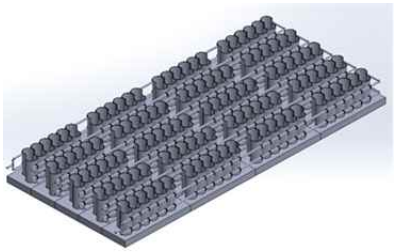
Fig. 4 Cooling System type

2.4 연구 목표

ESS 화재의 여러 원인 중에서 배터리 보호 시스템 미흡으로 인한 리튬이온 배터리의 열 폭주에 주목하여, Fig.5와 같이 구리 재질의 핀(Fin)과 관을 사용한 실험을 통해 원통형 리튬이온 배터리의 냉각 성능을 확인하고, 열전달 및 냉각에 대한 상용 유한요소해석 프로그램을 활용하여 실험과 해석의 데이터 비교 및 냉각 성능 확인을 목표로 하였다.



(a) Battery module



(b) Cooling system

Fig. 5 Battery cooling system

3. 리튬이온 배터리 방전 실험

실험에서는 대상 배터리를 다음 그림 Fig.6과 같이 시멘트 저항에 연결하여 배터리의 방전 동작을 모방하였다. 이를 위해 C-rate를 다양하게 설정하여 배터리가 발열하는 온도를 측정하였다. C-rate는 충·방전의 속도를 나타내는 단위로, C로 표시한다. 발열이 심하여 시멘트 저항을외부에 배치하여 환경 챔버 내부 온도 및 배터리의 발열에 미치는 영향을 최소화하였다. 방전 중에 발생하는 배터리의 온도는 배터리 표면에 부착된 열전쌍을 통해 데이터를 PC로 전송하였다.

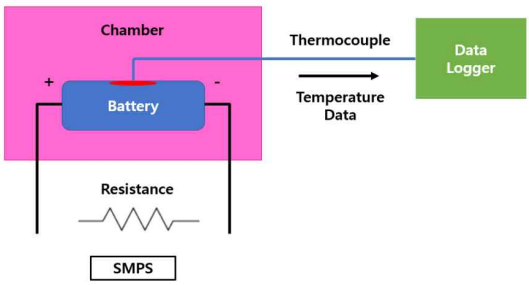


Fig. 6 Battery connection

3.1 리튬이온 배터리 1Cell 방전 시 발열 실험

Fig.7의 (a)에 표시된 빨간 점을 따라 배터리 표면에 T1, T2, T3의 열전쌍 3개를 부착하여 배터리의 온도를 측정하였고, 환경 챔버 내부 대기 온도를 측정하기 위해 추가로 1개의 열전쌍을 더 배치하여, 총 4개의 열전쌍를 사용하여 실험을 진행하였다. 실험 장치는 Fig.7 (b)과 같이 구성되었으며, 환경 챔버는 외부 온도에 덜 민감하도록 비교적 열전도율이 낮은 압출법 단열재를 사용하였다. 또한, 환경 챔버 내부 크기는 배터리 발열로 인한 내부 공기 온도 편차를 최소화하기 위해 Fig.7 (c)과 같이 제작되었다. 실험에서는 시멘트 저항을 이용하여 다양한 C-rate 조건에서 방전 실험을 진행하였다.

3.2 리튬이온 배터리 1Cell 발열 실험 결과

실험은 3개의 배터리를 활용하여 측정한 결과의 평균값을 사용하였다. Fig.8는 0.5C, 1C, 2C, 4C, 8C, 10C의 C-rate에서 측정한 온도의 변화를 시간에 따라 정리하여 종합한 그래프를 나타낸다. 측정된 온도는 배터리 표면의 다른 위치에서 측정된 T1, T2, T3의 평균값을 사용하였다. 각 C-rate에서의 최대 온도는 Table 2와 같습니다. C-rate가 증가함에 따라 배터리 표면의 최대 온도가 상승하고 최대 온도에 도달하는 시간이 감소하는 것을 확인할 수 있다. 각 C-rate에서의 발열량은 식(7)과 같이 계산되었고, 그 값은 Table 3에 나와 있습니다.

$$Q = Cm\triangle T \tag{7}$$

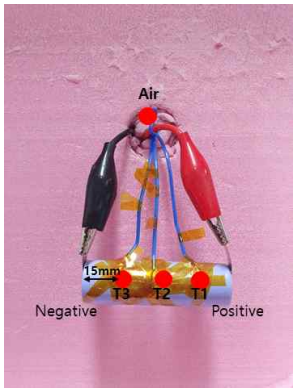
식(3)의 변수의 의미는 다음과 같다.

