

# 폐배터리 모듈의 잔존수명 평가를 위한 임피던스 스펙트럼 측정 장치 개발

이승준, 파루프 파르한, 칸 아사드, 최우진  
 송실대학교, 전기공학부

## Development of the Impedance Spectroscopy Instrument to Evaluate the Residual Useful Life of a Used Battery Module

Seungjune Lee, Farhan Farooq, Asad Khan and Woojin Choi  
 Department of Electrical Engineering, Soongsil University

### ABSTRACT

자동차용 배터리는 초기 용량의 80% 이하가 되면 교체하게 되며, 근간 폐배터리의 수가 폭발적으로 증가할 것으로 예측되고 있다. 폐배터리의 폐기로 인한 환경 파괴를 방지하고 자원을 재활용하기 위해서 자동차에서 나오는 폐배터리를 에너지 저장장치(ESS)로 재사용 하는 것에 대한 관심이 높아지고 있다. 폐배터리를 ESS로 재구성하기 위해서는 폐배터리 모듈의 그레이딩을 통해 비슷한 성능의 모듈끼리 모아서 구성하는 것이 매우 중요하다. 배터리 모듈 간의 불균형은 전체 시스템의 성능을 저하시키며, 따라서 비슷한 성능과 잔존 수명을 가진 모듈을 골라내는 일은 폐배터리의 재사용에 있어서 첫 번째 선결 과제가 된다. 본 연구에서는 폐배터리의 상태 및 잔존수명 평가를 위해 배터리 모듈의 임피던스 스펙트럼을 측정할 수 있는 장비를 개발하였다. 폐배터리 모듈에 AC 섭동을 인가하고 이를 측정하여 임피던스 스펙트럼을 계산할 수 있는 하드웨어와 소프트웨어를 개발하였다. 개발 장비는 60V이하의 폐배터리 모듈의 임피던스 스펙트럼을 0.1Hz에서 1kHz까지 측정 가능하며, 측정 결과를 바탕으로 커브 피팅을 통해 등가회로의 파라미터도 계산할 수 있다. SM3에서 얻어진 폐배터리 모듈을 이용하여 측정된 임피던스 스펙트럼을 상용장비인 BIM2로 측정된 결과를 비교하였고, Reduced Chi-Square를 이용한 분석결과 두 데이터가 거의 일치함을 알 수 있었다.

### 1. 서 론

환경 보존과 에너지 절감이라는 세계적인 추세에 발맞추어 세계 각국의 자동차 시장에서 순수한 배터리 전기자동차(BEV), 하이브리드 전기 자동차(HEV), 플러그인 하이브리드 전기자동차(PHEV)의 판매가 늘어나고 있으며<sup>[1]</sup> 전기 자동차의 시장침투가 증가함에 따라 향후 폐기되는 배터리의 수는 매년 증가할 것으로 예상된다. 이러한 전기차에서 배출되는 폐배터리를 폐기할 경우 생기는 환경오염 문제로 인하여 국내외에서는 배터리 생산자에게 재활용 의무를 부여하는 생산자책임재활용제도(EPR)를 도입하는 추세<sup>[2]</sup>이며, 이로 인하여 배터리 재사용에 대한 관심이 증가하고 있다.

전기자동차의 배터리의 경우 초기 용량 대비 80% 이하 용량의 배터리는 전기차의 주행 범위를 상당히 제한하게 되지만, ESS와 같은 다른 용도로 사용하기에는 충분할 것으로 예상된다.<sup>[3]</sup> 이러한 폐배터리 모듈들은 각자 노화된 정도가 다를 수

있기 때문에 배터리의 상태에 따라 그레이딩(Grading)하여 사용하지 않으면 재사용시 배터리 모듈간의 불균형으로 인해 전체 배터리 시스템 성능의 저하를 일으킬 수 있다. 따라서 배터리가 재사용 되기 위해서는 그 상태와 잔존 수명에 대한 정확한 평가가 선행되어야 하며, 이를 위해 비파괴적인 검사 방법으로 배터리 내부임피던스를 측정할 수 있는 전기화학적 임피던스분광장치(EIS Instrument)의 개발은 매우 중요한 의미를 갖는다.

