

수소 버스 용기용 수소 투과량 측정 시스템의 신뢰성 평가 연구

양현석* · 전호병** · 이동훈*** · 공만식****,†

Reliability Evaluation Study of a Hydrogen Permeation Measurement System for 175 L Hydrogen Bus Vessels

Hyunseok Yang*, Hobyung Jun**, Donghoon Lee***, Man-sik Kong****,†

Key Words: Hydrogen permeation test(수소 투과율 시험), Hydrogen concentration(수소 농도), Compressed hydrogen storage system(압축 수소 저장 시스템), Hydrogen bus(수소 버스)

ABSTRACT

This paper provides an analysis of the experimental procedures and results to ensure the reliability of the system manufactured for testing the hydrogen permeability of a 175 L compressed hydrogen container for a hydrogen bus. Based on the hydrogen permeability standard of 6 cc/(h·L), it was injected into the permeability test chamber at 10% intervals, and the permeated hydrogen concentration according to the injected amount was measured and compared with the actual amount of hydrogen permeated. As a result of the experiment, the measured value represented 96.34% of the actual permeation amount, which can be used as basic data for the hydrogen bus vessel permeability test system being built in Korea.

1. 서론

깨끗하고 효율적인 에너지 운반체인 수소는 지속 가능한 에너지 시스템으로 전환하는 데 중요한 역할을 한다. 따라서 차세대 교통수단의 연료로서 주목받고 있으며 국내외 자동차 업체에서는 지난 몇 년 동안 수소연료전지 전기자동차의 상용화를 이루었다. 또한 최근 국내외 중국, 유럽에서 대형 운송수단인 수소 버스, 수소 트럭, 수소 열차 등을 개발, 시연하고 있어 향후 몇 년간 수소 연료 차량의 성장이 예상된다. 이에 기존의 52 L급 이상의 대

용량을 갖는 175 L급 수소 용기의 개발이 동시에 진행되고 있다.⁽¹⁻⁴⁾

기존 연료 차량과 마찬가지로 수소 연료를 사용하는 차량에 대해 높은 수준의 환경보호와 안전이 요구된다. 수소 연료 전지 차량에 관한 글로벌 기술 규정인 UN GTR No. 13⁽⁵⁾은 수소 용기와 부품의 안전 관련 성능을 제시하며, SAE J2579⁽⁶⁾와 같은 산업 표준에서도 수소 용기나 부품의 테스트 요구 사항을 설정하고 있다.

수소를 저장하는 압축 용기는 Type 3 용기와 Type 4 용기로 나뉘며, Type 3 용기는 일반적으로 내부에 금속 라이너와 외부의 탄소 섬유 및 에폭시 수지 복합재 보강구조로 되어 있다. Type 4 용기는 금속 라이너 대신 플라스틱 라이너를 사용한다. 이러한 수소 저장 용기의 성능 검증 방법의 하나로 용기 내 수소 투과율을 평가한다. 수소는 분자 크기가 작으므로 저장 용기의 안전 관점에서 투과 성능의 평가는 매우 중요하다. 특히 Type 4 용기의 라이

