



# THEME 05

## 연료전지 자동차의 고압수소저장에 관한 국제 동향

Kiyoshi Yokogawa | 한국표준과학연구원 재료측정표준센터, 초빙연구원 | e-mail : kannonsama@mwb.biglobe.ne.jp  
신형섭 | 안동대학교 기계설계공학과, 교수 | e-mail : hsshim@andong.ac.kr

연료전지 자동차의 70MPa 고압수소저장을 위한 기술 개발이 진행되고 있다. 고압수소저장에서 재료 문제는 고압 수소가스에 재료가 노출되는 데 따른 수소취화가 중요하여 그에 관한 연구가 진행되고 있다. 이 글에서는 차량탑재 용기와 수소 스테이션의 안전성 확보를 위한 규제를 비롯한 수소취화에 대응하여 그 재료 규제에 관한 국제 동향을 소개한다.

### 연료전지 자동차의 국제 동향

지구 온난화라고 하는 환경문제의 대책으로 수소를 이용한 연료전지 자동차의 개발이 국제적으로 진행되고 있다. 연료전지는 1842년 영국의 William R. Grove에 의해 발명되었지만 곧 바로 실용화에 이르지 못했다. 연료전지 자동차의 시작은 1993년 Geoffrey Ballard(1932~2008)에 의해 주도된 연료전지 자동차에의 응용이라고 할 수 있다. 원래 연료로 35MPa 고압수소 저장이 개발된 이후 항속 거리를 늘리기 위해 70MPa고압수소 저장의 개발이 진행되고 있다. 동시

에 액화 수소에 의한 저장도 개발이 진행되고 있다. 그림 1은 Toyota 자동차의 연료전지 자동차를 보여주고 있다. 또한 수소이용 자동차는 연료전지 자동차 외에 엔진에 직접 수소를 분사하여 연소시키는 자동차도 있다. 그림 2는 독일 BMW AG 사의 수소 직접 연소형 자동차를 보여주고 있는데 액화수소를 연료로 하고 있다. 수소를 직접 연소시키는 자동차로는 그 외에도 Mazda의 수소 로터리 엔진 자동차가 있다.

이러한 고압수소 및 액화수소는 공공의 복지상 안전 문제가 크기 때문에 기술 개발에 있어서 안전이 가장 중요한 과제로 자리매김 되어 안전을 위한 규제가



그림 1 연료전지 자동차



그림 2 수소 직접연소형 자동차

검토되어 왔다. 우선, 연료전지 자동차 연료저장의 경우, 자동차가 세계를 무대로 달리는 관계로 세계가 하나의 규제를 목표로 당사자간 협의가 이루어지고 있으며, 나아가 유엔으로 무대를 옮겨 협의가 진행되고 있다. 고압수소 저장(세계 각국의 고압가스 규제법에서는 압축수소와 액화수소 모두를 대상으로 하고 있어, 양자를 포함하여 고압수소라 칭한다.)의 규제는 나라마다 크게 다르기 때문에 향후 각국에서 국제표준과의 조정이 이루어지게 되리라 생각한다. 한편, 연료전지 자동차에 연료를 직접 공급하는 수소 스테이션은 각국 내에 설치되는 관계로 그 나라의 법률에 따라 규제를 받게 있다. 이 글에서는 연료전지 자동차의 고압수소 저장을 둘러싼 최근의 국제 동향에 대하여 설명한다.

### 연료전지 자동차의 고압수소저장에 대한 규제의 국제적 동향

연료전지 자동차에 탑재되는 자동차 용기는 경량화가 최대 과제로 현재 알루미늄 합금을 라이너로 한 섬유강화 복합용기와 플라스틱을 라이너로 한 섬유강화 복합용기가 개발되어 왔다. 그림 3은 JFE 컨테이너 사