### 2. 배터리 모듈용 AC 임피던스 스펙트럼 측정기 2.1 전기화학적 임피던스 분광법

전기화학적 임피던스 분광법(EIS)은 비파괴적인 검사 방법으로 측정 대상에 대해 작은 섭동을 유도하고 유도된 섭동에 대한 응답으로부터 AC 임피던스 스펙트럼을 측정하고, 측정된 AC 임피던스를 물리적으로 설명이 가능한 임피던스 모델을 이용하여 Curve-Fitting 함으로써 추출한 파라미터를 이용하여 배터리의 노화나 성능 상태를 추정할 수 있는 기술이다.<sup>[4]</sup> EIS는 서로 다른 프로세스에 관련된 임피던스는 서로 다른 시상수(Time Constant)를 갖는다는 것에 기초하며, 측정의 유효성이 보장되기 위해서는 선형성(Linearity), 인과성(Causality), 안정

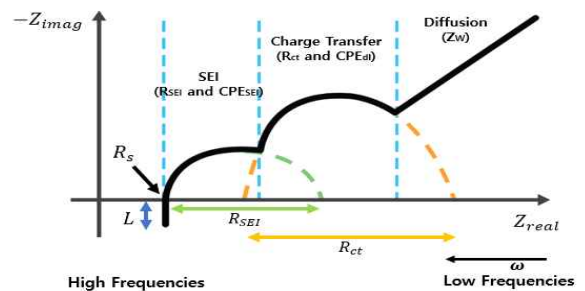


그림 1 등가회로 모델의 EIS 나이퀴스트 플롯  
 Fig. 1. EIS Nyquist Plot of Electrical circuit model

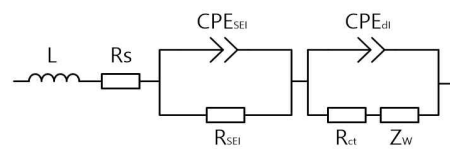


그림 2 리튬이온 배터리의 등가회로 모델  
 Fig. 2. Equivalent Circuit of Lithium I-on battery

성(Stability) 그리고 유한성(Finite)의 네 가지 조건을 만족하여야 한다.<sup>[5,6]</sup> 대표적인 리튬이온 배터리의 임피던스 스펙트럼은 그림 2와 같이 두 개의 반원과 발산되는 직선의 형태로 나타나는 Nyquist Plot으로 나타낼 수 있으며 Nyquist Plot의 Curve-Fitting에 필요한 전기적 모델의 한 종류는 그림 3과 같은 Adapted Randles ECM(AR-ECM)으로 표현할 수 있다.<sup>[7]</sup> 이때, 인덕턴스( $L$ ) 성분은 고주파에서 전극의 다공성과 배터리와 연결된 리드선에 의한 것이다. 옴 저항 성분( $R_s$ )은 전해질 저항, 접촉 저항 및 전자 접촉 등을 포함하며 그림 2에서의 첫 번째 반원은 내부 전극에 생성되는 고체전해질 계면(SEI, Solid Electrolyte Interface)에서의 전하전달에 해당하는 필름 저항을  $R_{SEI}$ 과  $CPE_{SEI}$ 을 이용하여 표현하였으며, 두 번째 반원은 전극물질 계면에서의 리튬이온의 산화 및 환원반응을 나타내는 전하이동 저항성분( $R_{ct}$ )과 이중층 CPE( $CPE_{dl}$ )을 뜻한다. 여기서 CPE(Constant Phase Elements)는 전극의 다공성 및 비틀림 특성을 나타내며 식 (1)으로 표현한다.

$$Z_{CPE} = \frac{1}{Q(j\omega)^n} \quad (1)$$

여기서  $Q$ 는 시상수(Time constant)이며  $n$ 은 0과 1 사이의 실수이다. 이때,  $n=0$ 이면 순수한 저항과 같고  $n=1$ 이면 순수한 커패시터와 같은 역할을 한다.

