

# 수소전기차 연료전지 수명 향상을 위한 부하 변동 제거 및 스택 내구성 실험

이동원<sup>1,2</sup> · 김범준<sup>1†</sup> · 이승로<sup>2</sup>

<sup>1</sup>한국에너지기술연구원 연료전지실증연구센터, <sup>2</sup>전북대학교 대학원 기계공학과

## Load Variation Removal and Stack Durability Experiments to Improve Lifetime of Fuel Cell Stack for Hydrogen Electric Vehicles

DONGWON LEE<sup>1,2</sup>, BEOMJUN KIM<sup>1†</sup>, SEOUNGRO LEE<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Fuel Cell Research & Demonstration Center, Korea Institute of Energy Research, 20-41 Sinjaesaengeneoji-ro, Haseo-myeon, Buan 56332, Korea

<sup>2</sup>Department of Mechanical Engineering, Jeonbuk National University Graduate School, 567 Baekje-daero, Deokjin-gu, Jeonju 54896, Korea

†Corresponding author :  
kbj@kier.re.kr

Received 13 June, 2024

Revised 28 June, 2024

Accepted 25 July, 2024

**Abstract >>** Load variations reduce the lifespan of polymer electrolyte fuel cells (PEFCs). To analyze the impact of load variations on durability of PEFCs, two stacks were built and operated continuously for 400 hours, one under load variations and the other under constant current condition with the same energy output. Using the example model provided by Mathworks, we obtained load variation data for the experiments. The performance curves were measured every 100 hours and analyzed by current interruption method and electrochemical impedance spectroscopy. The degradation comparison shows a much larger decrease in performance under the load variation. The activation resistance, electrical resistance, and mass transfer resistance are all found to increase more.

**Key words :** Polymer electrolyte fuel cells(고분자 연료전지), Load variation(부하 변동), Durability(내구성), Operation strategy(운전 전략), Fuel cell electric vehicles(수소전기차)

## 1. 서론

기후 변화 위기 속 이산화탄소 배출 감소를 위한 노력이 전 세계적으로 진행되고 있다. 운송 분야의 이산화탄소 배출량은 전체의 22.4%에 달한다<sup>1,2</sup>. 이러한 이유로 기존 내연기관 자동차를 대체하기 위한 친환경 자동차인 전기차와 수소전기차의 개발과 보

급이 확대되고 있다. 그러나 수소전기차의 시장 확대를 위해서는 연료전지 내구성 문제와 연료전지 가격 등을 해결하여야 한다<sup>3</sup>.

수소전기차는 고분자 연료전지 스택으로 전기를 생산하여 전동 모터로 구동한다. 수소전기차의 내구성 향상을 위해 고분자 연료전지 스택의 수명이 승용차의 경우 8,000시간 이상, 상용차의 경우 30,000시

간 이상 확보되어야 한다<sup>4)</sup>.

과도한 부하 변동은 연료전지 스택 열화의 주요 원인이다. 연료전지 수명 향상을 위해서 부하 변동을 최소화할 수 있는 운전 전략이 필요하다.

수소전기차의 파워트레인에는 크게 수소 연료전지 시스템과 배터리 시스템으로 구성되어 있으며 이 두 가지 시스템의 연계 및 부하 분배에 대한 이해가 필요하다. 이를 위해 본 연구에서는 Matlab/Simulink (MathWorks, Natick, MA, USA)에서 제공하는 수소전기차 모델을 활용하여 US06 운전 사이클을 입력하였을 때 연료전지 스택의 부하 변동을 구하였다. 활성화 면적  $200 \text{ cm}^2$ 인 셀 5장의 연료전지 스택 2개를 제작하여 부하 변동 운전 사이클과 부하 변동을 제거한 운전 사이클을 적용하여 400시간 장기 내구성 운전을 하였다. 그리고 100시간마다 성능 곡선을 측정하고 종료 후 전류차단법, 전기 임피던스 분광법으로 스택 열화를 분석하였다.

