

리튬이온 배터리의 가속 방전 조건에 따른 열화 분석 방법 비교 및 시뮬레이션 검증

한태경*, 진태환*, 이인준*, 조경철*, 심재술**

*한국섬유기계융합연구원

**영남대학교 기계공학부

e-mail : hantk24@yu.ac.kr

Comparative Degradation Analysis of Lithium-Ion Batteries under Accelerated Discharge Conditions with Simulation Validation

Tae-Gyeong Han*, Tae-Hwan Jin*, In-Jun Lee*, Kyung-Chul Cho*, Jae-Sool Shim**

*Korea Textile Machinery Convergence Research Institute

**School of Mechanical Engineering, Yeungnam University

요약

본 논문에서는 리튬이온 배터리의 열화 성능을 Hybrid Pulse Power Characterization(HPPC) Test 및 Electrochemical Impedance Spectroscopy(EIS)를 이용하여 분석하였으며, 각각의 평가 방법에서 추출한 파라미터를 기반으로 Equivalent Circuit Model(ECM)을 구성하여 배터리의 전압 및 발열 거동 시뮬레이션을 진행하였다. 또한 출력에 따른 가속 열화 분석을 위해 방전 조건으로는 1C-rate와 5C-rate로 차이를 두었으며, 사이클 진행에 따라 100사이클 간격으로 HPPC Test 및 EIS를 실시하였다. 각 평가 방법으로 구성된 ECM 모델을 기반으로 하여 이를 각각 COMSOL Multiphysics에서 전압 및 발열 거동 해석 시뮬레이션에 적용하였다. 이후 실험 중 측정된 전압 곡선 및 온도 센서를 통해 확보한 배터리 표면 온도와 비교함으로써 ECM 기반 해석의 정확도를 검증하였다. HPPC 기반 ECM과 EIS 기반 ECM 각각의 시뮬레이션 결과를 실험값과 비교 분석함으로써, 두 가지 분석 방식의 적용 가능성에 대한 비교적 평가를 수행하였다. 본 논문은 이러한 비교를 통해 배터리의 열화 원인 분석과 전압 및 발열 거동을 정밀하게 예측할 수 있는 모델링 방법을 제시하고자 한다.

1. 서론

리튬이온 배터리는 에너지 저장 장치(ESS), 휴대용 전자기기, 교통수단 등 다양한 분야에서 핵심적인 전원으로 자리 잡아 왔다. 특히 전기차, 드론, 전력 저장 장치 등에서 순간적인 고출력 요구가 증가함에 따라, 고출력 배터리는 필수적인 핵심 기술로 자리 잡고 있다. 하지만 리튬이온 배터리는 열적 안정성으로부터 많은 위험이 있어 화재나 폭발 사고를 예방하기 위해 배터리의 열거동과 관련된 많은 연구가 진행 중이다. 따라서 저온과 고온 등 다양한 온도 조건에서 배터리 실험하는 것은 물론, 해석 시뮬레이션을 통해 배터리 발열 현상을 실제와 비슷하게 구현하여 배터리 온도 분포를 추정하는 연구도 활발히 진행 중이다. 이때, 배터리는 SOC(State Of Charge), 온도, 노화에 따라 비선형적인 거동을 보이므로 배터리 모델링을 정확도 높게 구현하는 것이 시뮬레이션의 정확도를 판가름한다.

이에 본 논문에서는 고출력 배터리 열화에 따른 내부 요인과 발열을 분석하기 위해 충전은 1C-rate로 동일, 방전

은 1C-rate와 5C-rate로 달리 설정하였다. 또한 충방전 cycle 100회마다 HPPC(Hybrid Pulse Power Characterization) Test와 EIS(Electrochemical Impedance Spectroscopy) 분석을 15, 25, 35도로 나누어 진행해 배터리 상태를 분석하였다. 각 분석 결과를 토대로 곡선 피팅을 통해 파라미터 추출 후, HPPC Test 경우 2RC ECM 회로를 작성하였으며 EIS 분석의 경우 2RC ECM 회로에 리튬이온 확산 요인인 Warburg 소자를 추가하여 작성하였다. 해석 시뮬레이션의 경우 해당 회로를 기반으로 COMSOL Multiphysics를 이용하여 배터리 모델링을 한 후, 배터리의 전압 및 발열 거동을 실험 데이터와 비교 검증하였다. 본 논문은 해당 실험과 해석 시뮬레이션을 통해 HPPC Test와 EIS 분석 두 분석 방법의 적용 가능성을 비교하고, 발열 거동을 정밀하게 예측할 수 있는 모델링 방법을 제시하고자 한다.

