

## 압력 분석법을 이용한 수소 연료전지 자동차용 고무 O-ring의 In-situ 고압 수소 투과 측정 시스템 개발

이지훈<sup>1,2)</sup> · 이형일<sup>\*3)</sup>

과학기술연합대학원대학교 측정과학전공<sup>1)</sup> · 한국표준과학연구원 수소에너지그룹<sup>2)</sup> · 경북대학교 자동차공학부<sup>3)</sup>

### Development of In-situ High-Pressure Hydrogen Permeation Measurement System for Rubber O-rings in Hydrogen Fuel Cell Vehicle Using Manometric Analysis Method

Jihun Lee<sup>1,2)</sup> · Hyeongill Lee<sup>\*3)</sup>

<sup>1)</sup>Department of Measurement Science, University of Science and Technology, Daejeon 34113, Korea

<sup>2)</sup>Hydrogen Energy Group, Korea Research Institute of Standards and Science, 267, Gajeong-ro, Yuseong-gu, Daejeon 34113, Korea

<sup>3)</sup>School of Automotive Engineering, Kyungpook National University, Gyeongsangbuk 41569, Korea

(Received 21 May 2025 / Revised 29 July 2025 / Accepted 8 August 2025)

**Abstract :** Rubber O-rings are widely used in hydrogen fuel cell vehicles and hydrogen refueling stations to prevent leakage and safely store high-pressure hydrogen. This study developed an in-situ high-pressure permeation measurement system capable of accurately evaluating the hydrogen permeation properties of rubber O-rings used under high-pressure hydrogen environments. The devised system consists of a permeation cell designed to safely apply hydrogen pressures up to 100 MPa to the test O-ring and a measuring part that quantitatively evaluates hydrogen permeation using a portable compact manometer based on the manometric analysis method. The measured hydrogen permeation data over time after high-pressure hydrogen injection were analyzed using a self-developed permeation-diffusion analysis program, enabling the evaluation of permeation properties, such as permeability, diffusivity, and solubility. Permeation properties of EPDM rubber O-rings were evaluated under pressure conditions ranging from 5 MPa to 70 MPa to validate the practical applicability of the developed system.

**Key words :** High-pressure hydrogen(고압 수소), Permeation measurement(투과 측정), Rubber O-ring(고무 오링), Manometric analysis method(압력분석법), Permeation properties(투과 특성), Uncertainty analysis(불확도 분석)

### 1. 서론

수소는 높은 에너지 밀도, 저장과 운반의 용이성, 그리고 친환경적 특성으로 인해 화석 연료를 대체할 차세대 에너지원으로 주목받고 있다.<sup>1-7)</sup> 수소를 효과적으로 활용하기 위해서는 안정적이고 효율적인 저장 기술 확보가 중요하다. 현재 수소의 저장 방식으로는 고체상 수소 저장, 극저온 액체 저장, 상온 고압 저장 방식이 대표적으로 사용된다.<sup>8-11)</sup> 이 중에서 상온 고압 저장 방식은 시스템 설계가 간단하고 충전 속도가 빠르다는 장점으로 인해 수소 연료전지 자동차(Hydrogen Fuel Cell Vehicle, HFCV)와 수소 충전소 분야에서 가장 폭넓게 사용되고

있다.<sup>12-14)</sup> 특히 이러한 저장 시스템은 최대 90 MPa 이상의 초고압 환경에서 작동하며, 이때 고압 수소 누출 방지를 위해 고무 소재의 O-ring이 필수적인 밀봉 부품으로 사용된다.<sup>15-19)</sup>

고무 O-ring은 주로 시스템 내 연결부나 배관 접합부에서 수소 누출을 차단하여 시스템의 안전성과 신뢰성을 확보하는 데 핵심적인 역할을 한다.<sup>20-24)</sup> 그러나 장시간 고압 수소 환경에 노출된 O-ring 내부로 수소 침투와 확산이 반복적으로 발생하여 밀봉 성능 저하가 나타난다.<sup>25-32)</sup> 특히, 고무 O-ring 내부에 침투한 수소는 재료의 미세구조 변형을 일으키고, 수소 취화(Hydrogen brittleness)

\*Corresponding author, E-mail: [ljh93@kriss.re.kr](mailto:ljh93@kriss.re.kr)

<sup>†</sup>This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License(<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium provided the original work is properly cited.

를 촉진하여 기계적 내구성과 밀폐 성능을 현저히 저하시킨다.<sup>33-38)</sup> 이는 결과적으로 고압 수소 누출과 같은 심각한 안전사고의 원인이 될 수 있으므로, O-ring의 수소 투과 특성을 정확히 평가하는 연구가 필수적이다.

현재 고무 소재의 기체 투과 특성은 주로 ASTM1434<sup>39)</sup> 및 ISO15105-1<sup>40)</sup>에서 규정된 차압법(Differential pressure method)을 이용하여 평가한다. 이 방법은 두께와 면적이 정확하게 정의된 평면형(디스크형) 시편의 양면에 압력 차이를 형성하여 고무 내부로의 기체 확산 및 투과를 유도한 후, 이를 통해 기체 투과 특성을 분석한다.<sup>41-43)</sup> 그러나 이 방법은 균일한 두께를 갖는 평면형 시편에 최적화된 것으로, 실제 산업 현장에서 사용하는 곡면 구조와 압축 상태의 O-ring의 투과 특성을 평가하는 데에는 한계가 있다. 특히 O-ring은 실제 장착 조건에 따라 압축에 의한 비균일한 응력 분포가 발생하며, 이로 인해 기체 투과 경로가 복잡해지고 디스크형 시편과는 다른 투과 특성을 나타낼 가능성이 있다.<sup>44,45)</sup> 그럼에도 불구하고, 실제 사용 조건을 반영하여 압축 상태의 O-ring에 차압법 원리를 적용하여 투과 특성을 평가한 연구는 거의 없다.