Q : 발열량[J]

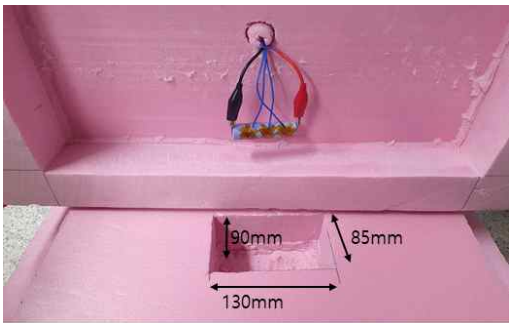
C : 비열(Specific Heat) [J/kg℃]

m : 질량 [kg]

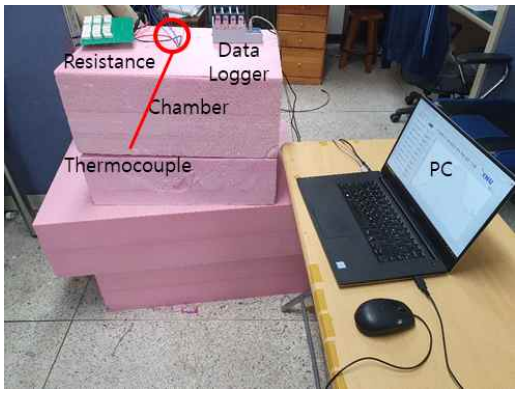
$\triangle T$: 온도 변화 [℃]



(a) Thermocouple connection on battery surface



(b) Chamber inner size



(c) Battery test configuration

Fig. 7 Battery Test system

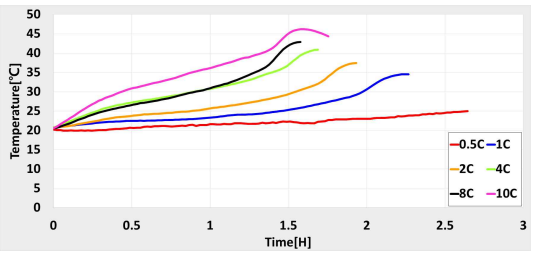


Fig. 8 Li-ion Battery temperature change combined

Table 2 Maximum temperature according to C-rate in 1cell test

C-rate	Maximum Temperature
0.5 C	30.59℃
1 C	34.56℃
2 C	37.46℃
4 C	40.79℃
8 C	42.91℃
10 C	46.21℃

Table 3 Amount of calorific value by C-rate in 1cell test

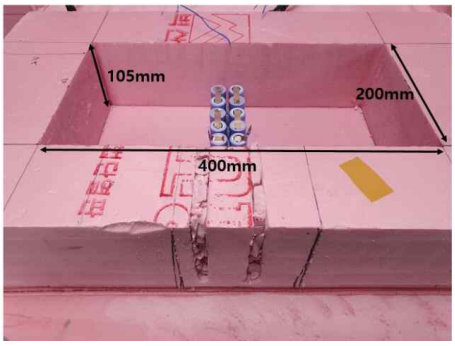
C-rate	Q (Calorific value)
0.5 C	641.49 J
1 C	853.87 J
2 C	1038.93 J
4 C	1246.35 J
8 C	1390.42 J
10 C	1591.44 J