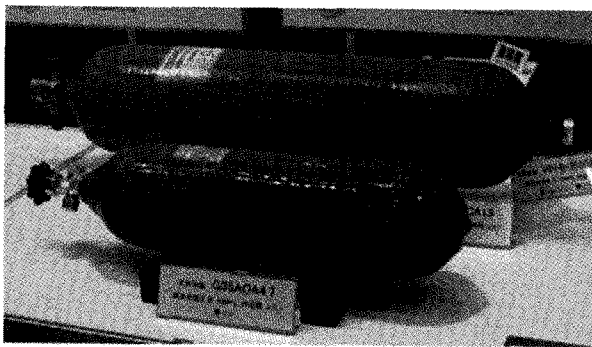


그림 3 압축수소가용 차량탑재 용기

의 압축수소 가스용 자동차 용기를 보여주고 있다. 탄소섬유로 감아서 통상 검게 보이지만, 일본 고압가스 보압법의 규정에 따라 수소 이용을 위해 적색으로 칠해져 있다. 이들 차량탑재 용기의 규제는 미국 SAE(Society of Automotive Engineers)에서 제안되어 각국이 개별적으로 절충을 하고 있다. 미국이 제시한 70MPa 용기의 시험 내용을 보면 기본적으로 실제 가스에 의한 가압, 온도 부하시험 후에 액압으로 파열시키고 그 파열압력을 평가하는 방법이다. 이것은 제품 전체 성능 시험으로 실 가스를 사용하는 한 현재 시점에서 재료 개별 시험은 물론 재료에 대한 규제도 없는 실정이다. 어떠한 시험방법을 채택하게 될지 앞으로 의견을 모아가야 할 것이다. 수소 스테이션의 경우, 수소가스용은 수소원료 제조장치, 압축기, 축압기, 냉각기, 유량계, 디스펜서로 구성되어, 가솔린 주유소를 기반으로 한 구조로 되어 있다. 액화수소용은 단열 저장조, 보일오프 가스처리 장치, 디스펜서 등으로 구성되어 있다. 휘발유 주유 시와 마찬가지로 서양에서는 운전자가 직접 주유하는 셀프 스탠드가 시행되고 있다. 수소 스테이션도 자동차 용기에 맞추어 35MPa이 먼저 개발되었고 이어 70MPa이 개발되었다. 35MPa용 수소 스테이션의 특징은 축압기에 있는데, 다양한

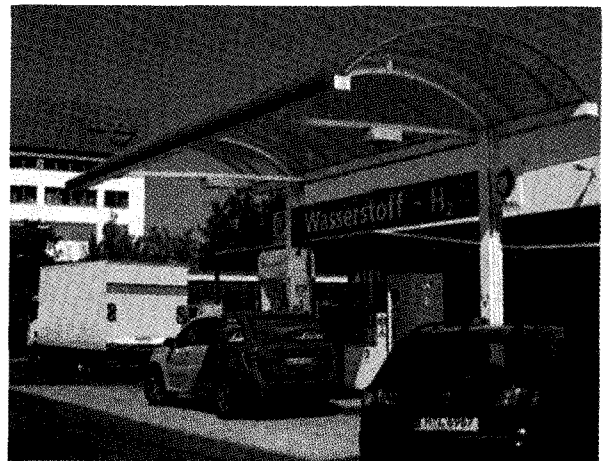


그림 4 독일 베를린의 종합 수소스테이션

축압기가 개발되어 있다. 70MPa용 수소 스테이션의 특징은 압축기에 있고, 대용량 압축기가 개발되고 있다. 특히, 독일의 Linde AG의 대용량 새로운 압축기의 개발은 주목을 받고 있다. 축압기의 경우, 금속 용기에 의한 축압기 외에 자동차 용기를 보다 고압 대형화한 복합 용기가 개발되고 있다. 특히 금속 용기는 수소에 의한 손상(수소 취화) 문제가 있기 때문에 기존의 고압가스 설비에 대한 규제 외에도 재료 규제가 검토되고 있다. 따라서 수소 취화가 없다고 하는 플라스틱 라이너의 복합용기 제조업체가 이를 사업 기회로 여기고 개발에 힘을 쏟고 있다. 그외 고압수소 저장 관련 시설은 기존 기기의 대형화, 대용량화가 진행되고 있다. 그림 4는 독일 베를린에 있는 종합 수소 스테이션을 보여주고 있다. 여기는 35MPa/70MPa의 고압 수소 가스와 액화수소를 함께 판매하고 있다. 이들 고압가스 설비의 규제는 각국에서 각각 다른 법령으로 정해져 있다. 한편 미국기계학회(ASME)에서는 축압기용으로 이미 수소취화를 고려한 코드를 발표하고 있지만, 아직 모든 고압가스 부품까지 검토가 진행되고 있지는 않다.