따라서 본 연구에서는 차압법의 원리를 기반으로, 실제 O-ring의 사용 조건을 고려하여 압축률 조건을 반영할 수 있는 새로운 고압 수소 투과 특성 평가 시스템을 개발하였다. 개발된 시스템은 최대 100 MPa(1000 bar)의 고압 수소를 시험용 O-ring에 안정적으로 인가할 수 있는 투과 셀과, 투과된 수소를 휴대용 데이터 로거를 이용한 압력 분석법(Manometric analysis method)을<sup>46)</sup> 통해 실시간으로 정량 측정하는 부분으로 구성되어 있다. 또한, 인서트(Insert)를 도입하여 실제 O-ring 장착 조건을 모사할 수 있도록 홈(Groove)의 깊이를 조절하여 다양한 압축률(Compression ratio) 조건에서 투과 특성을 평가할 수 있도록 설계하였다. 측정된 데이터는 자체 개발한 투과-확산 해석 프로그램을 이용하여 수소 투과도(Permeability), 확산도(Diffusivity), 용해도(Solubility)로 정확하게 평가된다. 최종적으로, 개발된 시스템을 활용하여 인가 압력과 압축률이 O-ring의 투과 특성에 미치는 영향을 평가하였으며, 측정 데이터의 신뢰성을 확보하기 위해 불확도 분석도 수행하였다.

## 2. 재료 및 실험

### 2.1 재료

EPDM은 우수한 기밀성, 탄성 회복력, 화학적 저항성, 그리고 뛰어난 저온 특성을 갖추고 있어 다양한 분야에서 밀봉 소재로 활용되고 있다.<sup>47-51)</sup> 특히 실리카(Silica)나 카본 블랙(Carbon black)과 같은 보강 필러(Filler)를 EPDM

고무에 첨가하면 소재의 기계적 강도와 내구성이 향상되어, 고압 수소 환경에서 장기간 안정적인 밀폐 성능을 유지할 수 있다.<sup>52-57)</sup> 또한, 높은 경도의 EPDM 소재일수록 장기적인 열화(Degradation)에 대한 저항성이 뛰어난 것으로 알려져 있다.<sup>58-60)</sup> 따라서 본 연구에서는 최대 100 MPa의 고압 수소 환경에서도 안정적인 밀폐 성능을 제공할 수 있는 실리카 필러를 함유한 고경도 EPDM 기반의 O-ring을 제작하였다. 본 연구에 사용된 EPDM은 Dow chemical company(Midland, TX, USA)의 Nodel® IP 4760 P 제품으로, 중량비로 65 %의 에틸렌(Ethylene)과 5 %의 에틸리덴 노르보넨(Ethylidene norbornene)을 포함하고 있다. 제작된 O-ring의 조성과 밀도는 Table 1에 나타내었다. 수소 투과 특성 평가를 위한 O-ring의 규격은 내경 (Inner diameter) 7.65 mm, 선경(Cross-sectional diameter) 1.78 mm에 맞게 시료를 준비하였다.

Table 1 Chemical compositions and density of silica-filled EPDM composite. Unit: phr (parts per hundreds rubber)

Chemical compositions	EPDM-silica
EPDM	100
Silica filler	100
Zinc oxide	3
Dicumyl peroxide	3
Stearic acid	1
Silane coupling agent (Si-69)	12
Polyethylene glycol	6
Density (g/cm <sup>3</sup> )	1.246

### 2.2 실험

#### 2.2.1 고무 O-ring 투과 셀의 설계

투과 셀(Permeation cell)은 시료의 물리적 변형을 방지하고, 고압 수소 투과 실험 동안 고압 수소가 외부로 누출되지 않도록 밀폐 성능을 유지하는 것이 중요하다. Fig. 1은 고압 수소 환경에서 O-ring의 투과 특성을 평가하기 위해 SUS 304 소재로 제작된 투과 셀의 내부 구조를 보여준다. Fig. 1(a)는 내부 단면도를 도시한 것으로, 상단 셀(Upper cell), 하단 셀(Lower cell), 인서트(Insert)로 구성된다. 상단 셀은 고압의 수소가 주입(Red line)되고, 시료를 투과한 수소가 배출(Blue line)되는 경로를 제공한다. 수소는 공기보다 밀도가 낮아 위로 상승하기 때문에 투과된 수소를 효율적으로 배출하기 위해 배출구를 상부에 위치시켰다. 하단 셀은 투과 셀의 구조적 안정성을 유지하고, 내부에 인서트를 장착할 수 있도록 설계되