3.3 리튬이온 배터리 10Cell 발전 시 발열 실험

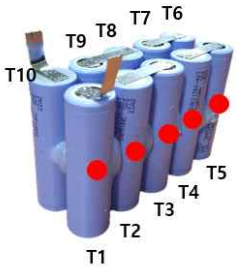
10개의 배터리 실험 방법 및 실험 장치의 구성은 Fig.7과 동일하지만, 대상 배터리의 개수가 증가하여 환경챔버와 챔버 내부 공간을 크게 설계하였다. 챔버 내부의 크기는 Fig.9 (a)과 같습니다. 이전 1개의 배터리 발열 실험에서 표면에 부착한 3개의 열전쌍에서 측정된 온도의 값은 비슷한 결과를 보여주었습니다. 따라서 10개 배터리의 발열 실험에서는 Fig.9 (b)에서 표시된 각 배터리 표면의 중앙 부분에 1개의 열전쌍을 부착하여 실험을 진행하였습니다. 시멘트 저항은 9 Ω의 저항으로 2 C의 C-rate에서 실험을 진행하였다.

3.4 리튬이온 배터리 10Cell 발열 실험 결과

Fig.10 (a)는 직렬 연결된 10개 배터리의 2 C C-rate에서의 발열 실험 결과를 나타낸다. Fig.10 (a)에서 모든 배터리에서의 최고온도는 T2 그래프에서 약 0.9 H 지점에서 59.3℃가 측정되었으며, 그 이후에는 온도가 완만하게 감소하는 모습을 보여준다. Fig.10 (b)은 측정한 10개의 데이터의 평균을 나타내는 그래프이며, 이를 통해 식(7)을 사용하여 계산된 평균 발열량은 2517.53 J임을 확인할 수 있다.

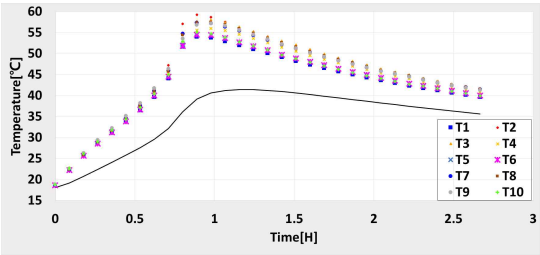


(a) 10 Cell chamber inner size

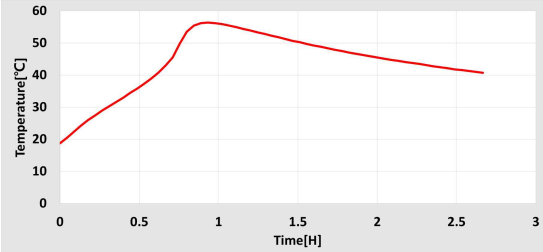


(b) 10 Cell thermocouple connection point

Fig. 9 10 Cell heating test



(a) 10 Cell 2 C heating test temperature (Each battery)



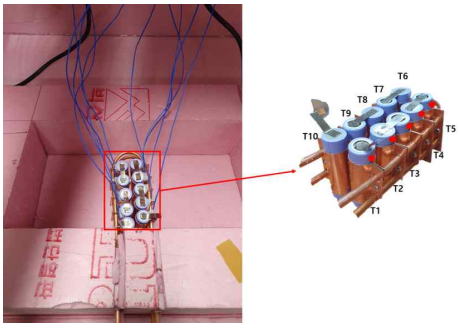
(b) 10 Cell 2 C heating test avergae temperature

Fig. 10 10Cell 2 C heating test result

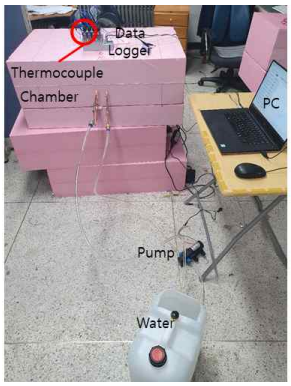
3.5 리튬이온 배터리 냉각 실험

각 배터리의 온도 편차를 최소화하기 위해 간접 냉각 방식을 선택했다. Fig.11 (a)와 같은 구조를 사용하며, 냉각수를 흘려보내기 위해 구리 핀을 관통하는 구리 관을 사용하여 대상을 냉각한다. 이 구리 핀은 두께가 0.5 mm이며, 구리 관의 외경은 6.35 mm, 내경은 4.5 mm이다. 실험 장치는 10개 Cell의 발열 실험에 사용된 챔버와 동일한 챔버를 활용하였으며, 열전쌍은 직접적으로 냉각되는 구리판의 온도를 측정하지 않도록 Fig.11 (b)에서 표시된 부분에 부착하여 실험을 수행했다. Fig.11 (c)에서 보이듯, 구리 관은 환경 챔버 외부에서부터 내부로 10개의 배터리를 지나 다시 환경 챔버 외부로 나올 수 있도록 설계되었다. 냉각 실험은 발열 실험과 동일하게 2 C의 C-rate에서 진행되었으며, 충분한 양의 물을 사용하여 온도 변화를 최소화하고 물의 온도는 17 ℃로 유지되었다.

