

계수추정법을 이용한 PEMFC에서의 실시간 상태 추정 방법 개발

유승열 · 최동희[†]

한국기술교육대학교 대학원 기계공학과

Development of a New On-line state Estimation Method in PEMFC using Parameter Estimation

SEUNGRYEOL YOO, DONGHEE CHOI[†]

Grad. School, Dep. Mechanical Engineering, Koreatech Univ., 307,
Gajeon-ri, Byeongcheon-myeon, Dongnam-gu, Cheonan-si, Chungcheongnam-do, 31253, Korea

Abstract >> The development need of new renewable energy is more and more important to resolve exhaustion of chemical fuels and environmental pollution. Polymer electrolyte membrane fuel cell has been widely studied to the extent that it can be used commercially. But there are many problems to be solved. One of them is to enhance the stability of fuel cell stacks. This paper proposes a new fault diagnosis method using Least Square Method (LSM) which is one of parameter estimation methods. The proposed method extracts equivalent circuit parameters from on-line measurements. Parameters of the circuit are estimated according to normal and abnormal states using simulation. The variation of parameters estimated in each states enables the estimation of state in fuel cells. Thus the LSM presented can be a suitable on-line parameter estimation method in PEMFC.

Key words : PEMFC(고분자 전해질 막 연료 전지), fuel cell(연료 전지), state monitoring(상태 모니터링), least square method(최소 자승법), on-line(실시간), parameter estimation(계수 추정)

Nomenclature

R_m : membrane loss,
 R_a : activation loss, Ω
 C_{dl} : double layer capacitor, F
 W : concentration loss
 $E(t)$: open circuit voltage
 $V_{fc}(t)$: stack voltage
 q^{-1} : backward shift operation

φ : known quantities
 θ : unknown parameter vector
LSM : least square method
 f_s : sampling frequency, kHz
NOD : number of data

1. 서 론

기존의 화학연료는 연료의 고갈 문제와 함께 반응 생성물인 CO 및 질소 산화물 등이 여러 가지 환경적 문제를 일으키고 이 피해가 점점 심해짐에 따라 이를 대체할 친환경 에너지의 중요성이 갈수록 높아지

[†]Corresponding author : qweasdnm@koreatech.ac.kr

Received : 2015.12.29 in revised form : 2016.2.13 Accepted : 2016.2.28

Copyright © 2016 KHNES

고 있다. 현재 개발되고 있는 친환경 에너지는 태양 열 에너지, 풍력 에너지, 바이오 에너지 등 여러 가지가 있는데 그 중 하나가 수소 연료전지이다. 수소 연료전지는 여타 화학연료와는 달리 반응생성물이 H_2O 만 존재하는 완전 무공해 에너지이기 때문에 차세대 연료로 주목받고 많은 부분에서 상용화에 대한 연구가 진행되고 있으며 그에 따른 성과도 존재한다¹⁻³⁾.

수소 연료전지 중 고분자 전해질 막 연료전지 (Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cell, PEMFC)는 반응이 빠르고 비교적 저온에서 동작이 가능하다는 장점이 있어 자동차 및 휴대용 전원 등에 사용된다. 그러나 PEMFC의 상용화에는 아직 보완해야 할 문제점이 여러 가지가 있으며 이런 문제들을 해결하는 것이 수소 연료전지의 완전한 상용화를 이끌어낼 방법이다. 문제점 중 하나는 바로 수소 연료전지의 안정성 문제이다.

연료전지는 여러 개의 cell이 하나의 stack을 이룬다. 이때 여러 cell중 하나의 cell에 이상이 생기고 이를 방치할 경우 그 cell이 나머지 모든 cell에 영향을 끼치게 된다. 따라서 전지의 상태를 on-line으로 측정하여 이상이 진단될 경우 빠르게 조치를 취해야 나머지 cell들을 보호할 수 있다.