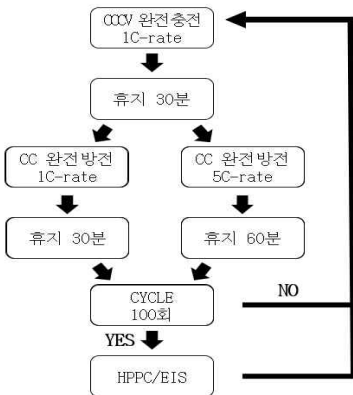
2. 연구방법 및 연구 결과

2.1 연구방법

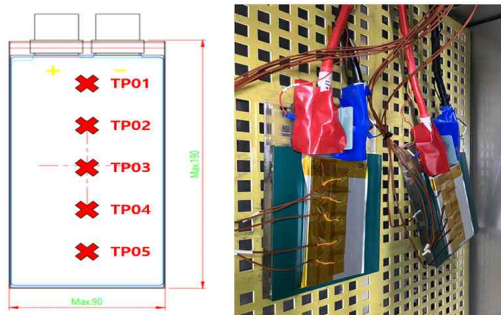
본 연구에서는 표 1에 제시된 사양을 갖는 파우치형 리튬이온 배터리 Cell 2개를 실험 대상으로 선정하여 충방전 실험과 해석 시뮬레이션을 진행하였다. 전체적인 실험은 그림 1과 같은 방식으로 진행하였다. SOC 0% 상태인 배터리를 CCCV 충전 모드에서 1C-rate로 완전 충전 후, CC 방전 모드에서 1개의 배터리는 1C-rate로 다른 1개의 배터리는 5 C-rate로 완전 방전하였다. 각 충전과 방전 사이 휴지는 30분을 주었으며, 5C-rate 방전 후에는 전압 및 열적 안정을 위해 1시간 주었다. 또한 Cycle 진행 시 배터리 온도 분포 확인을 위해 배터리 표면에는 그림 2와 같이 5개의 온도 센서를 부착하였다. 해당 충전-휴지-방전-휴지 시퀀스를 100 Cycle 진행 후에는, 배터리 성능 분석을 위해 HPPC Test 및 EIS 분석을 실시하였다.

배터리 타입	파우치형 LCO Battery
크기	190 * 90 * 7 (mm)
정격 용량	16.1Ah
정격 전압	3.7V
충전 전압	4.2V
충전 cut-off 전류	0.1C-rate
방전 cut-off 전압	3.0V

[표 1] 배터리 사양



[그림 1] 전체 실험 flow chart

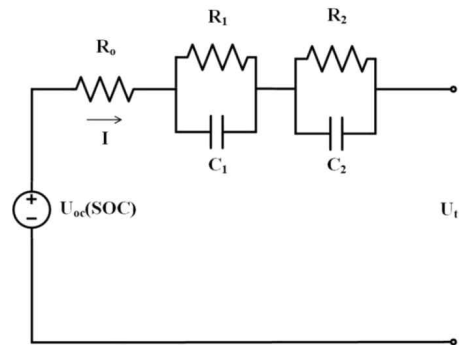


[그림 2] 배터리 온도 센서 부착 위치

10%로 나누어 진행하였으며, 온도에 따른 비교를 위해 챔버 온도는 15°C, 25°C, 35°C로 유지하여 실험을 진행하였다. 또한 HPPC Test의 경우 전압 안정성을 위해 휴지 90분을 주었으며, EIS 분석의 경우 교류 전류를 흘려 다양한 주파수에 따른 반응을 관찰하므로 HPPC Test에 비해 완전한 평형 상태가 불필요하다고 판단하여 휴지 30분을 주었다. 각 실험 후 파라미터 추출을 통해 HPPC Test는 그림 3과 EIS 분석은 그림 4와 같이 2RC ECM 회로를 구성하였으며 해당 회로를 기반으로 COMSOL Multiphysics 배터리 전압 및 발열 해석 시뮬레이션을 진행하였다.