### 수소 재료의 당면과제

고압수소 저장설비의 구성 재료로서 자동차 탑재용기에는 알루미늄 합금과 플라스틱이 라이너 후보재료로 꼽히고 있다. 또한 용기에 부착하는 금속 부품은 자동차 용기 전용부품도 있지만, 수소 스테이션과 같은 부품도 있어, 수소 스테이션과 함께 검토가 필요하다. 한편 수소 스테이션은 부품별로 사용 재료가 검토되고 있다. 압축기는 저합금강 및 철기 합금, 축압기는 저합금강, 알루미늄합금 및 플라스틱 라이너, 그외 고압가스 부품은 스테인리스강과 니켈기 합금이 검토되고 있다. 이들 재료는 수소 중에서 사용되기 때문에 수소취화가 안전상 문제가 되고 있다. 수소취화는 현

재 세 종류로 분류되어 있지만, 더욱이 네 번째 수소취화도 제안되고 있다. 그들을 살펴보면 다음과 같다.

(1) 수소반응취화(Hydrogen Reaction Embrittlement : HRE)는 수소와 재료가 화학 반응하는 것에 의한 취화로, 대표적인 예가 철강 재료의 탄소와 수소가 반응하는 수소 침식이다. (2) 내부가역수소취화(Internal Reversible Hydrogen Embrittlement : IRHE)는 재료를 용해할 때 주위로부터 들어 온 물의 분해, 재료 사용 중에 부식에 의한 물 분해와 같이 어떠한 원인으로 외계로부터 침입한 수소에 의한 취화이다. (3) 수소가스취화(Hydrogen Gas Embrittlement : HGE)는 재료가 수소 가스 분위기하에 있으면 외계로부터 재료를 향해 수소 분자가 날아와 표면에 흡착되어 수소원자로 분해하여 재료 내로 침입한다. 이들 수소원자에 의해 균열 생성, 성장을 조장하는 현상이지만, 내부 가역 수소취화와는 율속 단계가 다르기 때문에 관측되는 현상은 다르다. 균열의 발생기점은 재료 표면이다. (4) 수소유기석출취화(Hydrogen-Induced Precipitation Embrittlement : HIPE)는 재료가 수소 분위기하에서 응력을 받게 되면, 재료 내부로 침입한 수소가 석출현상에 영향을 미쳐서 석출물의 형태가 변화하고 그에 따라서 기계적 성질이 변하는 현상이다.

이들 수소취화현상에 대응하여 고압수소 저장에 대한 규제가 검토되고 있다. 수소반응취화의 경우, ASME는 압축기와 같은 기기에서 200℃ 초과가 예상되기 때문에 수소반응 취화가 일어나지 않도록 하기 위해 철강재료는 미국석유협회(API) 규정을 따르도록 되어 있다. 수소반응취화 이외에 내부가역 수소취화 및 수소가스취화가 함께 고압수소 저장에서는 중요하다. 내부가역 수소취화시험은 역사도 길고, 시험장치가 용이할 뿐만 아니라 부식 분야에서 확립된 시험법이다. 하지만 수소가스취화 시험은 고압의 수소를 쓰기 때문에 시험 장비가 대규모이고 또한 설비를 설치하기 위한 전용 시설도 필요하다. 한국의 경우, 한국