와버그 임피던스( $Z_W$ )는 고체 상태의 리튬 이온의 확산 과정을 모델링 하는 데 사용되며 식(2)으로 표현할 수 있다<sup>[8]</sup>. 이때,  $\gamma$ 는 확산 시상수(diffusion time constant),  $\phi$ 는 0과 1 사이의 변수이며,  $R_W$ 는 와버그 저항을 나타낸다.

$$Z_W = R_W \frac{\tanh(j\omega\gamma)^\phi}{(j\omega\gamma)^\phi} \quad (2)$$

## 2.2 개발 장비의 하드웨어 구성

개발 장치의 전체적인 구성은 그림 3에서 볼 수 있다. NI사의 DAQ Board와 LabVIEW로 구성된 소프트웨어를 이용하여 주파수를 변경하며 정현 파형의 섭동 전압을 발생시키고 이 신호는 Power OP-Amp를 이용하여 전압 신호를 전류 신호로 변환시켜준다. 변환된 전류 섭동은 배터리 모듈로 인가되고 이에 대한 전압 및 전류 응답 신호는 각각의 센싱 회로를 통하여 측정된다. 이때, 전압은 저항 분배 회로를 통해 측정되고, 전류는 shunt 저항을 이용하여 측정이 된다. 이렇게 센싱 된 전압 및 전류 응답 신호는 DAQ Board로 인가되어 디지털 데이터로 변

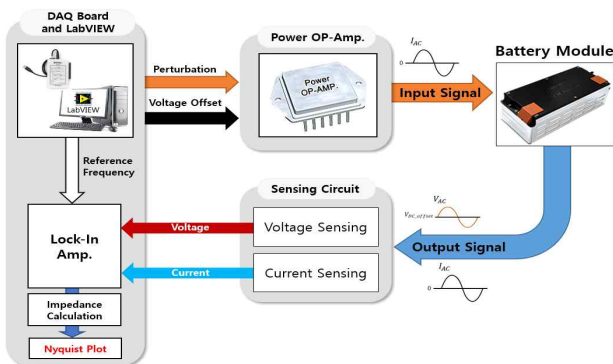


그림 3 배터리 모듈용 AC 임피던스 스펙트럼 측정 장치의 구성  
Fig. 3. AC Impedance Spectrum Measurement for Battery Modules

환 된다. 이때 배터리 모듈의 임피던스의 경우 크기가 수십 밀리옴에서 수밀리옴 정도로 매우 작기 때문에 측정 프로브 단자의 저항에 영향을 받는다. 따라서 2개의 단자로는 전류를 흘려 주고 2개의 또 다른 단자로 전압을 측정해주는 4-단자 프로브 측정방식을 채택하여 리드선의 저항에 의한 영향을 최소화하여 배터리 모듈의 임피던스 측정 정확도를 향상시켰다.

## 2.3 개발 장비의 소프트웨어 구성

배터리에 인가된 전류 섭동과 전압 응답은 센싱 회로를 통하여 측정되고 이 측정된 신호는 Digital Lock-in Amplifier에 의하여 처리된 후 임피던스가 계산된다. 이때,  $N$ 개의 샘플링 데이터를 가진  $n$ 번째의 측정값은 샘플의 잡음  $k(n)$ 의 합인 식 (3)으로 표현할 수 있으며 여기서  $f_m$ 은 측정주파수이고  $f_s$ 는 샘플링 주파수이다.

$$M(n) = A \sin\left(\frac{2\pi f_m n}{f_s} + \varphi\right) + k(n) \quad (3)$$

기준신호는 식(4)처럼 같은 위상의 동상 성분과 90도 위상차가 나는 이상 성분으로 만들어져 측정 데이터인 식(3)과 각각 곱해서 식 (5)와 식 (6)과 같이 표현할 수 있다.

$$r_P(n) = \cos\left(\frac{2\pi f_m n}{f_s}\right), r_Q(n) = \sin\left(\frac{2\pi f_m n}{f_s}\right) \quad (4)$$

$$M_{real}(n) = M_c(n) \times r_P(n) \quad (5)$$

$$M_{imag}(n) = M_c(n) \times r_Q(n) \quad (6)$$

식 (5)와 식 (6)로 표현된 측정 신호의 실수와 허수 성분을 평균값을 취하면 교류 성분은 모두 0으로 수렴하여 직류성분만 남게 된다. 따라서 이 값으로부터 노이즈가 제거된 측정 신호의 크기와 위상을 계산할 수 있으며 실수, 허수 성분은 각각 식(7)과 식(8)으로 표현할 수 있다.