1) 항온 챔버 15°C/25°C/35°C 온도 세팅
2) 1/3C-rate CCCV Charge, SOC 100%까지
3) 90분 Rest
4) 1C-rate CC Discharge, SOC 10%만큼 5C-rate CC Discharge, SOC 10%만큼
5) 90분 Rest
6) 1C-rate CC Discharge 10초 40초 Rest 1C-rate CC Charge 10초 40초 Rest
7) SOC 10%까지 4~6 step 반복
8) 1C-rate CC Discharge, SOC 0%까지 5C-rate CC Discharge, SOC 0%까지
9) 90분 Rest

[표 2] HPPC Test Sequence

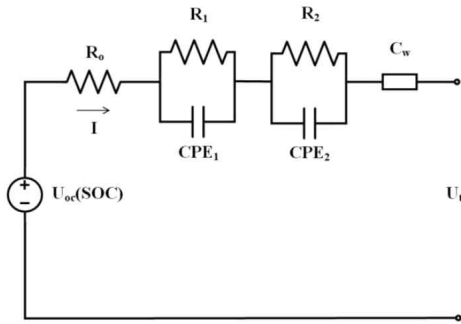


[그림 3] HPPC Test 2RC ECM 회로

HPPC Test와 EIS 분석은 표 2와 표 3 같이 진행하였다. 실험의 정확도와 시간 등을 고려하여 SOC는

1) 항온 챔버 15°C/25°C/35°C 온도 세팅
2) 1/3C-rate CCCV Charge, SOC 100%까지
3) 1C-rate CC Discharge, SOC 10%만큼 5C-rate CC Discharge, SOC 10%만큼
4) 30분 Rest
5) EIS 측정
6) SOC 10%까지 4~6 step 반복
7) 1C-rate CC Discharge, SOC 0%까지 5C-rate CC Discharge, SOC 0%까지
8) 90분 Rest

[표 2] EIS 분석 Sequence

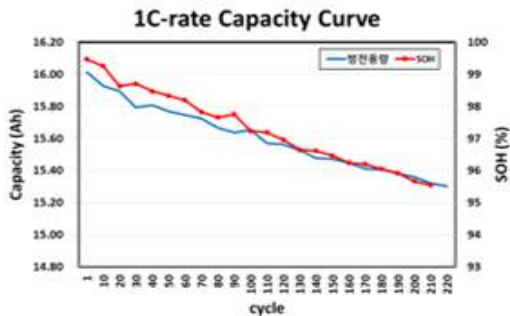


[그림 4] HPPC Test 2RC ECM 회로

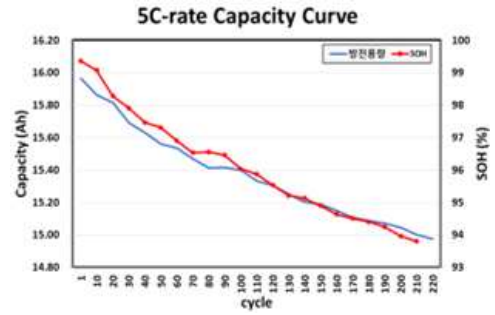
해석 시뮬레이션은 2RC ECM 회로를 기반으로 배터리 모델링을 진행하였으며, 배터리 물성치 및 발열 수식을 입력하여 발열 해석을 진행하였다.

2.2 연구결과

본 논문에서는 배터리 출력에 따른 열화 분석을 위해 방전 전류를 1C-rate와 5C-rate로 달리 설정하였으며 충·방전 cycle 100회마다 HPPC Test 및 EIS 분석을 진행하였다. 열화에 따른 ECM 회로를 작성하였고 각 회로를 기반하여 배터리 전압 및 발열 거동을 시뮬레이션으로 확인하였다. 그 결과, 그림 5와 그림 6 같이 노화가 진행될수록 5C-rate로 방전한 배터리가 1C-rate로 방전한 배터리보다 SOH(State Of Health) 감소하는 속도가 빨랐다.