* 고등기술연구원, 선임연구원

** 한국가스안전공사, 차장

*** 한국가스안전공사, 부장

**** 고등기술연구원, 수석연구원

†교신저자: mskong@iae.re.kr

E-mail: hsyang@iae.re.kr

너 제질인 플라스틱은 금속재료보다 수소에 대해 더 높은 투과율을 나타내기 때문에 충전 용기의 설계 측면에서도 중요하다.^(7,8) 저장 용기의 수소 투과율이 높더라도 수소 자체는 밀도가 낮아 공기 중으로 쉽게 확산하는 특성으로 인해 일반적으로 외부에 노출된 환경에서의 폭발성은 그리 크지 않다. 또한 수소 용기는 탄소 섬유 복합재료로 제작되기 때문에 충격을 받으면 폭발보다는 찢어진 틈새로 수소 누출이 발생한다. 하지만 저장 용기의 높은 수소 투과율은 차고와 같은 밀폐환경에서 수소 농도의 증가로 인한 폭발 한계를 초과할 수 있다.⁽⁹⁾ 따라서 압축 수소 용기의 수소 투과성 검사가 필요하고 이에 대한 요구 사항은 글로벌 기술 규정 및 산업 표준에 기재되어 있다. (EU) No 406/2010 규정에서는 36 L 이상 용기의 최대 허용 수소 투과율은 공칭 작동 압력의 1.5배, 15°C 환경에서 최소 500시간 동안 6 cc/(h·L)(cc: cubic centimeter, h: hour, L: liter) 이내를 기준으로 한다. UN GTR No. 13 규정에서는 55°C에서 최소 30시간 동안 46 cc/(h·L)로 제시되어 더 극한의 환경에서 용기의 투과율 테스트를 진행한다.^(5,6) 이를 활용하여 고압가스 용기를 평가하는 해외기관의 보고서에서는 기존의 수소 승용차에 쓰이는 52 L급 용기에 대한 수소 투과성 시험 결과를 제공하고 있다.⁽⁶⁾ 하지만 시험 결과를 제외하고 실제로 테스트를 수행하는 검증 시스템과 방법에 대한 지침이나 보고서는 찾아볼 수 없으며, 규정에서 요구하는 시나리오의 비현실성으로 인해 변경 및 폐지가 빈번함에 따라 시험 결과 또한 유효하지 않다. 또한 최근 대형 운송수단인 수소 버스나 트럭, 열차에 적용하기 위해 개발되는 175 L급 수소 용기에 대한 투과율 테스트 방법 및 결과를 제공하는 보고서는 아직 공개되고 있지 않다. 국내에서는 넥소 수소 전지자동차에 52 L급의 Type 4 용기가 적용되고 있으며, 최근에는 수소 버스용 175 L급의 Type 4 용기가 개발되었다. 그러나 Type 4 압축 수소 용기의 안전성 평가를 위한 수소 투과량의 국내 검사 기준 부재로 국내의 용기 제작사 자체 또는 해외기관을 통해 투과량 검사가 이루어지고 있으며, 175 L급 압축 수소 용기의 투과량 검사 시스템 및 신뢰성 평가 사례가 아직 없다.

따라서 본 연구에서는 175 L급 압축 수소 용기의 투과 수소 농도를 실험적으로 측정하기 위한 시스템을 제작하였으며, 제작된 시스템의 신뢰성을 평가하고자 하였다. 시스템 내 최대 허용 투과율 이하의 수소를 주입하여 검출된 수소 농도 값을 사용하여 실제 투과량을 평가하고, 제작된 시스템의 신뢰성 평가를 위한 실험적인 방법과 기초 데이터를 제시한다.

2. 실험 방법

압축 수소 용기의 용량과 관계없이 수소 투과율의 공인 시험은 앞서 소개한 글로벌 기술 규정을 바탕으로 진행된다. 즉 밀폐 공간에 거치된 용기 내부에 고순도 수소가스만 사용하여 700 bar 이상 최대 1,050 bar 까지 충전 가압 후 500시간 동안 유지하면서 용기 표면으로부터 밀폐 공간으로 누출되는 수소량을 가스 크로마토그래피로 평가한다. 하지만 실험실 단위에서는 국제 규정에서 규정한 압력제어가 불가능하고 실험 공간 및 시간, 안전상의 문제가 발생한다. 따라서 이를 개선하고 현실적인 실험환경을 반영하기 위한 투과율 측정 시스템 개발이 필요하다.

Fig. 1은 본 연구에서 개발한 수소 용기의 투과율 측정 시스템 개요 및 시험 챔버, 수소 버스용 압축 수소 용기를 나타낸다. 밀폐 공간의 구현, 투과율 측정 정확도 및 신속성을 확보하기 위해 압축 수소 용기보다 약간 큰 형태의 알루미늄 챔버를 제작하였다. 챔버 내부 중앙에 수소 용기를 놓혀 거치하였으며, 거치 방향의 상하 간격은 각각 19 mm로 유지하였다. 앞서 언급한 바와 같이 실험실 환경에서는 용기 내부에 수소의 고압 충전이 불가하다. 따라서 용기에서 투과된 수소가 챔버와 용기 사이에 유동하는 환경을 구성하고 챔버에서 배출되는 수소 농도를 측정하게 되면 투과된 수소 농도에 따른 압축 수소 용기의 수소 투과율을 반대로 계산할 수 있다. 따라서 본 실험에서는 압축 수소 용기가 거치된 챔버 내부에 안전을 위해 5% 수소가 혼합된 질소가스를 질량 유량제어기로 챔버 하부에 공급하였다. 이때 (EU) No 406/2010에서 규정하는 수소의 최대 허용 투과율은 6 cc/(h·L)이며, 이를 100% 기준으로 삼아 혼합가스 내 수소 주입량을 10% 간격으로 변화시켜 압축 수소 용기의 수소 투과율에 따른 수소 농도의 검량선을 확보하고자 하였다. 또한 챔버 내 혼합가스 공급 시 내부의 압축 수소 용기에 수소가 역으로 침투하는 것을 방지하기 위해 용기 내부에는 7 bar의 공기를 주입하였다.