전지내부의 상태를 진단하기 위한 기존의 방법들에는 여러 가지가 있다. 우선 전지에 다양한 주파수의 정현파신호를 인가하고 출력을 계산하여 확인하는 Electrochemical Impedance Spectroscopy (EIS)는 교류신호 생성을 위해서 별도의 장치를 필요로 하며 측정시간이 길다는 단점이 있다⁴⁾. 전류를 가하다 순간적으로 차단하고 그에 따른 응답을 분석하는 Current Interruption Method (CIM)은 EIS보다 측정시간이 짧다는 장점이 있다⁵⁾. 하지만 이 방법은 전류의 완전한 차단을 요하기 때문에 on-line 측정이 어렵고 전류의 변화 직후의 값을 측정해야 하기 때문에 고기능의 측정 장비를 요구하여 상용화에서 고려되어야 할 경제적인 측면에서 좋지 않다. 전지에 step input의 형

태로 전류를 가하여 응답 특성을 분석하는 step response analysis는 CIM과 비교해보았을 때 전류를 차단하지 않아도 된다는 장점이 있지만 EIS와 마찬가지로 시스템에 특정 형태의 입력을 가해야 한다는 단점이 있다⁶⁾.

본 논문에서는 전지의 내부를 equivalent circuit으로 표현하고 LSM을 이용해서 회로의 각 parameter를 추정하는 방법을 제시한다. 이 방법은 on-line 상태측정이 가능하고 별도의 장치를 필요로 하지 않는다는 장점이 있다.

2. Parameter estimation method

2.1 등가회로(Equivalent circuit)

분극이란 연료전지 내부의 전류의 흐름과 반대방향의 기전력이 생기는 현상으로 Fig. 1과 같이 크게

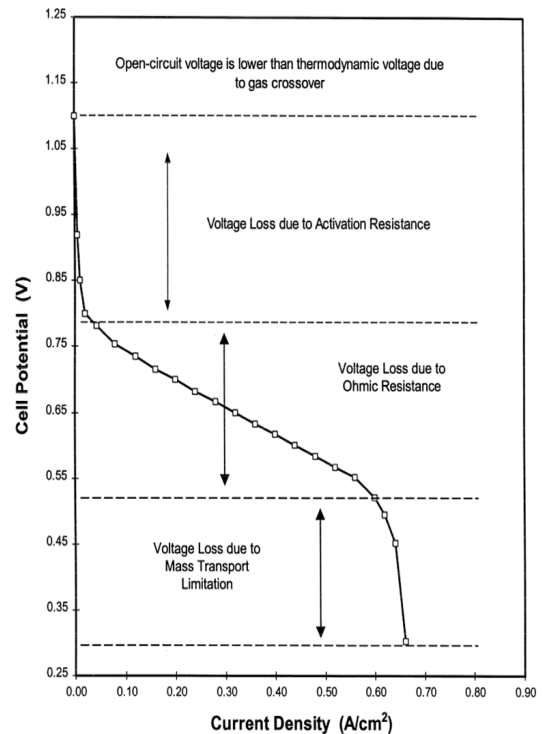


Fig. 1 Typical polarization curve of a PEMFC⁹⁾

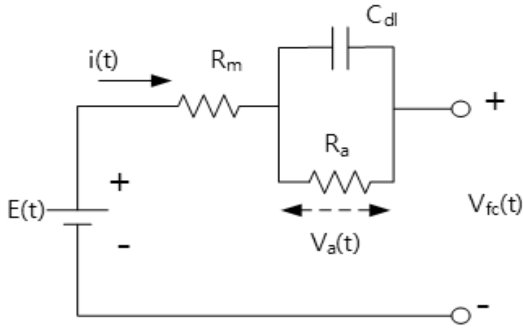


Fig. 2 Simplified Randles cell circuit

3가지 종류로 볼 수 있다⁷⁾.

첫 번째로 활성화 분극(Activation loss)이다. 활성화 분극은 전극에서 산화환원반응 과정에서 필요한 에너지를 소비함으로써 생기는 분극으로 수소와 산화반응보다 산소의 환원반응에 더 많은 에너지가 소모되므로 anode에서의 활성화 분극은 cathode보다 매우 적다. 따라서 본 논문에서는 cathode의 활성화 분극만을 고려하여 modeling을 진행하였다⁸⁾.

두 번째로는 저항 분극(Ohmic loss)이다. 전해질 막의 이온 전도도와 분리판 및 전극에서 전자의 이동에 따른 전기저항에 의한 손실로 인해 발생하는 분극이다.