## 2. 시뮬레이션

### 2.1 Matlab/Simulink 모델

수소전기차의 실제 주행 조건에서 부하 변동(스택 전류 변화) 데이터를 얻기 위하여 Matlab /Simulink의 수소전기차 예제 모델을 활용하여 연료전지 스택 부하 변동 및 사이클에 따른 실제 속도 등을 시뮬레이션하였다. 예제의 수소전기차 모델은 Fig. 1과 같이 운전 사이클, 운전자 모델, 컨트롤러, 차량 본체 부분으로 구성된다. 수소전기차 모델에 사용된 특성 값은 Table 1과 같다. 이 모델에 운전 사이클을 입력하면 스택 전류 변화 등 시스템의 출력과 에너지 결과값을 얻을 수 있다<sup>5)</sup>.

#### 2.1.1 운전 사이클

Federal test procedure-75 (FTP-75) 운전 사이클은 미국 환경보호국(United States Environmental Protection Agency, EPA)에서 자동차 배기가스 배출량과 연비를 측정하기 위해 사용한다. 이 방법은 고속도로와

도시 주행 등 다양한 운전 조건과 약 120 km의 거리를 주행하는 시뮬레이션을 기반으로 한다. FTP-75는 총 11분 30초로 구성되어 있다.

EPA에서 FTP-75와 달리 고속 주행, 급가속 및 급감속 상황을 반영하여 만든 운전 사이클이 Fig. 2와 같은 US06이며 FTP-75와 함께 자동차의 연비 및 배출가스를 측정하는 데 사용된다. US06은 FTP-75보다 더 높은 속도와 가속도를 가지며 휴식 기간이 짧다. 총 주행 시간은 약 10분으로 이 동안에 자동차는 약 129 km/h까지 가속하고 중간에 0 km/h에서 약 97 km/h까지 빠르게 가속하거나 감속한다<sup>6)</sup>.

참고로 국내에서는 공인 연비 측정을 위해 도심(FTP-75), 고속도로 모드(highway fuel economy driving schedule, HWFET) 주행을 통한 측정 연비 분석 후 5사이클 보정식을 적용한다. 여기서 5사이클은 FTP-75, HWFET, US06 (고속 주행, 급가속 및 급감

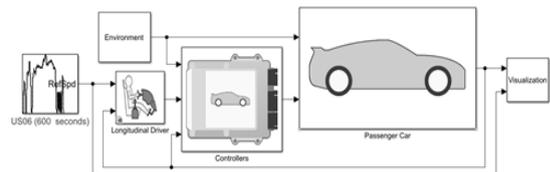


Fig. 1. FCEV powertrain configuration<sup>5)</sup>

Table 1. Vehicle specification<sup>5)</sup>

Battery maximum power	110 kW
Battery capacity	5.3 Ah
Fuel cell power	128 kW
Maximum torque	335 Nm
Number of cells in stack	400
Cell area	$280 \text{ cm}^2$
Membrane thickness	$125 \mu\text{m}$
GDL thickness	$250 \mu\text{m}$
Exchange current density	$0.1 \text{ mA/cm}^2$
Maximum current density	$1.4 \text{ A/cm}^2$
Charge transfer coefficient	0.7
Water vapor diffusivity in GDL	$0.07 \text{ cm}^2/\text{s}$
Density of dry membrane	$2,000 \text{ kg/m}^3$
Equivalent weight of dry membrane	$1.1 \text{ kg/mol}$

속 상황), SC03 (에어컨 가동 후 주행), cold FTP-75 (영하 7°C에서 시내 주행)를 말한다<sup>7)</sup>.

본 연구에서는 부하 변동이 연료전지 스택의 내구성에 미치는 영향을 보다 뚜렷하게 보기 위해 고속 주행, 급가속 및 급감속 운전 사이클인 US06을 부하 변동 운전에 적용하고자 하였다. 그리고 US06 운전에서 연료전지 스택의 전류 데이터를 확보하기 위해 시뮬레이션을 수행하였다.