챔버 내부에 주입된 혼합가스의 수소 운반 및 배출을 위해 고순도 질소를 챔버 상부에 일정한 유량으로 공급하였다. 따라서 챔버 반대편 하단에서는 고순도 질소와 5% 수소가 혼합된 질소의 혼합가스가 배출되며, 혼합가스 내 수소 농도를 정확하게 측정하기 위해 $\pm 2\%$ 의 오차범위를 갖는 3개의 수소 센서(가스 분석기, 가스 크로마토그래피 및 누수 검지기)를 보정 후 측정에 사용하였다. 수소 농도는 센서의 ppm 농도가 일정 시간 유지되었을 때의 값으로 기록하였으며 이러한 일련의 절차는 PC로 제어하였다.

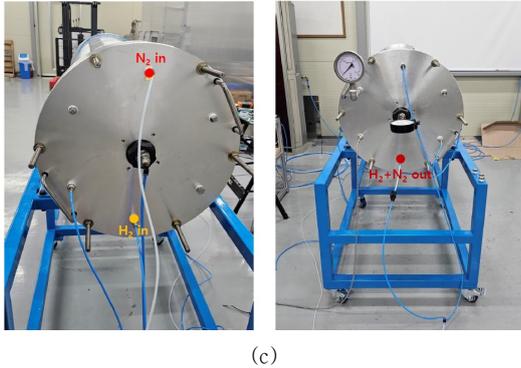
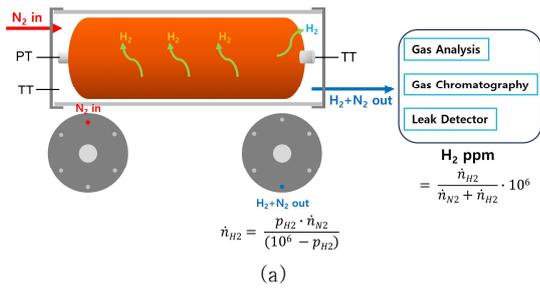


Fig. 1 (a) schematic diagram of hydrogen permeation measurement test, (b) permeation test chamber, and (c) gas inlet and concentration measurement location in the chamber

투과량 측정을 위한 환경 온도는 다양한 지역에서 표준화된 시험 조건을 제공하고자 $25 \pm 1.5^\circ\text{C}$ 로 유지하였다. 앞서 기술한 바와 같이 유럽 규정에서는 15°C 에서 최대 $6 \text{ cc}/(\text{h}\cdot\text{L})$ 의 투과 허용률을 제시하지만, 이는 해당 규정을 제안한 국가의 기후환경을 기반으로 한다.⁽⁶⁾ 또한 독일의 GASTEF에서는 $25 \pm 1.5^\circ\text{C}$ 의 온도 조건에서 투과성 테스트를 시행하는데 수소 투과율은 온도 증가와 비례하기 때문에 기존 규정에서 요구하는 온도에서의 최대

허용 투과율보다 엄격한 기준으로 시험을 할 수 있기 때문이다.