마지막으로 농도 분극(Concentration loss)이다. 고전류밀도에서 전지의 전압이 급격히 감소하는 부분이 농도 분극에 의한 손실에 해당한다. 본 논문에서는 전지에서 고전류밀도영역을 사용하지 않는다고 가정해 농도분극을 무시하고 modeling을 하였다.

이러한 분극들은 Fig. 2에 나타난 바와 같이 전기적 등가회로로 나타낼 수 있다. R_a 는 활성화 분극, R_m 은 저항 분극을 의미하며 C_{dl} 은 이중층 커패시터(Double layer capacitor)로서 전극 표면에서 전극 쪽과 전해질 막 쪽의 전하의 농도차이로 인해 커패시터와 유사한 형태를 이루는 부분이다. 이에 따라 실험에 필요한 modeling을 할 때에는 Fig. 2에 해당하는 회로를 바탕으로 modeling을 하였다.

2.2 Least square method를 이용한 parameter estimation

LSM은 system의 모델 식을 세우고 system에 입력 값을 주고 그에 따른 출력 값의 data를 수집하고 수집된 data를 바탕으로 모델 식의 각 parameter를 최적의 값으로 추정하는 방법이다. 우선 입력 값을 $u(t)$, 출력 값을 $y(t)$, 평균이 0인 white noise를 $e(t)$ 라 하고 system의 모델 식을 식 (1)로 정의한다.

$$A(q^{-1})y(t) = B(q^{-1})u(t) + e(t) \quad (1)$$

여기서 $A(q^{-1}) = I + a_1q^{-1} + a_2q^{-2} + \dots + a_{na}q^{-na}$, $B(q^{-1}) = b_1q^{-1} + b_2q^{-2} + \dots + b_{nb}q^{-nb}$ 이다.

식(1)을 $\theta = [a_1 \ a_2 \ \dots \ a_{na} \ b_1 \ b_2 \ \dots \ b_{nb}]^T$ 와 $\varphi^T(t) = [-y(t-1) \ \dots \ -y(t-na) \ u(t-1) \ \dots \ u(t-nb)]$ 를 이용하여 다시 표현해 보면 식 (2)와 같다.

$$y(t) = \varphi^T(t)\theta + e(t) \quad (2)$$

이때 수집된 N개의 data를 바탕으로 Estimated parameter vector $\hat{\theta}$ 을 구하면 식 (3)과 같다¹⁰⁾.

$$\hat{\theta} = \left[\frac{1}{N} \sum_{t=1}^N \varphi(t)\varphi^T(t) \right]^{-1} \left[\frac{1}{N} \sum_{t=1}^N \varphi(t)y(t) \right] \quad (3)$$

Fig. 2의 등가 회로에서 C_{dl}/R_a 의 전압을 V_a 라 하고 전체 회로에 전류 $i(t)$ 를 인가시키면 system model equation은 식 (4), (5)와 같다¹¹⁾.

$$i(t) = \frac{V_a(t)}{R_a} + C_{dl}\dot{V}_a(t) \quad (4)$$

$$V_a(t) = E(t) - V_{fc}(t) - R_m i(t) \quad (5)$$

이때 연료전지 stack의 온도를 일정하게 유지하고 입력 gas의 양이 동일할 때 E는 일정하고 V_{fc} 는 내부 parameter 값의 변화에 따라서만 변한다고 가정하면 $\dot{E}(t) = 0$ 이 되고 $V_{fc}(t)$, $i(t)$ 의 변화율을 식 (6), (7)로 정의하면 $V_{fc}(t)$ 는 식 (8)과 같이 된다.

$$\dot{V}_{fc}(t) = \frac{V_{fc}(t) - V_{fc}(t-1)}{\Delta t} \quad (6)$$

$$\dot{i}(t) = \frac{i(t) - i(t-1)}{\Delta t} \quad (7)$$

$$V_{fc}(t) = a_1 V_{fc}(t-1) - b_1 i(t) + b_2 i(t-1) + b_3 \quad (8)$$

여기서 계수 a_1, b_1, b_2, b_3 는 식 (9)~(12)와 같다.