$$X(n) = 2 \times M_{real}(n) \approx A \cos(\varphi) \quad (7)$$

$$Y(n) = 2 \times M_{imag}(n) \approx A \sin(\varphi) \quad (8)$$

$$A = \sqrt{X^2 + Y^2}, \quad \varphi = \tan^{-1} \frac{Y}{X} \quad (9)$$

노이즈가 제거된 실수 및 허수 성분으로 계산된 신호의 데이터는 식(9)과 같이 크기와 위상각으로 표현이 가능하다. 이처럼 디지털 룩인 앰프를 통과하여 노이즈가 제거된 전압과 전류의 크기 및 위상값들은 식(10)을 이용하여 임피던스로 계산하게 된다.

$$Z \angle \theta_Z = \frac{V}{I} \angle (\theta_V - \theta_I) \quad (10)$$

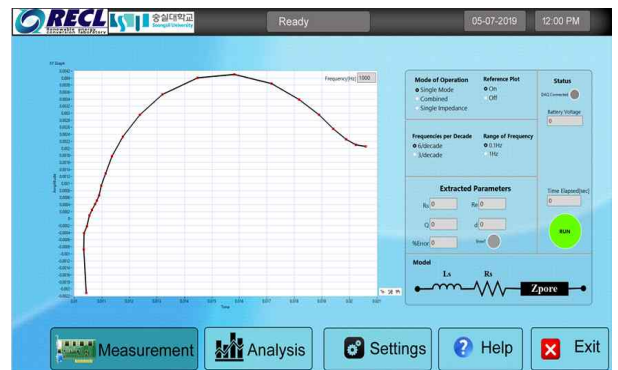


그림 4 개발된 소프트웨어의 나이퀴스트 플롯 실시간 디스플레이  
Fig. 4 Nyquist plot real-time display of developed software

그림 4에서 보듯이 계산된 주파수별 임피던스값은 소프트웨어로 구현된 Nyquist plot 디스플레이를 통하여 실시간으로 확인할 수 있으며, 등가회로의 파라미터 또한 실시간으로 추출된다.

### 3. 실험 및 고찰

그림 5는 개발된 측정장치를 이용하여 모듈 단위의 배터리의 임피던스 스펙트럼을 측정하는 것을 보여준다. 측정에 사용된 배터리 모듈은 Bixel사의 파우치 셀 4개를 직렬로 연결하여 제작된 모듈로 공칭 용량은 32Ah, 공칭 전압은 14.8V이다.

그림 6에는 개발된 장비 및 상용장비를 이용하여 측정된 배터리 모듈의 임피던스 스펙트럼을 나타내었다. 섭동 전류는 선형성의 보장을 위해 충전 전하량의 5% 이내인 2Ap-p로 선정하였고, 측정 시 폐배터리 모듈의 단자전압은 14.921V였으며, 실험은 상온(24.5℃)에서 진행되었다. 개발 장비와 상용 장비인 BIM2로 측정된 결과의 상관관계는 그림 11과 같은 식으로 표현된 Reduced Chi-Square값을 통해 비교된다. 계산된 값은 1.843%로 두 장비로 측정된 결과의 상관관계가 매우 밀접하여, 거의 동일하다는 것을 알 수 있다.

$$\chi^2_{\nu} = \frac{\sum_{i=1}^n [(Z_{i,m} - Z_{i,bim}) / Z_{i,m}]^2}{\nu \sigma^2} \quad (11)$$

EIS 장비의 정확성을 대변하는 중요한 또 하나의 요소는 재현성이다. 재현성은 같은 시험조건에서 동일한 측정대상을 테스트했을 때, 이전 측정결과와 동일한 결과가 나오는지 확인하는 것이며, 본 장비의 경우 재현성은 0.704%로 매우 우수한 성능을 나타내었다.

개발된 측정장치의 임피던스 스펙트럼 측정결과와 B사의 EIS 장비로 측정된 결과의 비교와 측정장치의 재현성은 식(11)의 Reduced Chi-Square로 계산하여 비교하였다.