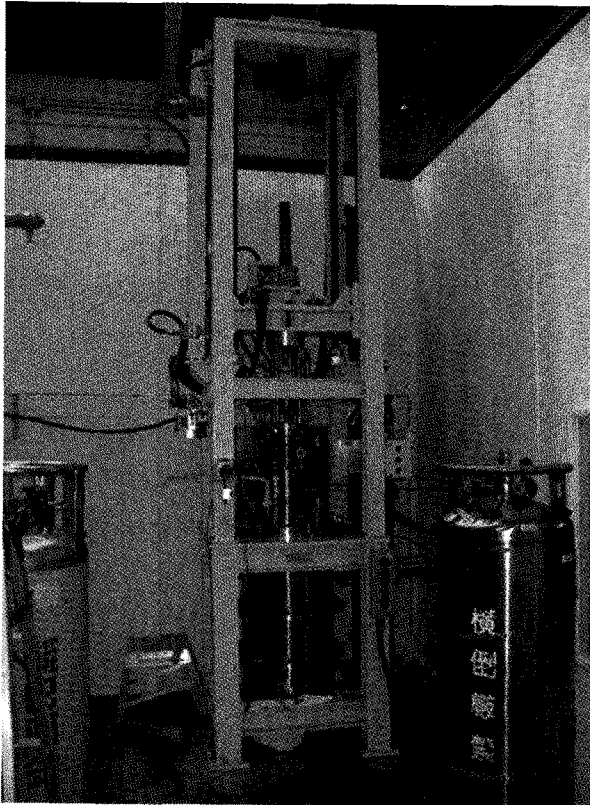
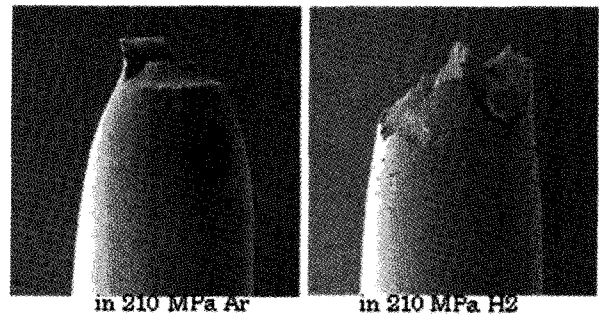


그림 5 저온고압수소 분위기하 낮은 변형률속도형(SSRT)재료시험장치(상용 온도: 77K, 상용 압력: 70MP)

표준과학연구원(KRISS)에 이미 시설을 완비하였고, 120MPa 시험 장치를 설치하여 연구를 진행 중에 있다.

일본에서는 연료전지 자동차 개발의 일환으로, 인프라 완비를 위해 국가 프로젝트로 고압 재료 시험설비의 증강을 도모하였다. 이에 따라 대학, 독립행정법인 연구 기관, 민간기업의 연구기관 등 합계 6개 기관이 시설을 보유하고 있다. 그림 5는 일본 AIST에서 구축한 저온고압수소분위기하 낮은 변형률속도형(SSRT) 재료시험장치를 보여주고 있다. 이들 설비를 이용한 수소가스취화 사례로서, 오스테나이트계 스테인리스강인 JIS SUS316과 SUS316L 재료의 시험결과를 그림 6에 나타내고 있다. 이들 Type 316오스테나이트

SUS316



SUS316L

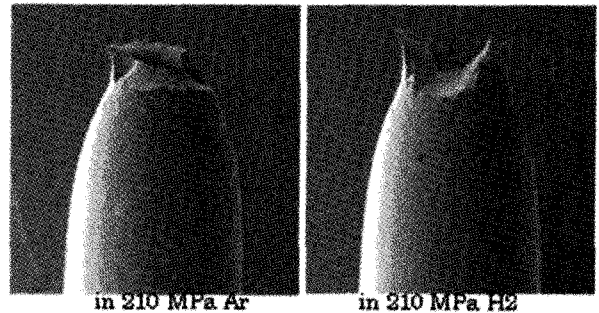


그림 6 SUS316 및 SUS316L의 실온, 210MPa알곤(좌) 및 수소(우) 가스 중에서 인장파단한 시험편의 외관

계 스테인리스강은 세계적으로 고압수소저장 설비에 이용이 기대되고 있는 금속재료이지만, 수소취화의 화학성분 의존성이 공업규격에서 규정하고 있는 화학 성분 범위에서 크게 변화하기 때문에 재료 규제가 검토되고 있는 중이다. JIS에서는 SUS316의 Ni 함유량은 10~14%이고, SUS316L에서는 Ni 함량이 12~15%이다. 공시재인 SUS316에서는 Ni함량이 10%이고, SUS316L에서는 Ni 함량이 12%이었다. 사진에서 볼 수 있듯이 SUS316과 SUS316L의 알곤가스 중에서 파단한 시험편에는 표면균열이 보이지 않고 양호한 연성을 나타내고 있다. 그런데 수소가스 중에서는 SUS316에서는 표면균열이 다수 확인되고 있는데 비하여 SUS316L에서는 볼 수 없다. 이러한 수소가스취화는 인장변형에 따