$$a_1 = \frac{1}{\left(\frac{1}{\Delta t} + \frac{1}{R_a C_{dl}}\right)} \quad (9)$$

$$b_1 = \frac{\left(\frac{R_m}{\Delta t} + \frac{R_m}{R_a C_{dl}} + \frac{1}{C_{dl}}\right)}{\left(\frac{1}{\Delta t} + \frac{1}{R_a C_{dl}}\right)} \quad (10)$$

$$b_2 = \frac{\frac{R_m}{\Delta t}}{\left(\frac{1}{\Delta t} + \frac{1}{R_a C_{dl}}\right)} \quad (11)$$

$$b_3 = \frac{\frac{E(t)}{R_a C_{dl}}}{\left(\frac{1}{\Delta t} + \frac{1}{R_a C_{dl}}\right)} \quad (12)$$

식 (8)에서 $V_{fc}(t) = y(t)$, $i(t) = u_1(t-1)$, $i(t-1) = u_2(t-1)$, $1 = u_3(t)$ 와 같이 표시하고 이를 LSM에 적용하여 나타내보면 $\theta = [a_1 \ b_1 \ b_2 \ b_3]^T$, $\varphi^T = [y(t-1) - u_1(t-1) \ u_2(t-1) \ u_3(t-1)]$ 로 표현할 수 있다. 이

후 LSM을 이용하여 $\hat{\theta}$ 를 추정할 수 있고 추정된 $\hat{\theta}$ 로 식 (9)~(12)를 이용해 R_m, R_a, C_{dl} 값들을 모두 추정이 가능하다.

3. Simulation

3.1 Input signal 구성

연료전지에서 LSM을 사용할 시 입력시키는 전류 값과 그에 따라 출력되는 다양한 전압 값을 바탕으로 계산을 하여 parameter를 추정하게 된다. LSM의 계산 원리가 다양한 경향성을 갖는 여러 가지 data를 가지고 오차가 가장 적은 parameter를 추정하는 것이기 때문에 기본적으로 다양한 값의 data를 얻어내어야 추정의 정확도가 높아지게 된다. 만약 일정한 경향을 갖는 input signal을 가하게 되면 그에 따라 출력되는 값도 일정한 값을 지니므로 추정의 정확도가 떨어질 것이다. 그러므로 정확한 추정을 위해 알맞은 input signal을 선택하는 것은 LSM에서 중요한 과정이다. 이러한 조건을 persistence excitation이라 한다. 이는 식 (3)에서 $C_n = \lim_{N \rightarrow \infty} \frac{1}{N} \sum_{t=1}^N \varphi(t) \varphi^T(t)$ 가 positive definite이면 성립되고 이는 C_n 의 모든 eigen value가 양수임이 필요충분조건이다¹²⁾.

스택의 내부 parameter는 직접 측정이 불가능하며 다만 off-line으로 측정하는 EIS값이 실제값에 근접하므로 본 논문에서는 EIS로 측정된 값을 Table 1에 표시하였고 이의 조건으로 matlab의 toolbox simulink를 이용하여 simulation을 진행하였다. Fig. 3의 (a)와 같이 sine wave를 input으로 하였을 경우 eigen value가 음수가 나오고 그에 따라 Fig. 3의 (b)와 같이

Table 1 Circuit known parameters

| Items | R_m | R_a | C_{dl} | f_s | NOD |
|--------|-------|-------|----------|-------|------|
| Values | 0.03 | 0.06 | 0.5 | 1 | 1000 |