(a) Cooling fin and heat pipe



(b) Cooling system thermocouple connection

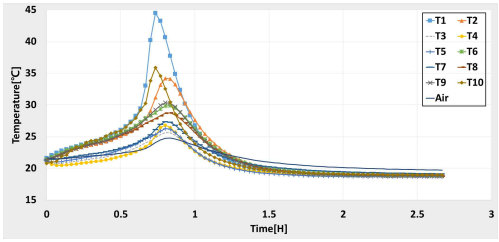


(c) Cooling test configuration

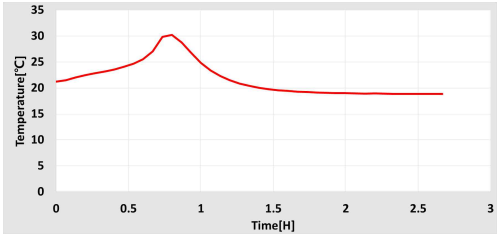
Fig. 11 10Cell 2C cooling test system

3.6 리튬이온 배터리 냉각 실험 결과

Fig.12 (a)는 배터리 10개의 간접 냉각 실험 결과를 나타내고 있다. 약 0.7~0.8 H 지점에서 각 배터리의 최고 온도가 표시되었다. T10인 배터리에서는 약 0.7 H 지점에서 최고 온도로 44.5℃가 측정되었습니다. Fig.12 (b)는 이 10개 데이터의 평균을 보여준다. 냉각 장치 없이 실험한 결과의 평균 발열량은 2517.53 J 이며, 냉각 실험에서 측정한 온도의 평균 발열량은 641 J이다. 구성된 냉각 시스템에서 냉각된 열량은 1876.53J 이다.



(a) Cooling test result (Each cell)



(b) Cooling test result (Average value)

Fig. 12 10Cell 2 C cooling test result

4. 유한요소 해석

4.1 리튬이온 배터리 열전달 해석

21700 리튬이온 배터리는 다수의 얇은 박판으로 이루어져 있다. 본 논문에서는 각각의 박판에 대한 모델링을 하지 않고 Fig.13와 같이 단일 재질로 단순화하여 열전달 해석에 사용하였다[4]. 배터리의 단순화한 물성치는 Table 4와 같다. 또한 핀의 냉각 성능을 확인하기 위해 배터리의 전체 모델을 발열체로 지정하는 것이 아닌 배터리 내부의 심을 발열체로 지정하여 Fig.14 (a)과 같이 내부부터 배터리의 표면까지의 방향으로 열전도가 이루어질 수 있도록 했다. 배터리 내부의 열 유속을 구하기 위해 발열체 심에 임의의 온도 40℃를 지정하여 열 유속 식(8)과 같이 계산한 결과와 비교하였다. Fig.14 (b)에서 반지름 방향 평균 열 유속으로 계산한 열 유속은 341 W/m^2이고 발열체인 심과 배터리 표면의 온도 차이로 계산한 열 유속은 332 W/m^2로 오차는 2.7%이다. 따라서 발열체인 심의 온도는 외부 온도와 내부 온도의 차이인 1.76℃를 실험에서 측정된 온도에 더하여 내부 심에 입력하였다.

$$\ddot{q} = k \triangle T / L \tag{8}$$

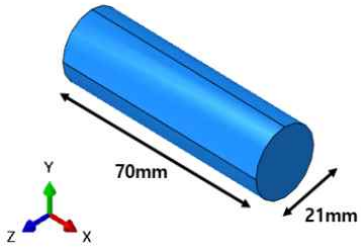
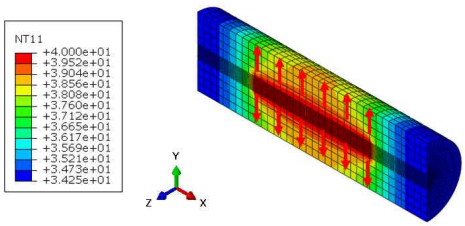