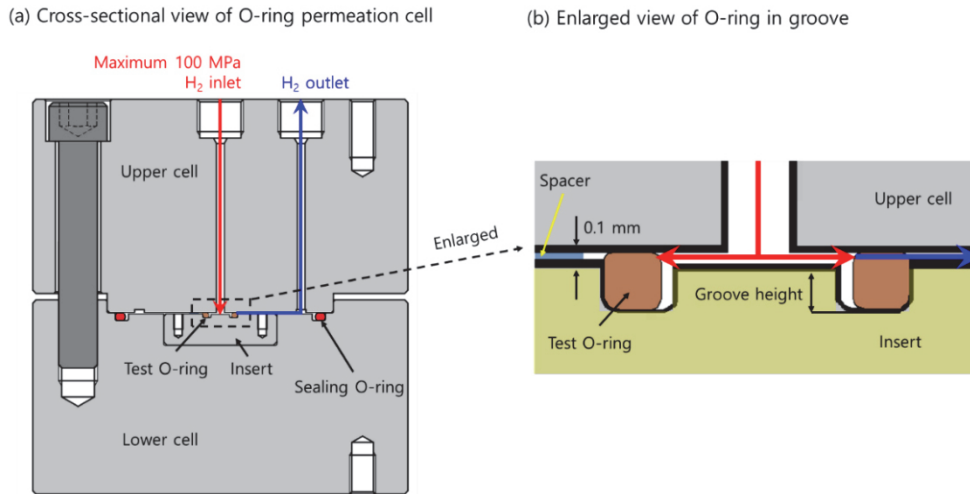


Fig. 1 Internal structure of the high-pressure hydrogen permeation cell for O-ring specimen. (a) Cross-sectional assembly view illustrating upper cell, lower cell and insert with gas flow paths. (b) Enlarged view showing O-ring mounted within the groove. The red line indicates the high-pressure hydrogen injection path. The blue line represents the permeated hydrogen released path. The yellow region in the enlarged view indicates the insert. The O-ring shape shown here is conceptually illustrated to represent the condition under applied high-pressure hydrogen.

었다. 인서트는 시험용 O-ring이 장착되는 부품이며, Groove의 높이를 다양하게 제작하여 O-ring의 압축률을 정밀하게 조절할 수 있도록 하였다.

Fig. 1(b)는 Groove에 장착된 O-ring 부분을 확대하여 다시 나타낸 것으로, 투과 실험 중 압축으로 변형된 O-ring의 형상을 시각적으로 보여준다. 상단 셀과 인서트 사이에는 두께 0.1 mm의 C자형 스페이서(C-shape spacer)가 삽입되어 미세 틈을 형성하고 있으며, 이 틈은 O-ring을 투과한 수소가 외부로 원활하게 배출되게 하는 경로에 해당한다. 최대 100 MPa의 고압 수소가 인가되면, O-ring은 높은 압력에 의해 압축/변형되면서 상단 셀과 인서트 사이의 틈으로의 수소 누출을 차단한다. 그러나 O-ring 내부로 용해 및 확산된 수소 분자는 압력 구배(Pressure gradient)에 따라 O-ring을 투과하여 저압 측으로 점진적으로 방출된다.<sup>61-68)</sup> 이때 O-ring을 투과한 수소 분자는 인서트와 상단 셀 사이에 형성된 0.1 mm의 미세한 틈(파란색 화살표)을 따라 외부 상단으로 배출된다.

### 2.2.2 고압 수소 투과 측정 시스템

Fig. 2는 고무 O-ring의 고압 수소 투과 특성을 평가하기 위해 구축된 측정 시스템을 나타낸 것으로, 수소 탱크(H<sub>2</sub> tank), 압축기(Compressor), 버퍼 탱크(Buffer tank), O-ring 투과 셀(O-ring permeation cell), 상온 유지용 순환기, 그리고 압력 분석법(Manometric analysis method)으로 구성되어 있다. Fig. 2(a)는 시험용 O-ring에 고압 수소를 인가하기 위한 시스템의 구성을 보여준다. 고압 수소 주

입 절차는 다음과 같다. 먼저, Valve 2를 닫고 Valve 1을 개방하여 압축된 수소를 버퍼 탱크에 최대 100 MPa의 목표 압력까지 충전한다. 이후, Valve 1을 닫고 Valve 2를 개방하여 1초 이내에 투과 셀에 목표 압력까지 수소를 주입한다. Valve 2를 개방한 시점(t=0)을 기준으로 시간을 기록하며 투과 측정을 시작한다.

투과 셀의 온도는 Fig. 2(a)의 순환기를 이용한 배스 용액 순환 방식으로 상온을 유지하였다. 또한, 투과 셀 외벽에는 단열 재킷을 장착하여 실험 중 온도 변화를 최소화하였다. 정확한 온도 제어와 안정적인 실험 조건 유지를 위해, 투과 셀에 열전대를 설치하여 온도를 실시간으로 모니터링하였다. 시료가 충분히 열 평형에 도달하도록 열전대가 온도 평형에 도달한 후 1시간이 지난 시점에서 수소를 주입하였다. 투과된 수소의 정량 측정은 Fig. 2(b)에 나타난 압력 측정법을 이용하여 수행하였으며, 이에 대한 자세한 설명은 다음 섹션에서 다룬다.