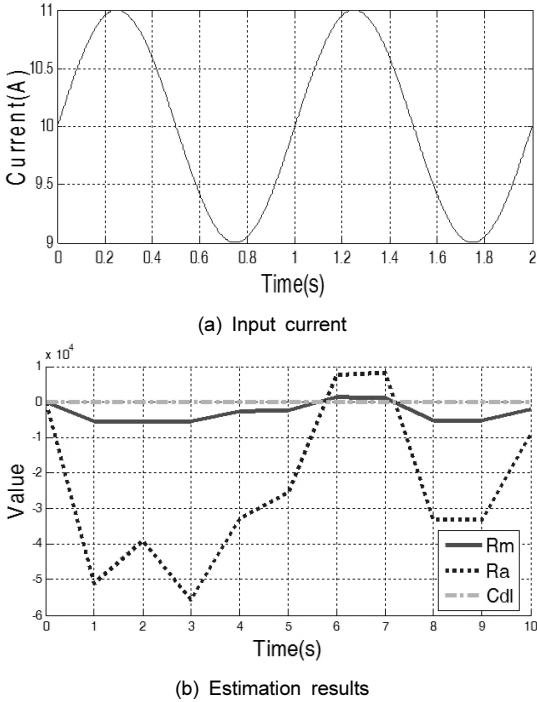


Fig. 3 Parameter estimation using sine wave

parameter 추정이 제대로 이루어지지 않는 것을 확인할 수 있다. 따라서 Fig. 4의 (a) 와 같이 persistence excitation 조건을 만족하면서 여러 가지 주파수를 포함하여 다양한 경향성을 가지도록 square wave를 input으로 하여 simulation을 진행하였다. 이러한 입력의 경우는 C_n 의 모든 eigen value가 양수이며 추정된 parameter는 Fig. 4의 (b)와 같이 설정된 Table 1의 parameter와 유사함을 알 수 있다.

3.2 Simulation results

먼저 stack이 정상상태에 있어서 parameter가 일정하다고 가정하였다. 앞 절에서 구성된 square wave를 이용한 input signal($i(t)$)을 등가회로에 적용하여 $V_{ic}(t)$ 를 수집하였다. 수집된 $i(t)$, $V_{ic}(t)$ 를 이용하여 LSM을 적용한 결과는 Fig. 4의 (b)와 Table 2에 나타내었고 Table 2에는 각 parameter들의 추정 값 및 실제 값 (Table 1)과의 오차율을 표시하였다. Simulation 결과

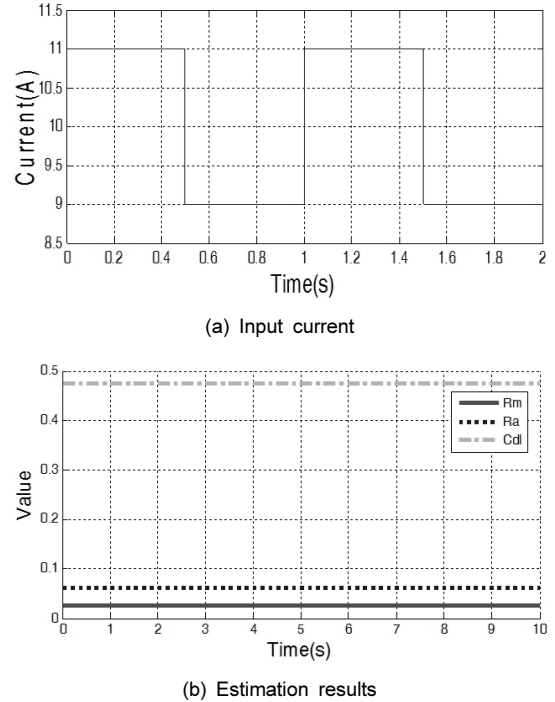


Fig. 4 Parameter estimation using square wave

Table 2 Normal state simulation results

| Items | R_m | R_a | C_{dl} |
|--------|--------------|--------------|--------------|
| Values | 0.028(6.67%) | 0.062(3.33%) | 0.476(4.88%) |

실제 값에 근사하게 오차 3-7% 이내로 추정이 제대로 이루어지고 있는 것을 확인할 수 있고 이는 LSM의 계산과정에서 나타나는 오차와 실제 회로와 등가 회로의 오차에서 기인하는 것으로 판단된다.

다음은 stack 이상상태의 parameter 변화를 monitoring하는 것을 확인하기 위하여 스택의 이상상태를 parameter가 시간의 1차 함수로 $R_m = 0.03 + 0.002t$, $R_a = 0.06 - 0.002t$, $C_{dl} = 0.5 - 0.005t$ 와 같이 변화한다고 임의적으로 가정하고 simulation하였다. Fig. 6에 나타난 바와 같이 LSM을 통한 추정치(Est. R_m , R_a)가 실제 값(Real R_m , R_a)의 변화추이를 잘 따라가는 것을 확인할 수 있다. 그러나 C_{dl} 의 추정값은 실제 값과의 오차를 보이고 있으나 실제값의 변화추이는 따라가고 있음을 알 수 있다. 따라서 LSM은 연료전