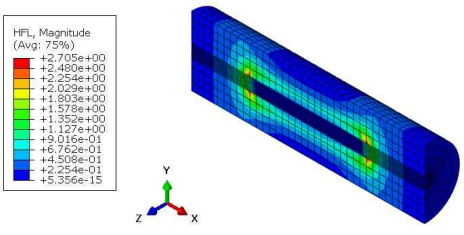
Fig. 13 21700 Battery FEM model

Table 4 21700 Lithium-ion battery material

Density	2.68E-15 kg/m^3
Conductivity	x=z=1.6 W/m℃
	y=3 W/m℃
Heat specific	900 kJ/kg℃



(a) Heat transfer in battery

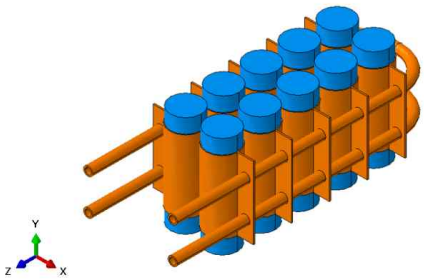


(b) Heat flux in battery

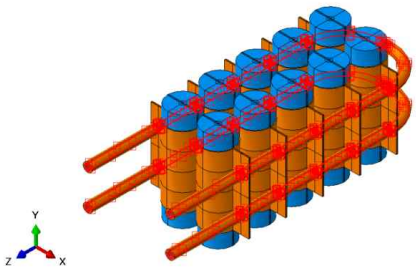
Fig. 14 1Cell heat transfer analysis model

4.2 10Cell 냉각 해석

Fig.15 (a)는 냉각 해석에 사용한 모델이다. 이 모델은 Fig.13의 모델에 Fig.12 (b)의 온도 값을 사용하여 유한요소해석을 진행하였다. 추가로 배터리와 배터리의 표면을 감싸는 냉각핀과 구리관이 연결되어 있고, 구리의 물성치는 Table 5와 같다. 냉각은 Fig.15 (b)에서 빨간색으로 표시된 구리관의 내부 표면을 Heat sink로 지정하고 대류 열전달 계수 값을 입력하였다. 실험은 펌프를 사용하여 물을 구리관 내부로 흘려보내기 때문에 이는 액체의 강제 대류로 볼 수 있다. 따라서 대류 열 전달 계수는 Table 6의 Forced convection of fluid의 값을 사용하였다[5].



(a) 10Cell cooling analysis model with cooling system



(b) Hilight heat sink

Fig. 15 10Cell cooling analysis model with cooling system

Table 5 Cooper material property

Density	8.94E+3 kg/m^3
Conductivity	400 W/m℃
Heat specific	38.5 J/kg℃

Table 6 Typical convective heat transfer coefficients[5]

Process	h W/m^2K
Free convection of gas	2~25
Free convection of fluid	50~1,000
Forced convection of gas	25~250
Forced convection of fluid	100~6,000
Boiling or condensation	2,500~100,000

4.3 10Cell 냉각 해석 결과

Fig.16 에 표시된 부분은 냉각 실험 시 열전쌍을 부착한 점으로, 해당 부분의 온도를 측정하여 냉각 실험을 검증하였다. Fig.17(a) 각 해석을 수행했을 때 나타나는 결과를 보여준다. 그리고 Fig.17은 실제 실험한 값과 해석한 값을 비교한 그래프를 제시한다. 각 그래프를 비교했을 때, 그래프의 거동은 상당히 유사한 결과를 보여준다. 실제 냉각 실험에서의 최대 온도는 30.36℃이며, 냉각 해석에서의 최대 온도는 30.76℃이다.