### 2.1.2 시뮬레이션 결과

US06 운전 사이클에서 연료전지 스택의 전류 변화는 Fig. 3과 같다. 차량의 평균 출력은 14.765 kW, 최대 출력은 87.169 kW이다. 배터리에서 최대한 부

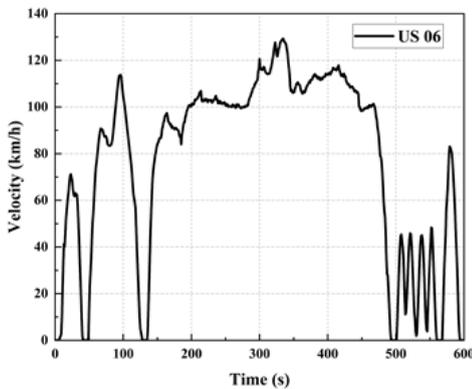


Fig. 2. US06 driving cycle<sup>6)</sup>

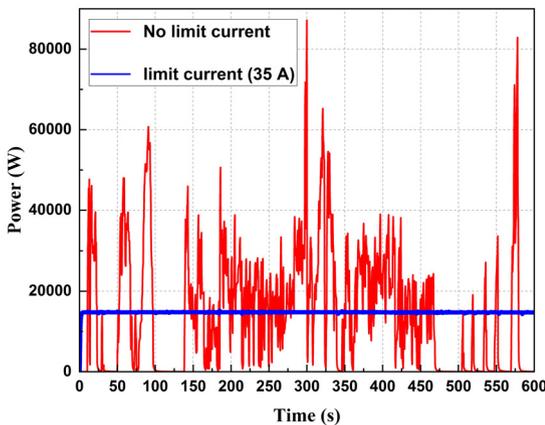


Fig. 3. Stack current change at US06 driving cycle

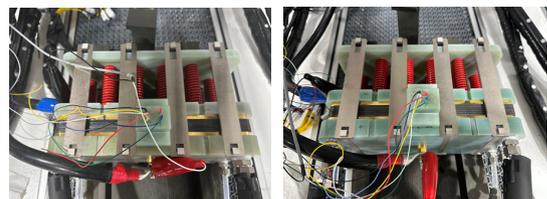
하 변동을 감당하도록 운전 전략을 설계할 경우 연료전지 스택의 수명을 늘릴 수 있다. 본 연구에서는 배터리가 모든 부하 변동을 담당하는 이상적인 경우를 가정하여 부하 변동 운전과 같은 에너지 발전량을 시간 평균으로 할 때 평균 출력에서의 스택전류를 35 A를 대조 실험 조건으로 하여 부하 변동 운전과 정전류(고정 부하) 운전을 비교하였다. 부하 변동의 경우와 정전류의 경우 2가지에 대해 스택 2개를 제작하여 400시간 내구성 실험을 진행하였다.

## 3. 실험

시뮬레이션에서 얻은 스택의 부하 변동 운전 데이터와 정전류 운전 데이터를 스택에 적용하여 부하를 가했을 때 열화를 비교하기 위한 실험에 사용될 2개의 스택을 Fig. 4와 같이 제작하였다. 스택 1은 부하 변동 운전에서 사용하고 스택 2는 고정 부하 운전에서 사용한다. 스택은 5장의 cell로 이루어져 있으며 활성화 면적은 200 cm<sup>2</sup>이다. 장기 내구성 실험의 실험 조건은 수소극, 공기극의 온도 65°C, 화학양론비(stoichiometry ratio, SR) 1.5이며 냉각수의 온도는 65°C, 유량 4 Lpm으로 설정한다.

실험 과정은 초기 연료전지 활성화 과정, polarization curve (IV curve) 측정, 400시간 연속 운전, 100시간마다 가역 회복 과정, 성능 측정, 연속 운전 종료 후 성능 시험, 전류차단법, 전기화학 시험이다.

연료전지의 성능을 보기 위한 polarization curve는 정전류 모드(constant current mode, CC mode)로 측정하였다. 전류 120 A (전류밀도 0.6 A/cm<sup>2</sup>)에서 20분 유지, 개회로전압 상태로 1분 유지, anode 수소 및



(a) Stack no. 1 (b) Stack no. 2  
Fig. 4. Polymer electrolyte fuel cell stacks

cathode 질소 환경에서 무부하 상태로 1분 유지, 전류 증가 단계(20, 40, 60, 90, 120, 160, 200, 240 A) 각 3분 유지, 전류 감소 단계(200, 160, 120, 90, 60, 40, 20 A) 각 3분 유지, 질소 공급 종료 운전 10분 유지 순서로 측정한다.