### 2.2.3 수소 투과 특성 평가를 위한 압력 분석법

Fig. 2(b)는 밀폐된 용기 내부의 압력 변화를 모니터링하여 시간 경과에 따른 투과 수소의 양을 정량화하는 압력 분석법을 나타낸 것이다. 압력과 온도는 대기압과 온도를 동시에 측정할 수 있는 USB 타입의 상용 데이터 로거를 이용하여 측정하였다. 로거를 포함한 용기(Container) 내의 수소 압력  $P(t)$ 은 시간이 지남에 따라 O-ring을 투과한 수소에 의해 점진적으로 증가한다. 용기 내부의 수소는 이상 기체 상태 방정식( $PV=nRT$ )을 따르며, 여기서 R

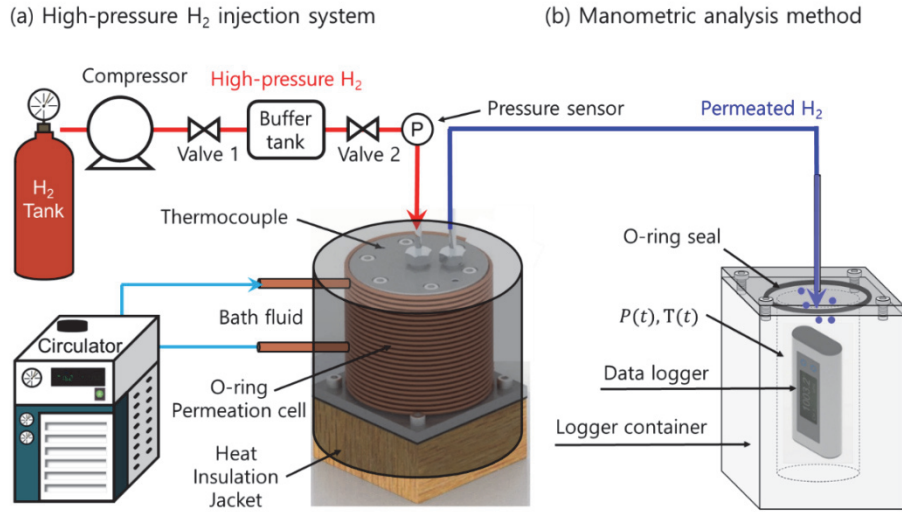


Fig. 2 Overall system for the high-pressure hydrogen permeation test to evaluate the permeation properties of polymer materials. (a) Schematic of the high-pressure hydrogen injection process and the temperature control system for the permeation cell. (b) Manometric method for the quantitative measurement of permeated hydrogen.

은 기체 상수  $8.20544 \times 10^{(-5)} m^3 \cdot atm / (mol \cdot K)$ ,  $n$ 은 로거 용기 내부에 존재하는 총 가스의 몰 수를 나타낸다.

밀폐된 용기 내에서 일정한 부피 조건 하에 시간에 따른 압력 변화  $P(t)$ 를 측정하면, O-ring을 통해 투과된 수소의 몰 수를 구할 수 있다. 이에 따라, 로거 용기 내부에서 측정된 투과 수소로 인한 압력 증가  $P(t)$ 와 용기 내부 온도  $T(t)$ 를 바탕으로, 총 가스 몰 수  $n(t)$ 는 다음 식을 통해 산출된다.<sup>46)</sup>

$$n(t) = \frac{P(t) V_0}{RT(t)} = \frac{[P_0 + P_{H_2}(t)] V_0}{RT_0 [1 + \alpha(t)]}$$

$$\cong \frac{P_0 V_0 + P_{H_2}(t) V_0}{RT_0} [1 - \alpha(t)] = n_0 + n_{H_2}(t),$$

$$\text{with } n_0 = \frac{P_0 V_0}{RT_0}, \alpha(t) = \frac{T(t) - T_0}{T_0} \quad (1)$$

여기서,  $T_0$ ,  $V_0$ ,  $P_0$ 는 각각 밀폐된 로거 용기 내부의 초기 온도, 초기 부피, 초기 압력을 나타낸다.  $P(t)$ 는 초기 압력  $P_0$ 와 시간에 따라 투과된 수소로 인한 압력 증가  $P_{H_2}(t)$ 의 합으로 정의된다.  $n_0$ 는 잔존하는 초기 공기의 몰 수이며,  $n_{H_2}(t)$ 는 시간에 따라 증가하는 투과 수소의 몰 수를 의미한다.  $\alpha(t)$ 는 초기 온도  $T_0$ 에 대한 상대 온도 변화율이다.

따라서, 수소의 몰 수  $n_{H_2}(t)$ 를 별도로 나타내어 정리하면 다음과 같다.

$$n_{H_2}(t) = \frac{V_0}{RT_0} [P_{H_2}(t) - \alpha(t)P_0 - \alpha(t)P_{H_2}(t)] \quad (2)$$

결과적으로, 식 (2)를 이용하여, 실험 중 외부 온도 변화의 영향을 보정한 시간 경과에 따른 O-ring을 투과한 수소의 양을 정량적으로 계산할 수 있다.

#### 2.2.4 투과-확산 분석 프로그램

차압법은 막(Membrane)을 통한 기체 투과 특성 분석에 널리 활용되는 대표적인 실험 기법이다.<sup>69-73)</sup> 기존 연구에서는 기체 투과가 정상 상태에 도달할 때까지 데이터를 수집한 후, 이를 기반으로 투과 특성을 평가하였다. 그러나 확산 계수가 낮거나 시편의 두께가 증가하는 경우, 정상 상태에 도달하기까지 장시간이 소요되어 실험이 비효율적이거나 정상 상태에 도달하기 전에 실험이 종료되는 한계가 있다.<sup>74,75)</sup>

이를 해결하기 위해, 본 연구에서는 자체 개발한 확산-투과 분석(Diffusion-permeation analysis) 프로그램을 이용하여 비정상 상태 구간에서도 수소의 확산도(D)와 투과도(Pe)를 평가하는 방법을 적용하였다. 비정상 상태에서의 수소 투과 거동은 Fick의 제2법칙을 기반으로 해석되며, 다음과 같이 표현된다.<sup>76-79)</sup>

$$Q(t) = \frac{n(t)}{A} = C \left[ \frac{Dt}{L} - \frac{L}{6} - \frac{2L}{\pi^2} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^n}{n^2} \exp\left(-\frac{Dn^2\pi^2 t}{L^2}\right) \right] \quad (3)$$