3. 결과 및 토의

175 L 압축 수소 용기의 수소 투과량을 측정하기 위해 먼저 챔버 내에서 고순도 질소를 이용하여 가스 사용 배관 및 잔여 가스 등을 환기하고 제거하였다. 이후 압축 수소 용기의 수소 투과율 pass/fail 기준 수소량인 $6 \text{ cc}/(\text{h}\cdot\text{L})$ 를 100%로 하여 밀폐 챔버에 10% 간격으로 수소 주입량을 증가시키면서 배출되는 수소 농도를 측정하고자 하였다. 그러나 주입량 대비 측정되는 수소 농도가 다를 수 있으며, 이는 제작된 챔버를 포함한 수소 센서 등 투과율 측정 시스템의 오차에 해당할 수 있다. 따라서 실험 전 수소와 질소 혼합가스 주입량에 따른 예상 수소 농도의 계산이 필요하다. Table 1은 175 L 용기가 거치된 챔버 내부에 5% 수소와 질소의 혼합가스를 주입했을 때 이상적인 수소 농도($H_2, \text{PPM}_{\text{ideal}}$)를 계산한 값과 측정값을 나타낸다. 시간당 수소 주입량을 분당 가스 주입량으로 단위 변환 후, 175 L 용기의 부피를 활용하여 혼합가스의 수소 질량을 계산하였다. 이후 수소의 비중 및 물 질량 값과 기체 방정식을 활용하여 수소의 ppm 농도를 계산하였다. 이때 퍼지를 위한 고순도 질소 유량은 600 scm 으로 공급하는 것으로 가정하였는데, 이는 고순도 질소 유입에 따른 투과된 수소의 희석으로 인해 수소 센서의 감지에 영향을 주기 때문에 수소 센서의 감지 범위(최대 $20,000 \text{ ppm}$)를 기반으로 설정하였다. 이를 기준으로 본 연구에서 제작한 투과율 시스템에서 목표 수소 주입량의 10%인 $0.6 \text{ cc}/(\text{h}\cdot\text{L})$ 의 수소를 용기에 주입하였을 때 예상되는 투과 수소 농도는 $2,771.53 \text{ ppm}$ 이며, 50%일 때는 $11,353.76 \text{ ppm}$, 100%에서는 $18,523.81 \text{ ppm}$ 으로 계산할 수 있다.

계산 결과를 기반으로 수소 용기의 투과량 측정 실험을 실시하였다. 먼저 투과량 측정 시스템의 챔버에 고순도 질소를 주입하였다. 질소의 농도가 챔버 내부에 균일하게 유지되는 시점에 도달하기까지 16시간이 소요되었으며, 이때 수소 센서에서 검출된 수소 농도는 755 ppm 이다. 따라서 이 값을 영점으로 설정하여 챔버 내 수소 주입 후 측정되는 값의 보정값으로 활용하였다. 이어서 목표 수소 주입량의 10%에 해당하는 $0.6 \text{ cc}/(\text{h}\cdot\text{L})$ 의 수소를 챔버에 주입하면 수소 농도가 서서히 상승한다. 약 5시간 30분이 지난 시점부터 측정 수소 농도는 $3,404 \text{ ppm}$ 으로 일정하게 유지되었으며, 이후 30분간 유지하여 농도 변화가 없음을

Table 1 Calculated and measured gas concentration in chamber

Target injection amount of hydrogen											
%	0	10	20	30	40	50	60	70	80	90	100
cc/h·L	0	0.6	1.2	1.8	2.4	3.0	3.6	4.2	4.8	5.4	6.0
cc/m·L	0	0.01	0.02	0.03	0.04	0.05	0.06	0.07	0.08	0.09	0.1
Gas flow rate and hydrogen concentration values in the chamber											
Injected H ₂ flow rate (sccm)	0	1.75	3.5	5.25	7	8.75	10.5	12.25	14	15.75	17.5
Injected mixed gas flow rate (H ₂ 5% in N ₂ , sccm)	0	35	70	105	140	175	210	245	280	315	350
High purity N ₂ flow rate (N ₂ , sccm)	600	600	600	600	600	600	600	600	600	600	600
H ₂ ideal ppm (calculate)	0	2,771.53	5,253.42	7,488.82		11,353.76			15,998.07	17,309.25	18,523.81
H ₂ real ppm (measurement)	755	2,649	5,082.5	7,210	-	10,937	-	-	15,413	16,692.5	17,831.25

확인하였다. 따라서 0.6 cc/(h·L)의 수소를 용기에 주입하면 보정 값을 적용하였을 때 2,649 ppm의 실제 측정값을 도출할 수 있다.