표 1 NASA의 각종재료에 대한 고압수소가스 취화 표

Susceptibility of Materials to Embrittlement in Hydrogen at 10,000 psi and 72 °F\*

Material	Strength ratio, H <sub>2</sub> /H <sub>e</sub>		Unetched ductility			
	Notched <sup>b</sup>	Unnotched <sup>d</sup>	Elongation, %		Reduction of Area, %	
			He	H <sub>2</sub>	He	H <sub>2</sub>
Extremely embrittled						
18Ni-250 Maraging Steel	0.12	0.68	8.2	0.2	55	2.5
410 Stainless Steel	.22	.70	15	1.3	60	12
1042 Steel (quenched and tempered)	.22	---	---	---	---	---
17-7 pH Stainless Steel	.23	.92	17	1.7	45	2.5
Fe-8Ni-4Co-0.28C	.24	.86	15	.5	67	13
H-11	.25	.57	8.8	0	30	0
René 41	.27	.84	21	4.3	29	11
Electro-Formed Nickel	.31	---	---	---	---	---
4140	.40	.96	14	2.6	48	9
Inconel 718	.46	.93	17	1.5	26	1
440C	.50	.60	---	---	3.2	0
Severely embrittled						
Ti-6Al-4V (STA)	0.58	---	---	---	---	---
430F	.68	---	22	14	64	37
Nickel 270	.70	---	56	52	89	67
A515	.73	---	42	29	67	36
HY-100	.73	---	20	18	75	63
A372 (class IV)	.74	---	20	19	52	18
1042 (normalized)	.75	---	---	---	59	27
A533-B	.78	---	---	---	66	33
Ti-6Al-4V (annealed)	.79	---	---	---	---	---
AISI 1020	.79	---	---	---	68	45
HY-50	.80	---	---	---	70	60
Ti-5Al-2.5Sn (SLB)	.81	---	---	---	45	39
Armco Iron	.86	---	---	---	83	50
Slightly embrittled						
304 BLC Stainless Steel	0.87	---	---	---	78	71
205 Stainless Steel	0.89	---	---	---	78	75
Be-Cu Alloy Z5	---	---	---	---	72	71
Titanium	0.95	---	---	---	61	61
Negligibly embrittled						
310 Stainless Steel	0.93	---	---	---	64	62
A286	.97	---	---	---	44	43
7075-T73 Aluminum Alloy	.98	---	---	---	37	35
316 Stainless Steel	1.00	---	---	---	72	75
OFHC Copper	1.00	---	---	---	94	94
NARloy-Z	1.10	---	---	---	24	22
6061-T6 Aluminum Alloy	1.10	---	---	---	61	66
1100 aluminum	1.40	---	---	---	93	93

\* Chandler, W. T. and R. J. Walker. "Testing to Determine the Effect of High Pressure Hydrogen Environments on the Mechanical Properties of Metals," in *Hydrogen Embrittlement Testing*, ASTM

라 시험편 표면에 균열이 생성, 성장하여 파단에 이르는 것이 특징이다. 이러한 SUS316 및 SUS316L의 수소 가스 취화 감수성의 차이는 화학성분에 의존한다. 그런데 특히 SUS316L의 공업규격은 나라에 따라서 화학 성분 범위가 달라서, 예를 들면, 일본과 한국은 SUS316L에서는 Ni) 12%, 미국은 Ni) 10%, 유럽에서는 Ni) 11%이다. 이러한 Ni 성분의 차가 수소가스 취화 감수성을 크게 변화시킨 것이다. 덧붙여서 미국 ASTM A276에 따른 Type316L(Ni=10%)는 앞에서 언급한 JIS SUS316과 같이 수소가스 취화를 일으키게 된다. 또한 제조 과정에서 대기 용해인지 진공 용해인지