활성화 및 polarization curve 측정에는 Fig. 5의 1 kW급 평가 스테이션(P&P Energytech, Daejeon, Korea)을 사용하였으며 전기 부하 장치는 PLZ1004 (KIKUSUI, Yokohama, Japan)를 사용하였다. 전류차단법 측정에는 Wavesurfer 3024z Oscilloscope (Teledyne LeCroy, Chestnut Ridge, NY, USA)를 사용하였으며 전기화학 임피던스 분석법은 HCP-803 (BioLogic, Seyssinet-Pariset, France)을 사용하였다.

## 4. 결과 및 고찰

### 4.1 전류-전압 성능 곡선

400시간 연속 운전 시 스택의 성능 변화를 100시간 주기로 비교했을 때 결과는 Figs. 6, 7과 같다. 부하 변동 운전을 한 1번 스택이 초기 240 A에서 셀 평균 전압이 약 0.5 V였다. 그러나 부하 변동 운전에 의해 스택 열화가 진행되며 100시간부터 약 0.45 V 까지 성능이 하락하였으며 400시간이 지나서 약 0.4 V 까지 하락해 400시간 동안 약 20%의 성능 하락을 보인다. 전류밀도 1 A/cm<sup>2</sup> (전류 200 A)에서 400시간

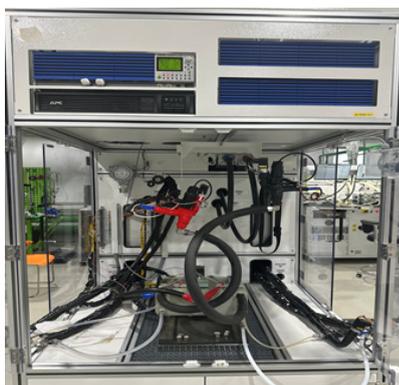


Fig. 5. Fuel cell test station

경과 후 성능은 16.52% 감소하였다. 반면 2번 스택은 처음 상태일 때 240 A에서 셀 평균 전압이 약 0.5 V로 1번 스택의 성능과 비슷했지만 정전류 운전을 거쳐 400시간이 지났을 때 성능이 거의 유지되었다. 전류밀도 1 A/cm<sup>2</sup>에서 400시간 경과 후 성능은 1.35% 감소하였다. 따라서 부하 변동 운전이 정전류 운전보다 스택의 열화를 가속시킨다는 것을 알 수 있다.

### 4.2 전류차단법

부하 변동 운전과 정전류 운전을 하였을 때 스택 열화를 비교하기 위해 오실로스코프를 사용하여 전류차단법으로 전압 변화를 측정하였다. 저항전압 손

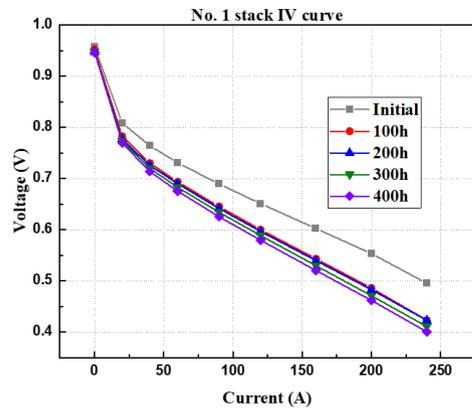


Fig. 6. Current-voltage curves of stack no. 1

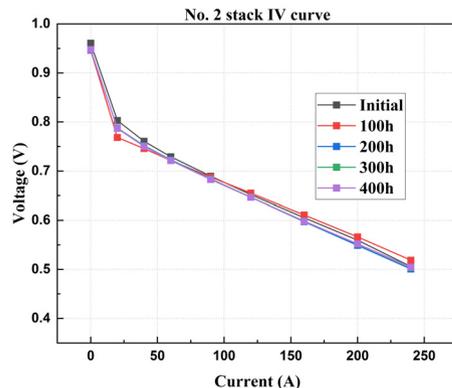


Fig. 7. Current-voltage curves of stack no. 2

실은 전류 차단 즉시 변하는 전압값이고 이를 다음의 식과 같이 전류로 나누면 저항값을 알 수 있다.

$$R_{ohm} = \frac{\eta_{ohm}}{I} \quad (1)$$

여기서  $R_{ohm}$ 은 저항 손실 저항(high-frequency resistance, HFR),  $\eta_{ohm}$ 은 전기저항 전압 손실,  $I$ 는 전류이다<sup>8)</sup>.