같은 방법으로 가스 주입 및 안정화 시간을 고려하여 주입량 증가에 따른 수소 농도를 측정하였으며, 계산값에서 도출된 수소 농도와 실제 측정된 수소 농도와의 그래프 기울기를 비교하여 수소 센서의 신뢰도를 평가하였다. 수소 주입량에 따른 수소 농도의 안정화 시간을 고려하여 0~50% 구간 중 40% 구간을 생략하여 수소 농도를 측정하였다. Fig. 2는 40%의 주입량 조건 생략 시 측정된 수소 농도 값의 추세선을 그려 기울기를 비교한 것이다. 10% (0.6 cc/(h·L)), 20%(1.2 cc/(h·L)), 30%(1.8 cc/(h·L))의 수소량을 챔버에 주입하였을 때의 수소 농도는 보정 후 각각 2,649 ppm, 5,082.5 ppm, 7,210 ppm으로 나타난다. Table 1의 계산값을 활용하여 0~30% 구간의 이상적인 수소 주입량의 기울기는 Fig. 2(a)와 같이 0.9645로 계산되었으며, 실험을 통해 측정된 값을 기준으로 40% 구간을 제외한 0~50%의 수소 주입 시 직선으로 나타나는 추세선 기울기는 0.9638로 구할 수 있다. 즉 40%의 수소 주입량 조건을 제외했을 때 계산값과 약 0.07%의 기울기 값 차이가 존재하며, 이는 앞서 언급한 수소 농도 측정 센서의 오차범위(±2%) 이내이므로 신뢰성이 확보됨을 알 수 있다. 따라서 실험 시간을 고려하여 60%, 70% 구간을 제외한 80%, 90%, 100%의 총 7개 구간의 수소 주입량에 따른 수소 농도를 측정하였을 때의 기울기는 Fig. 2(b)와 같이 0.9636으로, 제작한 투과율 시스템에서 투과 수소

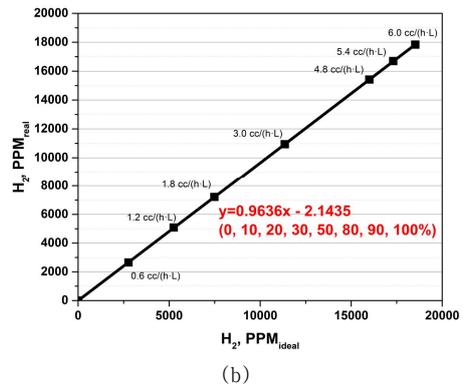
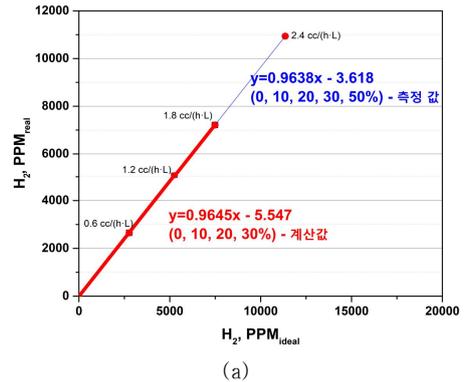


Fig. 2 (a) Comparison of slopes between measured hydrogen concentration and calculated values when omitting the hydrogen injection section and (b) Graph of measured hydrogen concentration compared to hydrogen injection concentration in the chamber

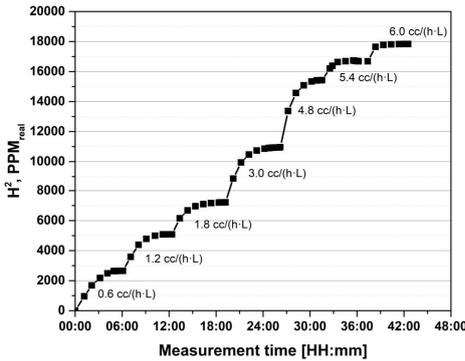


Fig. 3 Change in hydrogen concentration in the chamber according to measurement time

농도는 실제 주입량의 약 96.36%의 신뢰도를 갖는다는 것을 실험적으로 도출하였다.

Fig. 3은 챔버 내 수소 주입량 조건별 시간에 따른 수소 농도 측정값의 변화를 나타낸다. 주입량 조건과 관계 없이 챔버 내 수소 주입 시 급격한 농도 증가 후 점차 포화하면서 일정하게 유지한다. 본 실험에서는 7가지 수소 주입 조건에 따른 수소 농도를 측정하는데 총 42시간 32분이 소요되었으며, 이는 챔버의 부피와 형상, 수소 주입 유량, 센서의 민감도에 따라 달라질 수 있다. 이는 실제 용기의 투과율 측정에 걸리는 시간을 작업자에게 제공할 수 있다.