에 따라서 재료 중의 화학성분이 달라져 수소가스취화 감수성이 변하게 된다. NASA는 최근 퇴역한 우주 왕복선에 액화

수소를 연료로 하는 엔진을 3기 탑재하고 있고, 그 엔진 개발 시 수소가스취화 연구를 대규모로 실시하였다. 그때 재료 시험은 인장시험을 비롯하여, 파괴인성시험과 피로균열진전시험 등 많은 시험을 실시하였다. 그 성과는 많은 보고서로 나와 있어 연료전지 자동차의 고압수소 저장에 대한 재료 규제에도 큰 영향을 미치고 있다. 그 일례로서 재료스크린 시험으로 인장시험 결과 얻어진 표는 재료 지침으로서 세계적으로 이용되고 있다. 표 1에 NASA의 고압수소 가스 취화 표를 보여주고 있다. 그러나 로켓 엔진과 연료전지 자동차의 고압수소 저장은 기기의 부하 상태가 달라서 그에 따른 기계적 성질 평가와 수명예측이 필요하다. NASA의 표에서, Type 316스테인리스강은 아래쪽에 기재되어 있는데, 10,000psi(약 70MPa)의 수소와 He가스하에서 얻어진 강도의 상대비가 1.0으로 수소의 영향이 없는 것으로 되어 있다. 단면수축률(Relative reduction of area)은 He 중이 72%, 수소 중이 75%로 상대 단면수축률은 75/72=1.04이다. 이들 Type 316강에서는 Ni) 12%이었다. 이처럼 미국의 항공우주부문에서는 Type316강의 Ni 양은 큰 값을 갖도록 되어 있는데 이는 ASTM의 범위 내에 들어간다. 일본공업기술원 추코쿠산업기술연구소(현 산업기술종합연구소 추코쿠센터)에서는 H-II로켓 개발에서 NASA와 비교하면 소규모이지만 유사한 재료연구를 실시하였고 그 결과를 공동 연구 보고서로 발표하고 있다. 산업기술종합연구소(AIST)는 그 후에도 연구를 진행하여, 일본산 재료와 미국산 재료에 대해 검토하여 NASA와 마찬가지로 AIST 수소가스 취화 표를 정리하였고 그 일부를 표 2에 나타내고 있다.

표 2는 연료전지 자동차의 70MPa 고압수소 저장을 고려하여 70MPa 이상 압력에서 결과만 나타내고 있

다. 표에서 수소의 영향을 인장특성 중 상대 단면수축률로 표시하고 있다. 그리고 파괴 단계(stage)는 인장 시험에서 얻어진 응력-변형률선도 상에서 파괴가 일어나는 점이 항복점까지인 경우를 Stage I, 항복점에서 최대 인장강도까지를 Stage II, 최대 인장강도에서 파단까지를 Stage III로 표시하였다. 또한 인장거동에 수소 효과가 나타나지 않은 경우는 No, 응력-변형률선도에는 나타나지 않았지만 파단면에서만 나타나는 경우는 FS로 표시하였다. 파괴모드는 덤플파괴를 D, 취성적인 입내파괴는 BTG, 변형유기마르텐사이트 파면은 SM, 유사 벽개파면은 QC, 벽개파면은 C, 입계파면은 GB로 각각 표시하였다. 연료전지 자동차의 고압 수소저장용 재료로는, 알루미늄 합금, 저합금강, 스테인리스강 및 니켈기 합금 등이 후보로 거론되고 있지만, 이들 후보 재료를 지금까지의 재료 연구를 통해 수소취화를 평가하면 표 2에서 볼 수 있듯이, 수소취화가 없는 재료(알루미늄 합금), 수소취화가 작은 재료(스테인리스강), 수소 취화가 중 정도인 재료(중간 정도 강도의 저합금강), 수소취화가 큰 재료(고강도 저합금강, 니켈기 합금)로 분류할 수 있다. 그 중 ASME는 축압기용 저합금강에 대하여 균열진전 해석을 코드화하고 있는데 다른 나라에서는 그것을 포함한 재료의 수소취화 거동에 따라서 재료를 어떻게 사용할지 또한 규제에 균열을 허용할지 여부도 큰 논의 대상이라고 생각한다.