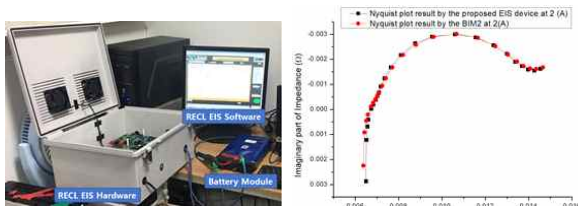


그림 5. 개발된 EIS 장비 및 측정된 임피던스 스펙트럼  
Fig. 5 Developed EIS instrument and measured impedance spectrum

### 4. 결 론

본 연구에서는 폐배터리 잔존가치 평가에 필요한 모듈형 배터리의 임피던스 스펙트럼을 측정할 수 있는 장치를 개발하였다. SM3의 폐배터리 모듈을 이용한 임피던스 스펙트럼 측정 실험을 통하여 상용 장비와 개발 장비의 측정 성능을 비교 검증함으로써 개발 장비의 우수함을 확인하였다. 본 개발 장비는 폐배터리 모듈의 임피던스 스펙트럼의 측정을 통해 등가회로의 파라미터를 추출하고 이를 신규 배터리의 그것과 비교함으로써 폐배터리의 노화 상태나 잔존 수명을 추정하는데 유용하게 활용할 수 있을 것으로 기대된다. 또한 본 기술은 배터리나 슈퍼

커패시터의 생산라인에 적용되어 제품의 품질 보증하는 용도로도 활용될 수 있으며, 이 경우 매우 다양한 파라미터의 분석을 통해 정밀한 품질 관리가 가능해 질 것으로 기대된다.

이 논문은 2019년도 지방정부(충청남도)의 재원으로 충남창조경제혁신센터의 지원을 받아 수행된 에너지신산업 기술개발사업 성과임.

### 참 고 문 헌

- [1] Podias, A. Pfrang, A. Di Persio, F. Kriston, A. Bobba, S. Mathieux, F. Messagie, M. Boon-Brett, L. "Sustainability Assessment of Second Use Applications of Automotive Batteries: Ageing of Li-Ion Battery Cells in Automotive and Grid-Scale Applications" World Electr. Veh. J. 2018
- [2] 박진호, 이창관, "전기자동차 폐배터리 관리방안", 경남발전연구원, 2018.
- [3] B. E. Olivares et al., "Particle-Filtering-Based Prognosis Framework for Energy Storage Devices with a Statistical Characterization of State-of-Health Regeneration Phenomena," IEEE Trans. Instrum. Meas., vol. 62, no. 2, pp. 364-76 Feb. 2013
- [4] G. L. Plette, "Extended kalman filtering for battery management system of LiPB-based HEV battery packs - Part 2. modeling and identification", Journal of Power Source, Vol. 134, pp. 262-276, 2004, Aug.
- [5] A. Lasia, Electrochemical Impedance Spectroscopy and Its Applications, Modern Aspects of Electrochemistry, B. E. Conway, J. Bockris, and R.E. White, Edts., Kluwer Academic/Plenum Publishers, New York, Vol. 32, p. 143-248. 1999
- [6] 이주형, 최우진, 전기화학적 전력 기기의 모델링을 위한 저가의 임피던스 분광 시스템의 개발. 전력전자학회논문지, 13(1), 46-54, 2008
- [7] Carlos Pastor-Fernandez, Kotub Uddin, Gael H. Chouchelamane, W. Dhammika Widanage, James Marco, "A Comparison between Electrochemical Impedance Spectroscopy and Incremental Capacity-Differential Voltage as Li-ion Diagnostic Techniques to Identify and Quantify the Effects of Degradation Modes within Battery Management Systems", Journal of Power Sources 360 (2017)
- [8] Qian-Kun Wang, Yi-Jun He, Jia-Ni Shen, Xiao-Song Hu, Senior Member, IEEE, and Zi-Feng Ma, "State of Charge-Dependent Polynomial Equivalent Circuit Modeling for Electrochemical Impedance Spectroscopy of Lithium-Ion Batteries", IEEE TRANSACTIONS ON POWER ELECTRONICS, VOL. 33, NO. 10, 8449p, OCTOBER 2018.