4. 결론

본 논문에서는 수소 버스용 175 L급 압축 수소 용기의 투과율 측정을 위해 제작한 시스템의 신뢰성 확보를 위한 실험적 방법을 제시하였다. 실험 결과에서 수소 주입량에 따른 투과된 수소 농도는 약 96.36%의 측정 신뢰성을 갖는 것으로 확인하였다. 온습도를 제어할 수 있는 대형 챔버 내에서 투과율 측정 시스템을 운용함으로써 국제 규정에서 요구하는 투과율 시험 기준을 충족시키고, 투과된 수소 농도를 측정하여 175 L급 압축 수소 용기의 신뢰성을 확보하는 데 도움이 될 수 있다.

또한 투과율 측정 방법을 제시함으로써 시험 수행자에게 투과율 시스템의 설계와 실행에 대한 기준을 제공한다. 다양한 용량의 압축 수소 용기 시험 시, 침투 챔버의 최적 설계에 따라 투과율 측정 시간과 비용을 줄이는 데 도움이 될 뿐만 아니라, 압축 수소 용기 제조사에게 용기의 불량률을 평가하는 데 활용될 수 있다.

본 논문에서는 수소 주입 반대편의 챔버 하단에서 질소와 함께 배출되는 수소 농도를 측정하였으나, 수소 주입 및 배출 위치에 따라서 측정되는 수소 농도의 정밀도가 달라질 수 있다. 따라서 향후 연구에서는 수소 주입 및 배출 위치에 따른 수소 농도를 측정하여 투과율 측정 시스템의 정밀도를 더욱 향상시키고, 용기별 수소 투과율 데이터 축적을 통한 시스템의 신뢰성을 강화하는 방향으로 노력이 필요하다.

후 기

본 연구는 국토교통부/국토교통과학기술진흥원의 지원으로 수행되었습니다(과제번호 22HBST-C158067-04).

참고문헌

- (1) 김경진, 신재호, 한경희, 한현민, 인정민, 김시우, 2022, 수소버스 수소저장용기의 측면충돌 안전성 평가방법 연구, 자동차안전학회지, 제14권, 제4호, pp. 113~119.
- (2) 임서현, 장정아, 2022, 조건부가치측정법을 이용한 수소버스 연료장치 안전성 평가 및 검사기술에 대한 투자 편익 분석, 자동차안전학회지, 제14권, 제4호, pp. 43~52.
- (3) 박병직, 김양균, 임옥근, 2023, 수소충전소 및 수소자동차의 사고 시나리오 개발, 자동차안전학회지, 제 15 권, 제1호, pp. 27~34.
- (4) 김경진, 신재호, 한경희, 인정민, 심소정, 김시우, 2021, 수소버스 측면충돌 시험방법 연구, 자동차안전학회지, 제13권, 제4호, pp. 92~98.
- (5) The United Nations Economic Commission for Europe (UNECE), Global Technical Regulation No. 13 (Hydrogen Fuel Cell Vehicles), ECE/TRANS/180/Add.13, <https://unece.org/>.
- (6) R. Oritz Cebolla, B. Acosta Iborra, F. Harskamp, 2023, Permeation tests in type-approval regulations for hydrogen fuelled vehicles: Analysis and testing experiences at the JRG – GASTEF facility, International Journal of Hydrogen Energy Vol. 48, pp. 17923~17939.
- (7) Xiang Li, Qianghua Huang, Yitao Liu, Badis Zhao, Jiepu Li, 2023, Review of the Hydrogen Permeation Test of the Polymer Liner Material of Type IV On-Board Hydrogen Storage Cylinders, Materials

- Vol. 16, 5366.
- (8) Ying Su, Hong Lv, Wei Zhou, Cunman Zhang, 2021, Review of the Hydrogen Permeability of the Liner Material of Type IV On-Board Hydrogen Storage Tank, World Electric Vehicle Journal, Vol. 12, 130.
- (9) Agnieszka Weronika Lach, 2022, Hydrogen safety in confined spaces, University of South-Eastern Norway, Doctoral dissertation no. 130.