맺음말

지구 환경개선을 위한 연료전지 자동차 개발에 있어서 항속거리를 연장하기 위해 70MPa 고압수소 저장기 자동차 용기 및 수소 스테이션에서 개별적으로 기술 개발이 진행되고 있다. 고압수소 저장에서 안전을 위한 재료 문제는 고압수소 가스에 재료가 노출되는 데 따른 수소취화가 중요하여 연구가 진행되고 있

표 2 AIST의 연료전지 자동차용 각종재료에 대한 고압수소 가스 취화 표

Vol. 2311-231

HGE	Material	Hydrogen Pressure (MPa)	Relative Reduction of Area		Hydrogen Characteristic	
			H2/A	Pressure Range	Failure Mode	
Heavy HGE	SOM400E	70	3.03	I	GB+OC	
	16N-Mn-0.012C-0.0007N	70	3.03	I	BS	
	Flux Alloy 67	70	3.03	II	GB+BTG	
	SUS304H900	70	3.04	II	BTG	
	SUS304H1500	70	3.15	II	BTG	
	SUS316L	70	3.18	III	QC+GB	
	SFHOM860S(QT850)	70	3.17	II	QC+GB	
	SNCR630	213	3.23	III	QC+O	
	SUS328L1AC	58	3.21	II	QC+O	
	S55C	213	3.22	II	QC+O	
	SUS304(Sa-)	105	3.28	II	GB+SM	
	Flux Alloy C22	213	3.23	II	GB+BTG	
	SFHOM860S(QT850)	70	3.25	II	QC+GB	
	Inconel 718	70	3.26	II	BTG	
	SUS303	213	3.28	II	QC+O	
SOM400N	70	3.29	II	QC+O		
Moderate HGE	SNCR458 (OC)	213	3.31	II	QC+O	
	SNCR630 (GT)	70	3.32	III	QC	
	S55C	213	3.33	II	QC+O	
	S50C	213	3.33	II	QC+O	
	SOM40 (O)	213	3.34	II	QC+O	
	SUS304L	48	3.37	II	SM	
	S55C	213	3.37	II	QC+O	
	SUS304(Sa-7D)	70	3.38	III	SM	
	Inconel 718	70	3.38	II	BTG	
	SUS328	213	3.38	II	BTG	
	SOM40QT8750	70	3.48	II	QC+O	
	SUS316(Sa-)	105	3.48	II	SM+GB	
	SUV	213	3.48	III	QC+O	
	St6C	70	3.53	III	QC+O	
	SOM40(A)	70	3.58	II	QC+O	
SMP-3(Mn)	70	3.63	III	QC		
N201	70	3.71	III	BTG		
SUS316	213	3.72	III	SM		
Inconel 625	70	3.83	III	BTG		
SUS316LN	213	3.84	III	SM		
Light HGE	SUS316(Sa-)	70	3.88	III	D+SM	
	AISI316 (SA)	213	3.97	FS	BTG	
	AISI316 (CA)	213	3.97	FS	BTG	
	SUS316L	213	3.97	FS	BTG	
	SUN860	213	3.98	FS	BTG	
Undersea HGE	SUS316	213	3.98	No	D	
	Inconel 600H	70	3.98	No	D	
	C9771	213	3.98	No	D	
	AJ375-T6511	213	3.98	No	D	
	AJ381-T6	213	1.01	No	D	
A2324-T4	213	1.04	No	D		
A5393	213	1.13	No	D		

다. 자동차 탑재 용기의 경우 세계 규제는 하나로 SAE가 제품 전체 성능시험을 제안하여 각국과 협의하고 있는데 최종적으로는 유엔에서 합의를 목표로 하고 있다. 반면 수소 스테이션은 각국 독자적으로 규제를 하게 되지만, 수소 취화에 대응한 재료 규제를 어떻게 할 것인가를 검토하고 있다. ASME는 축압기에 대하여 수소에 의한 균열 진전을 고려한 코드가 정해져 있지만, 그 외 수소 스테이션 전체로 보면 미완성이다. 향후 각국에서 수소 취화에 대한 재료 규제를 어떻게 할 것인가, 균열 허용 설계를 포함한 논의가 진행될 것으로 사려된다.