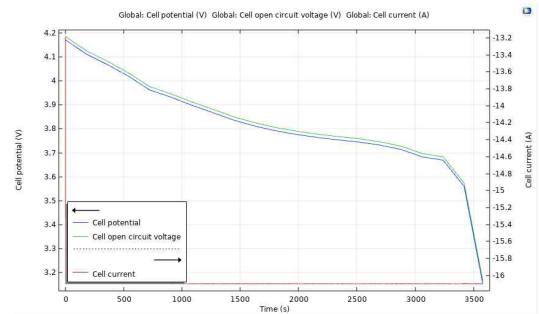


[그림 5] 1C-rate 방전 조건 배터리 SOH 감소

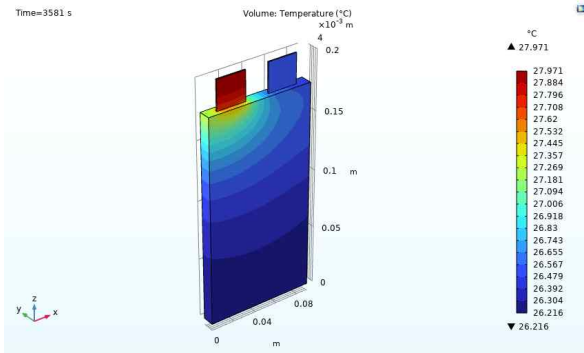


[그림 6] 5C-rate 방전 조건 배터리 SOH 감소

HPPC Test 및 EIS 분석으로 작성한 ECM 회로 기반 시뮬레이션 결과, 그림 7과 그림 8 같이 HPPC Test로 작성한 ECM 회로가 EIS 분석으로 작성한 ECM 회로 보다 전압 거동 및 발열 거동이 실제 실험 결과와 더 일치하며, 오차가 적은 것으로 나타났다. 그 이유로는 HPPC 기반 ECM 회로가 실제 방전 조건에서 추출한 파라미터로 설계되어 실제 전압 강하 및 발열 계산에 직결되는 값으로 판단된다. 반면에 EIS 기반 ECM 회로의 경우 작은 교류 전류에 의해 측정된 값으로 실제 방전 조건에서 전압 및 발열 거동을 계산하기 위해서는 큰 전류로 확장하는 보정이 필요하기에 이것으로 정확도가 떨어진 것으로 판단된다. 하지만 HPPC Test만으로는 어떤 내부저항의 열화로 배터리 노화가 일어나는지 분석하기엔 정확도가 떨어지므로, 따라서 본 논문에서는 정확한 내부 저항 요인을 분석하기 위해서는 EIS 분석법 또한 HPPC Test와 병행으로 진행하는 방법을 제시한다.



[그림 7] COMOSOL 배터리 전압 거동 해석 결과



[그림 8] COMSOL 배터리 발열 해석 결과

이 연구는 2024년도 산업통상자원부 및
산업기술평가관리원(KEIT) 연구비 지원에 의한
연구임(과제번호 : RS-2024-00404495)

참고문헌

- [1] Mulè Cascio, Antonino, “Characterization of Li-ion Battery Aging through HPPC Experimental Tests and Equivalent Circuit Model,” Politecnico di Milano, Tesi Magistrale in Energy Engineering, 2023-2024 학년도.
- [2] Zhou, Xing; Zhang, Ran; Wang, Yu, “Electrochemical Impedance Spectroscopy-Based Dynamic Modeling of Lithium-Ion Batteries Using a Simple Equivalent Circuit Model,” Energy Technology, Vol. 11, No. 9, Article ID 2300473, pp. 1-8, 2023.
- [3] Niu, Hongzhi; Zhang, Chao; Jiang, Jiuchun; et al., “A Comprehensive Review on the Characteristics and Modeling of Lithium-Ion Battery Aging,” Applied Energy, Vol. 211, pp. 193-220, 2018.
- [4] Njema, Fatima; et al., “A Review on the Recent Advances in Battery Development and Energy Storage,” Journal of Renewable Energy, 2024
- [5] Guo, R.; Shen, W. “A Review of Equivalent Circuit Model Based Online State of Power Estimation for Lithium-Ion Batteries in Electric Vehicles,” Vehicles, 2022.