전류차단법 실험 결과는 Figs. 8, 9와 같다. 전류밀도 0.4 A/cm<sup>2</sup>에서 부하 변동을 적용한 1번 스택의 경우 전기저항 전압 손실은 0.317 V, 전기저항은 3.96 mΩ이다. 정전류 운전을 적용한 2번 스택은 전류밀

도 0.4 A/cm<sup>2</sup>에서 전기저항 전압 손실은 0.183 V, 전기저항은 2.29 mΩ이다. 부하 변동 운전이 정전류 운전에 비해 400시간 후 전기저항을 1.67 mΩ 더 증가시키는 것을 알 수 있다. 부하 변동 스택의 전기저항이 높아지는 것은 전해질막과 이오노머의 숯숯산기가 래디컬의 공격으로 침출되어 이온전도도가 낮아지기 때문인 것으로 추정된다.

### 4.3 전기화학 임피던스 분광법

열화 요인 분석을 위해 전기화학 임피던스 분광법을 전류밀도 0.1 A/cm<sup>2</sup>, 0.2 A/cm<sup>2</sup>, 0.4 A/cm<sup>2</sup>에서 HCP-803으로 측정하였다. 전기화학 임피던스 분석을 실시한 결과는 Figs. 10, 11과 같다.

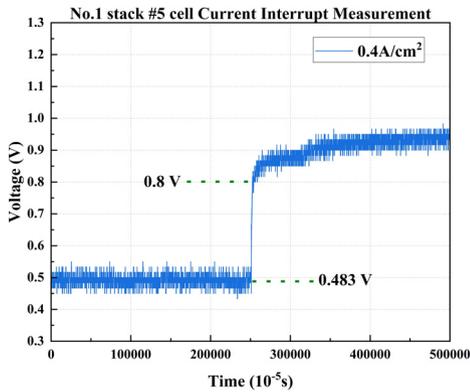


Fig. 8. Current interrupt of stack no. 1

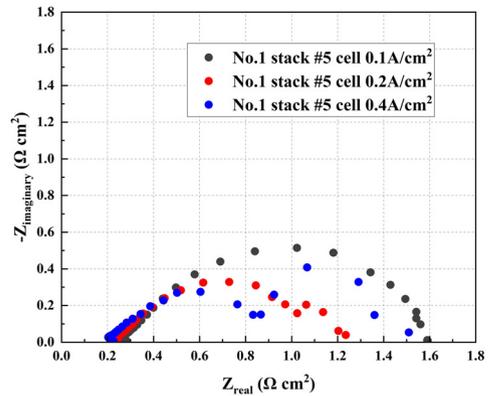


Fig. 10. EIS of stack no. 1

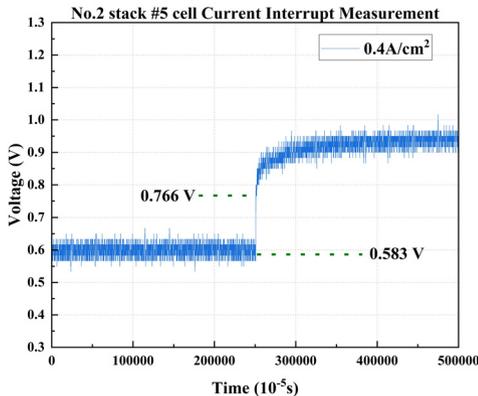


Fig. 9. Current interrupt of stack no. 2

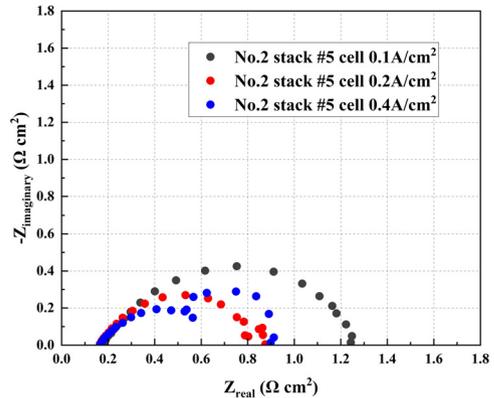


Fig. 11. EIS of stack no. 2

전류밀도가 커질수록 전해질막이 수화되고 이온 전도도가 높아지기 때문에 전기저항은 낮아진다. 1번 스택은 부하 변동 운전에 의해 열화로 전기저항이 증가한 것을 확인할 수 있다.

1번과 2번 스택을 비교하였을 때 부하 변동 운전을 한 1번 스택의 임피던스가 전체적으로 증가함을 알 수 있다. 구체적으로 보면 전류밀도  $0.4 \text{ A/cm}^2$ 에서 HFR은 부하 변동한 스택 1은  $0.203 \text{ } \Omega\text{cm}^2$ 로 정전류 운전한 스택 2의  $0.166 \text{ } \Omega\text{cm}^2$ 에 비해 22% 크다. 