여기서  $Q(t)$ 는 시간  $t$  동안 단위 면적당 누적 투과 수소

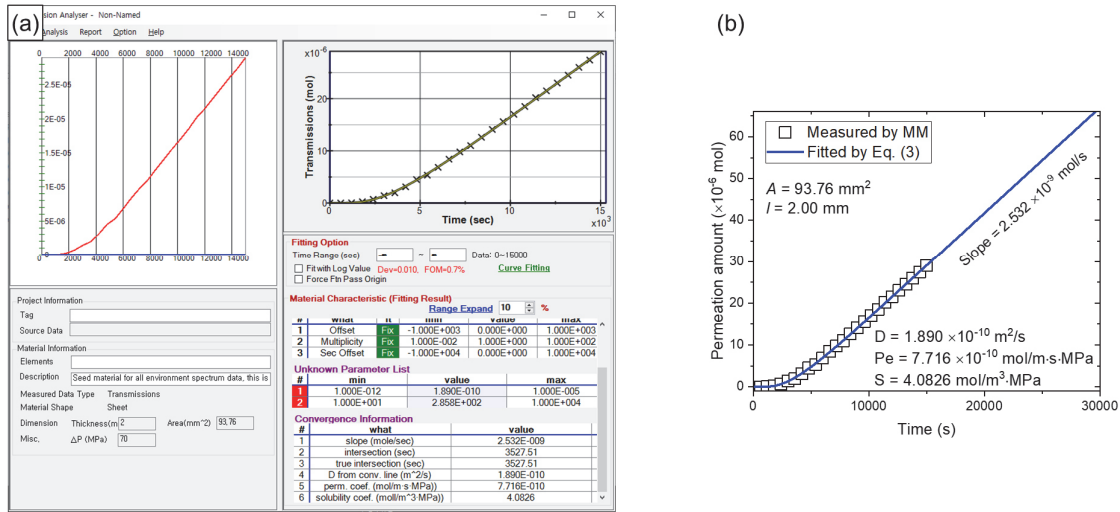


Fig. 3 (a) A diffusion-permeation analysis program for determining H<sub>2</sub> diffusivity, permeability and solubility using Eq. (3), (4) and (5), respectively, in EPDM O-ring under injection pressure of 70 MPa, (b) replotted result showing diffusivity (*D*), permeability (*Pe*) and solubility (*S*), obtained by diffusion-permeation analysis program.

량(mol/m<sup>2</sup>), *n*(*t*)는 시간 *t* 동안 시편을 투과한 총 수소량 (mol), *A*는 수소와 대면하는 시편의 면적(m<sup>2</sup>)을 의미한다. *C*는 고압측 수소 기체 농도(mol/m<sup>3</sup>), *L*은 고무 시편의 두께(m), 무한 급수 항은 비정상 상태에서의 확산 거동을 설명한다.

식 (3)의 무한급수 항은 고차항의 영향이 10<sup>-5</sup> 이하로 미미하므로, 높은 정확도를 위해 초기 50개 항까지 합산하여 계산하였다. 이와 같은 계산을 수행하기 위해 본 연구에서는 50개 항을 모두 포함하여 확산도를 계산할 수 있는 전용 투과-확산 해석 프로그램을 개발하였다. 이 방법은 무한 시간에서 단순화된 식  $D = L^2 / 6t$ 를 이용하는 기존의 타임 래그(Time lag) 분석법보다 더 높은 정확도를 보인다.<sup>75)</sup>

투과도는 수소의 몰 수 변화( $\Delta n / \Delta t$ )에 따른 선형 기울기로부터 다음과 같이 계산하였다.

$$Pe = \frac{(\Delta n / \Delta t)L}{A\Delta P} \quad (4)$$

여기서 *A*는 시편의 수소 접촉 면적,  $\Delta P$ 는 투과 셀 내 공급 측과 투과 측의 압력 차를 의미한다. 또한, 수소의 용해도(*S*)는 측정된 투과도(*Pe*)를 확산도(*D*)로 나누어 다음과 같이 계산할 수 있다.

$$S = Pe / D \quad (5)$$

Fig. 3은 수소 주입 압력 70 MPa에서 측정된 수소 몰

수 데이터를 기반으로, 개발된 투과-확산 해석 프로그램을 이용하여 O-ring 시편의 수소 확산도(*D*), 투과도(*Pe*), 용해도(*S*)를 분석한 사례를 보여준다. 각 시간별 투과된 수소의 몰 수는 식 (2)를 이용하여 얻는다.

분석 프로그램을 이용한 분석 절차는 다음과 같다. 먼저, Fig. 3(a)의 좌측 하단 영역에 시편의 두께, 수소 접촉 면적, 실험 압력 차( $\Delta P$ ), 그리고 각 시간별 투과된 수소의 몰 수를 입력한다. 이후, Fig. 3(a) 우측 중단부에 위치한 곡선 피팅(Curve fitting) 기능을 실행한다. 그 결과, 우측 하단 영역에 식 (3), (4), (5)을 이용하여 계산된 확산도, 투과도, 용해도 값이 표시된다. 본 실험에서는 각각  $D = 1.890 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ ,  $Pe = 7.716 \times 10^{-10} \text{ mol}/(\text{m}\cdot\text{s}\cdot\text{MPa})$ ,  $S = 4.083 \text{ mol}/(\text{m}^3\cdot\text{MPa})$ 로 도출되었다.