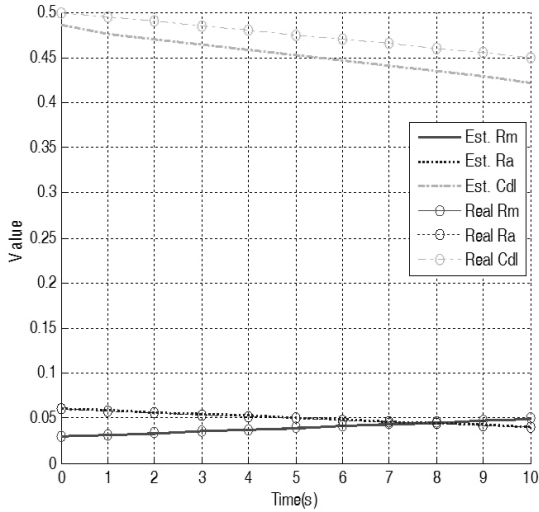


Fig. 6 Abnormal state simulation results

지의 내부 parameter 추정을 통해서 전지의 이상 유무를 파악하는데 유효한 방법이라 할 수 있다.

4. 결 론

- 1) 기존의 equivalent circuit을 통한 parameter 추정 방법으로는 EIS, SRA 등이 있지만 on-line monitoring의 기능에는 부족한 점이 있었다. 본 논문에서는 이를 해결하기 위해 LSM을 이용한 새로운 measurement 법을 제시하였다.
- 2) LSM을 이용하여 simulation을 진행한 결과 정상 상태 일 때 와 이상 상태 일 때의 parameter를 제대로 추정해 냈으므로 실제 stack에 적용하여 같은 결과를 도출해 낼 수 있으면 LSM은 전지의 이상상태 진단법으로 적합하다 할 수 있다.

References

1. H. C. Ju, C. Y. Wang, "Effects of Coolant Channels on Large-Scale Polymer Electrolyte Fuel Cells (PEMFCs)", *International Journal of Automotive Technology*, Vol. 9, No. 2, 2008, pp. 225-232.
2. S. Um, C. Y. Wang, "Three-Dimensional Analysis of Transport and Electrochemical Reactions in Polymer Electrolyte Fuel Cells", *Journal of Power Sources*, Vol. 125, No. 1, 2004, pp. 40-51.
3. J. H. Kim, "Commercializing Technology Development of Bipolar Plates for Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cell", *Trans. of the Korean Hydrogen and New Energy Society*, Vol. 22, No. 3, 2011, pp. 409-414.
4. W. M. Lee, and J. M. Song, "Optimal composition of polymer electrolyte fuel cell electrodes determined by the AC impedance method", *Journal of Power Sources*, Vol. 94, 2001, pp. 78-84.
5. H. Wang, "Diagnostic tools in PEM fuel cell research: Part I Electrochemical techniques", *Science Direct*, Vol. 33, 2008, pp. 1735-1745.
6. D.H. Shin, "A study on On-line Measurement of Water Content for Water Management of PEMFC", *Koreatech*, 2013.
7. N. Fouquet, C. Doulet, and C. Nouillant, "Model based PEM fuel cell state-of-health monitoring via ac impedance measurements", *Journal of Power Sources*, Vol. 159, 2006, pp. 905-913.
8. Y. W. No, "Modeling and parametric studies of PEM fuel cell performance", *Trans. of the Korean Hydrogen and New Energy Society*, Vol. 19, No. 3, 2008, pp. 209-216.
9. L. David, J. S. Yi, and T. V. Nguyen, "Effect of direct liquid water injection and interdigitated flow field on the performance of proton exchange membrane fuel cells", *Electrochimica Acta*, Vol. 43, No. 24, 1998, pp. 3795-3809.
10. L. Ljung, "System identification: theory for the user", *PH PTR*, pp. 204-207.
11. M. Petrinic, and Z. Jakopovic, "Modeling and simulation of PEM fuel cell-power converter system", *International Convention MIPRO*, Vol. 5, 2007, pp. 21-25.
12. G. Michael, B. M. John, "Persistence of excitation in linear systems", *Systems & Control*, Vol. 7, 1986, pp. 351-360.