활성화 손실 저항(charge transfer resistance, CTR)은 부하 변동한 스택 1은  $0.697 \text{ } \Omega\text{cm}^2$ , 정전류 운전한 스택 2는  $0.483 \text{ } \Omega\text{cm}^2$ 로 스택 1이 44% 크다. 물질 전달 저항(mass transfer resistance, MTR)은 부하 변동한 스택 1은  $0.7 \text{ } \Omega\text{cm}^2$ , 정전류 운전한 스택 2는  $0.449 \text{ } \Omega\text{cm}^2$ 로 스택 1이 56% 크다.

전류밀도가 높아질수록 CTR은 감소하고 MTR은 증가하는 추세를 보였다. 활성화 손실이 감소하는 이유는 전류밀도가 높아질수록 촉매 반응의 활성도가 높아져 전체 손실에서 차지하는 비중이 작아지기 때문이다. 농도 손실이 증가하는 이유는 전류밀도가 높아질수록 cathode에서 반응으로 생성된 물이 많아지고 이것이 반응 기체의 접근을 막기 때문이다<sup>9)</sup>.

## 5. 결론

수소전기차의 운전 전략이 연료전지 스택의 내구성 향상에 미치는 효과를 파악하고자 부하 변동 운전 사이클과 고정 부하 운전 사이클을 통해 장기 내구성 실험 연구를 수행하였다. 먼저 Matlab/Simulink의 수소전기차 예제 모델을 사용하여 driving cycle US06에 대한 스택전류 변화 데이터 값을 확보하였다.

400시간 연속 운전 후 전류밀도  $1 \text{ A/cm}^2$ 에서 부하 변동 스택의 성능은 16.52% 감소하였고 정전류 운전 스택의 성능은 1.35% 감소하였다. 따라서 부하 변동이 스택 열화를 가속시킨다는 것을 알 수 있다.

전류 차단법을 통해 부하 변동 운전을 적용한 스택은 전류밀도  $0.4 \text{ A/cm}^2$ 에서 전기저항이  $3.96 \text{ m}\Omega$ 로 정전류 운전의  $2.29 \text{ m}\Omega$ 보다 더 크게 증가하였다.

이를 통해 부하 변동이 전해질막과 이온노머의 전도도 열화도 가속시킴을 알 수 있었다.

전기화학 임피던스 분광법을 통해 연료전지 스택의 CTR, 전기저항, MTR의 열화 정도를 분석하였다. 부하 변동 운전을 한 1번 스택의 임피던스가 고정 부하(정전류) 운전을 한 2번 스택의 임피던스보다 전체적으로 더 증가하였고 전류밀도가 높아질수록 CTR은 감소하고 MTR은 증가하는 추세를 보였다. CTR이 감소하는 이유는 전류밀도가 높아질수록 활성화 손실의 비중이 낮아지고 MTR이 증가하는 이유는 전류밀도가 높아질수록 cathode에서 생성되는 물의 양이 많아져 전극 표면을 막기 때문이다.