이 분석 프로그램을 활용하면 측정 시간을 단축할 수 있으며, Fig. 3(a) 중앙에 나타난 것처럼, 이론식과 실험 데이터 간 편차를 나타내는 FOM(Figure of Merit) 값도 함께 제공된다. 본 실험에서 FOM 값은 0.7 %로 산출되어 우수한 일치도를 보여준다. Fig. 3(b)는 확산-투과 해석 프로그램을 통해 도출된 투과 파라미터를 바탕으로 재구성한 결과를 보여주며, 파란색 선은 프로그램이 식 (3)을 기반으로 피팅한 결과를 나타낸다.

### 2.2.5 O-ring 형상 가정 및 투과 파라미터 정의

O-ring은 곡면 구조를 가지며 압축된 상태로 사용되기 때문에, 식 (3)과 (4)에 적용되는 수소 접촉 면적(*A*)과 투과 길이(*L*)를 정의하기 위해서는 형상에 대한 가정이 필요하다. 일반적으로 O-ring은 사각형 단면(Rectangular

cross-section)의 groove에 장착된 후 고압 환경에서 압축 및 변형되어, 원형 단면이 직사각형에 가까운 단면으로 변형된다.<sup>80-82</sup> 따라서 본 연구에서는 Fig. 1(b)에 제시된 시험용 O-ring 개념도와 같이, 장착 전 원형 단면의 O-ring이 압축 후 직사각형으로 변형된 것으로 가정하고, 이를 바탕으로 수소 접촉 면적과 투과 길이를 정의하였다. 즉, 식 (4)에 적용되는 수소 접촉 면적(A)은 압축으로 변형된 O-ring의 직사각형 단면을 기준으로, 이를 직선으로 펼쳤을 때 형성되는 단면 중 수소와 접촉하는 한 면의 면적으로 설정하였다. 투과 길이(L)는 압축된 O-ring의 변형된 단면에서 수소가 투과하는 방향의 두께로 정의하였다.

한편, O-ring은 실제 장착 환경에서 압축률 및 압력 변화에 따라 비선형적인 변형 거동을 나타낸다.<sup>44,45,83</sup> 특히 고압 수소 압력에 따라 비대칭적 압축, 재료의 비선형 탄성 거동, groove 접촉부의 국부 응력 집중 등으로 인해 투과 경로와 면적이 변동되며, 이로 인해 투과 해석 과정에서 복잡한 변수로 작용하게 된다.<sup>84,85</sup> 따라서 본 연구에서는 해석의 단순화와 다양한 실험 조건에서의 일관된 해석 기준을 적용하기 위해, O-ring 형상에 대한 투과 파라미터들을 압력 조건과 무관하게 일정한 값으로 설정하였다.

### 3. 결과 및 분석

#### 3.1 O-ring의 압력 의존성 측정 결과

본 연구에서는 개발한 고압 수소 환경에서의 O-ring의 투과 측정 시스템을 이용하여, Silica 필러를 함유한 EPDM O-ring의 수소 투과 특성을 5 MPa에서 70 MPa 범위의 서로 다른 압력 조건에서 평가하였다. Fig. 4는 Groove의 높이가 1.25 mm인 조건에서 측정된 투과율, 투과도, 확산도, 용해도의 압력 의존성을 나타낸다.

수소 투과율(permeation rate)은 식 (4)의 수소 몰 수 변화의 선형 기울기( $\Delta n/\Delta t$ )를 의미하며, Fig. 4(a)에서는 압력 증가에 따라 초기에 증가하다가 이후 증가율이 급격히 둔화되는 지수 함수적 거동을 보였다. Fig. 4(b)에서 투과도는 압력이 증가함에 따라 지수 함수적으로 감소하였다. 투과율이 압력 증가에 따라 선형적으로 증가한다면, 식 (4)에 의해 투과도는 압력과 무관하게 일정하다. 그러나 본 실험에서는 압력에 따른 투과율의 지수 함수적 증가가 관찰되었으며, 이로 인해 압력이 증가할수록 EPDM O-ring의 수소 투과도가 감소하였다. Fig. 4(c)의 확산도는 압력과 아주 약한 음의 상관관계를 보였으나, 전반적으로 압력에 따른 영향은 크지 않았다. 이에 따라,