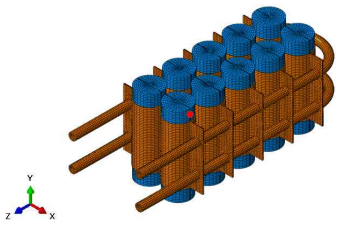
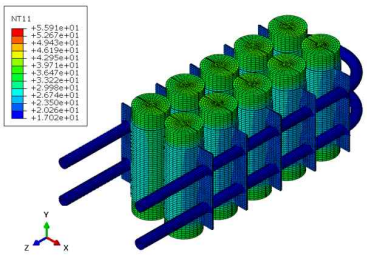
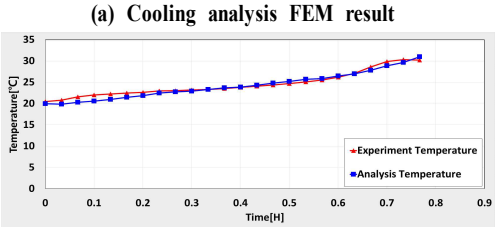


Fig. 16 Cooling test measurement point



(a) Cooling analysis FEM result



(b) Cooling analysis temperature result

Fig. 17 Cooling analysis result

5. 결과

본 연구에서는 21700 리튬이온 배터리의 방전 시 발열 특성을 실험적으로 측정하고, 간접 냉각 방식의 냉각 실험을 수행하였다. 실험 데이터를 기반으로 유한요소 해석을 수행하고, 실험값과 해석값을 비교하였다.

1개 배터리의 방전 시 발열 실험 결과를 비교한 결과, C-rate가 증가함에 따라 최대 발열 온도도 상승하는 경향을 보였습니다.

그러나 4 C와 8 C에서는 최대 온도의 차이가 있지만 최대 온도에 도달하기 전까지의 온도 차이는 거의 없는 것으로 나타났다. 또한 열전쌍를 부착한 배터리 표면의 3개 지점에서의 온도는 유의미한 차이를 보여주지 않았다.

배터리 10개의 발열 실험은 직렬 연결된 배터리를 사용하여 실험을 진행하였고, 2 C의 C-rate 부하를 주었다. 10개의 배터리 실험과 1개의 배터리 실험을 비교한 결과, 최대 온도는 1개 배터리 실험에서 46.2℃, 10개 배터리 실험에서는 59.3℃, 최대 온도에 도달하는 시간은 약 1시간의 차이를 보여주었다. 냉각 실험은 직렬 연결된 10개의 배터리를 2 C의 C-rate 조건에서 수행되었고, 간접 냉각 방식의 실험에서 냉각된 발열량은 1876.53 J이다.

본 논문의 유한요소 해석 목표는 냉각 조건에서의 배터리 표면 온도로 설정되었습니다. 배터리 모델 전체를 발열체로 지정하는 것이 아닌 배터리 내부에 발열체를 배치하여 배터리 표면까지의 열전달이 이루어지도록 하였습니다. 실험값과 해석값을 비교한 결과, 두 값은 비슷한 결과를 보여주어 해석 방법으로 제시될 수 있다고 판단 되었다.

향후 연구 계획으로 더 많은 배터리 팩에 대한 발열 특성 실험과 더불어 ESS의 전체 시스템에 대한 냉각 실험을 수행하는 것이 목표이다.

References

[1] Korea Energy Agency, 2008, 2008 Understanding of New and Renewable Energy, Korea Energy Agency.

[2] Wang Q. et. al, 2016, A critical review of thermal management models and solutions of lithium-ion battery and solutions of lithium-ion batteries for the development of pure electric vehicles, Renewable and sustainable Energy Reviews. Volume 64, pp.106-128.

[3] RoddM. Bandhauer, Srinivas Garimella, Thomas F. Fuller, 2011, A Critical Review of Thermal lssues in Litium-Ion Batteries, Journal of The Electrochemical Society(Volume 158, pp.R1-R25), USA.

[4] ZHENPO WANG, Jun Ma, Lei Zhang, 2017, Finite Element Thermal Model and Simulation for a Cylindrical Li-Ion Battery, Institute of Electrical and Electronics Engineerings(USA).

[5] Frank P. Incropera, 2014, Principles of Heat and Mass Transfer. Table 1.1, Wiley, New York.