본 연구에서는 수소전기차의 연료전지 스택 내구성을 향상시키기 위해 스택의 부하 변동을 제거하고 장기 내구성 실험을 통해 스택 내구성을 평가하였다. 장기 내구성 실험을 통해 부하 변동 운전이 정전류 운전보다 연료전지 스택의 열화를 가속시키는 것을 확인하였다. 또한 전류밀도가 높아질수록 전기저항 손실과 CTR은 감소하고 MTR은 증가한다는 결과를 얻었다. 본 연구는 운전 전략 최적화를 통해 수소전기차의 수명을 향상시킬 수 있다는 것과 부하 변동이 스택 열화에 미치는 영향을 보여주었다. 실제 차량 운전에서는 정전류 조건에서만 운전이 불가능하고 잦은 시동/정지가 발생할 수 있다. 따라서 향후 부하 변동뿐만 시동/정지 등 스택의 열화에 미치는 요인을 분석하여 수명을 향상시키기 위한 운전 전략 개발을 계속 수행할 필요가 있다.

## 후 기

이 논문은 2024 정부(산업통상자원부)의 재원으로 한국에너지기술평가원의 지원을 받아 수행된 연구임 (과제번호: 20229A10100070, 과제명: 고분자전해질 [PEM] 연료전지로부터 저탄소 백금 촉매 원료화 기술 개발).

## References

1. A. Ruiz, "45 latest greenhouse gas & climate change statistics", TheRoundup.org, 2024. Retrieved from <https://theroundup.org/co2-greenhouse-gas-emission-statistics/>.
2. N. Son, M. Naseem, U. Kim, and Y. D. Lee, "Dynamic simulation of proton exchange membrane fuel cell stack under various operating pattern of fuel cell powered heavy duty truck", *Journal of Hydrogen and New Energy*, Vol. 35, No. 2, 2024, pp. 121-128, doi: <https://doi.org/10.7316/JHNE.2024.35.2.121>.
3. W. Y. Lee, M. Kim, H. Oh, Y. J. Sohn, and S. G. Kim, "A review on prognostics of polymer electrolyte fuel cells", *Journal of Hydrogen and New Energy*, Vol. 29, No. 4, 2018, pp. 339-356, doi: <https://doi.org/10.7316/KHNES.2018.29.4.339>.
4. Hydrogen and Fuel Cell Technologies Office, "Hydrogen and Fuel Cell Technologies Office multi-year program plan", U. S. Department of Energy, 2024. Retrieved from <https://www.energy.gov/eere/fuelcells/hydrogen-and-fuel-cell-technologies-office-multi-year-program-plan>.
5. The MathWorks Inc., "FCEV reference application", The MathWorks Inc., 2024. Retrieved from <https://kr.mathworks.com/help/autoblks/ug/fuel-cell-electric-vehicle-reference-application.html>.
6. United States Environmental Protection Agency (EPA), "Dynamometer drive schedules", EPA, 2024. Retrieved from <https://www.epa.gov/vehicle-and-fuel-emissions-testing/dynamometer-drive-schedules>.
7. Korea Energy Agency Vehicle Energy Efficiency Center, "Vehicle fuel efficiency test method", Korea Energy Agency Vehicle Energy Efficiency Center, 2019. Retrieved from [https://car.energy.or.kr/veec/front/testin/test\\_in.do](https://car.energy.or.kr/veec/front/testin/test_in.do).
8. R. P. O'Hayre, S. W. Cha, W. G. Colella, and F. B. Prinz, "Fuel cell fundamentals", 3rd ed, John Wiley & Sons, USA, 2016, doi: <https://doi.org/10.1002/9781119191766>.
9. O. A. Obeisun, Q. Meyer, E. Engebretsen, D. P. Finegan, J. B. Robinson, G. Hinds, P. R. Shearing, and D. J. L. Brett, "Study of water accumulation dynamics in the channels of an open-cathode fuel cell through electro-thermal characterisation and droplet visualisation", *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 40, No. 46, 2015, pp. 16786-16796, doi: <https://doi.org/10.1016/j.ijhydene.2015.07.066>.