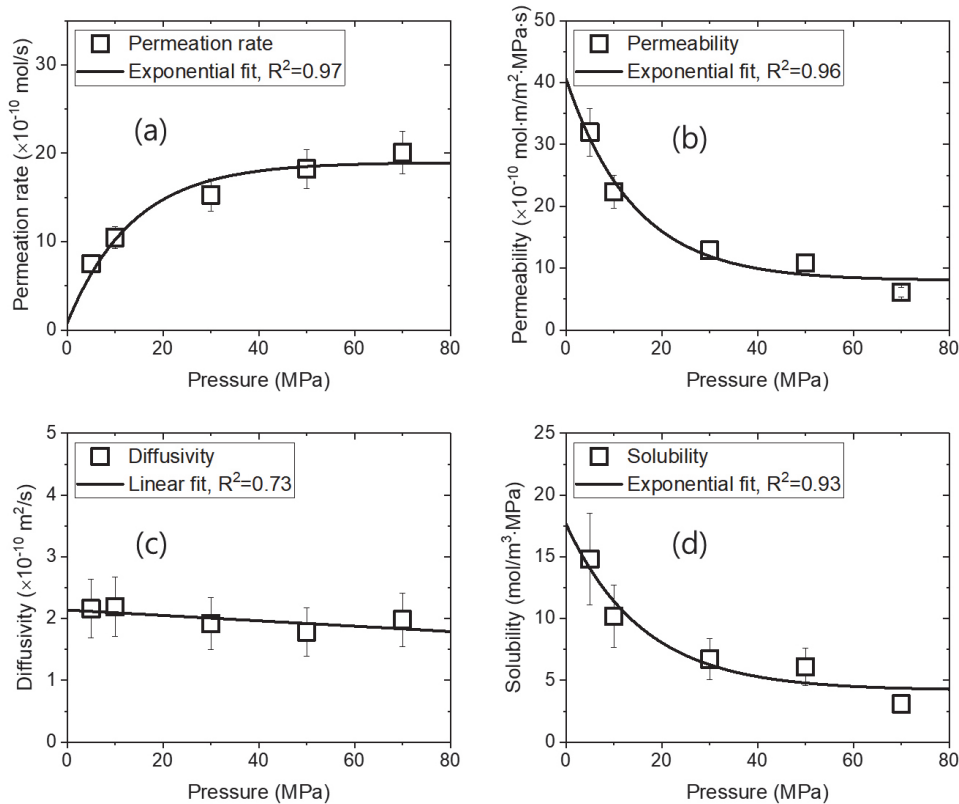


Fig. 4 High-pressure hydrogen (a) Permeation rate, (b) permeability, (c) diffusivity and (d) solubility versus pressure in silica-filled EPDM O-ring.

식 (5)를 통해 계산된 용해도는 투과도와 확산도의 압력 의존성을 반영하여 압력 증가에 따라 지수 함수적으로 감소하였다.

이러한 투과 특성들의 거동은 Stern 등과 Naito 등의 연구에서 보고된 시트형 고분자의 기체 투과 특성과 유사한 경향을 보인다.<sup>86,87)</sup> 이들은 CO<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>O 및 유기 증기와 같이 응축성 증기의 경우, 압력이 증가할수록 투과도가 선형적으로 증가하는 반면, N<sub>2</sub> 및 He와 같은 영구 가스의 경우 압력이 증가할수록 투과도가 선형적으로 감소한다고 보고하였다. 이러한 관점에서 수소 또한 영구 가스로 분류되므로, 압력 증가에 따라 투과도가 감소하는 경향을 보였다.

그러나 이들 연구 결과와는 다르게 우리의 연구의 결과는 Fig. 4(b)에서 확인되듯, 압력에 대해 투과도가 선형적이 아닌 지수 함수적으로 감소하는 경향을 보였다. 이러한 차이는 시트형과 O-ring형 시료의 구조적 특성 차이에서 비롯된다. 시트형 시편은 투과 셀 내 지지 구조에 의해 평탄하고 일정한 두께로 유지되며, 외부 압력 변화와 무관하게 일정한 투과 면적과 경로를 제공한다.<sup>65,68)</sup> 반면, O-ring은 곡면 구조를 지닌 상태로 Groove에 장착되며, 압력이 증가할수록 Groove와의 상호작용에 의해 O-ring의 단면이 국부적으로 압축되거나 외부로 돌출되는 비선형적인 거동을 보인다. 이러한 복합적인 기계적 거동은 O-ring에서 비선형적인 압력 의존성을 유발하는 주요 원인으로 작용하며, 향후 Groove 내 O-ring의 실시간 변형 거동과 접촉면의 응력-변형 분포를 연계한 실험 및 수치 해석을 통해 그 차이를 정량적으로 규명할 필요가 있다.

### 3.2 O-ring의 압축률 의존성 측정 결과

O-ring의 투과 측정 시스템을 이용하여, EPDM-Silica O-ring의 투과도와 확산도를 서로 다른 3 개의 Groove 높이 조건에 대해 조사하였다. Fig. 5는 Groove 높이 1.27 mm, 1.37 mm, 1.47 mm에서 각각 30 MPa 및 70 MPa의 수소 압력 조건 하에서 측정된 투과도와 확산도 결과를 나타낸다. 이때 식 (4)에 적용된 수소 접촉 면적은 Groove 높이를 반영하여 각각 30.52 mm<sup>2</sup>, 32.93 mm<sup>2</sup>, 35.33 mm<sup>2</sup>로 적용하였으며, 투과 길이는 Groove 높이와 무관하게 2 mm로 고정하였다. 한편, O-ring의 압축률은 Groove 높이(*h*)와 O-ring 선경(*d*)의 비율로 정의되며, 다음 식으로 계산된다.

$$\text{Compression ratio (\%)} = \left(1 - \frac{h}{d}\right) \times 100 \quad (6)$$

Fig. 5(a)에서 확인할 수 있듯이, Groove 높이가 낮아질수록 투과도는 감소하는 경향을 보였다. Groove 높이가 낮을수록 O-ring의 압축률이 증가하고, 이에 따라 기밀성이 향상되어 수소의 투과가 억제되었기 때문으로 해석된다 즉, O-ring의 압축률이 높을수록 수소 투과가 효과적으로 저감되는 경향을 나타낸다. 또한 Fig. 5(b)에서는 O-ring의 압축률 증가에 따라 확산도가 급격히 감소하는 거동이 확인되었다. 이는 O-ring에 가해진 압축력이 커질수록 내부의 미세공극과 자유 체적(free volume)이 감소하면서, 수소의 확산 경로가 제한되었기 때문으로 해석된다.<sup>65)</sup> 이와 같은 결과를 종합하면, O-ring의 압축률이 높을수록 수소의 투과 및 확산이 효과적으로 억제되어 고압 수소 저장 시스템에서의 기밀성과 안전성이 향상됨을 확인할 수 있다.

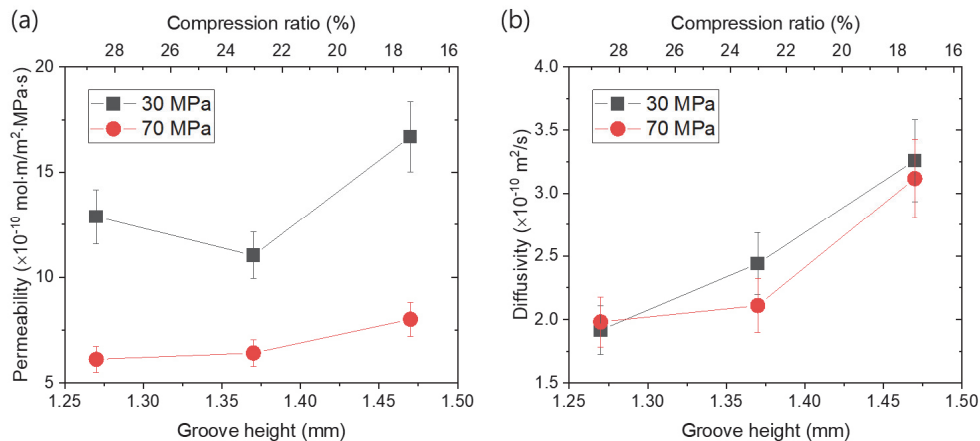


Fig. 5 Groove height versus (a) permeability and (b) diffusivity under 30 MPa and 70 MPa pressure conditions. A lower groove height indicates a higher compression ratio of the O-ring.

### 3.3 불확도 분석

압력 분석법을 이용한 고압 수소 O-ring 투과 시스템의 측정 불확도는 GUM (Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement) 및 기존 연구에서 제시된 분석 절차를 기반으로 평가하였다.<sup>88-91)</sup> 수소 투과 측정에 대한 주요 불확도 요인과 상대 확장 불확도는 Table 2에 정리하였다. 불확도 요인은 반복 측정을 통한 안정성, O-ring 시편의 선경 측정, 데이터와 식 (3) 간의 표준 편차, 고압측 디지털 압력계 정확도/해상도, 투과 셀의 온도 변화, 상용 데이터 로거의 정확도/해상도, 그리고 로거 용기 내부의 빈공간 부피 측정에 대한 편차이다. 반복 측정의 안정성에 대한 타입 A 불확도(Type A uncertainty)는 3회 측정을 통해 얻어졌다.

O-ring 시편 선경 측정의 불확도는 버니어 캘리퍼 (Vernier caliper)의 교정 성적서, 정확도, 해상도를 기반으로 0.8 %로 평가되었다. 측정 데이터와 식 (3)을 이용한 피팅 결과 간의 표준 편차는 최대 3 % 이내로 나타났으며, 이 값을 기준으로 불확도를 결정하였다. 디지털 압력계의 정확도는 GRADE A 수준인 1 %로 나타났으며, 이에 따라 B형 불확도는 0.6 %로 평가되었다. 압력계를 이용하여 최대 90 MPa의 압력을 측정할 때 최소 눈금 단위는 0.1 MPa로, 이는 상대 값으로 0.1 %에 해당한다. 해상도는 이 최소 눈금의 절반이므로, 삼각형 분포를 고려하여  $\sqrt{6}$ 으로 나누어 불확도를 0.02 %로 계산하였다. 투과 셀의 온도는 25 °C의 일정한 온도로 유지되었으며, 온도 변동 범위는  $\pm 1$  °C였다. 이를 바탕으로 실험실 온도 변화에 따른 타입 B 불확도가 평가하였다.

이동형 압력계의 정확도는 제품 스펙에 의해 0.1 %이며, 직사각형 분포를 가정하여 불확도는 0.06 %로 계산

되었다. 최대 1200 mbar 측정 가능 압력에서 최소 눈금 단위는 0.1 mbar이며, 이에 해당하는 불확도는 0.01 %이다. 해상도는 이 최소값의 절반이므로, 삼각형 분포를 적용하여 타입 B 불확도는 0.002 %로 결정되었다. 압력계 용기 내부의 빈공간 부피는 이전 연구에서 Boyle의 법칙으로 측정된 결과와 버니어 캘리퍼로 측정된 결과의 편차에 의해 불확도는 0.9 %이다.<sup>46)</sup>

이와 같은 분석을 통해, 각 개별 불확도의 제곱합의 제곱근을 이용하여 합성 표준 불확도를 계산하였다. 상대 확장 불확도는 정규 분포를 가정하고, 신뢰 수준 95 %에서 coverage factor 2.1을 곱하여 결정되었다. 최종적으로, 고압 수소 투과 실험 시스템의 측정에 대한 확장 불확도는 최대 10.6 %를 초과하지 않는 것으로 분석되었다.

### 4. 결론

본 연구에서는 고압 수소 환경에서 사용되는 O-ring의 수소 투과 특성을 정량적으로 평가하기 위해, 최대 100 MPa (1000 bar)의 고압 조건에서 안정적으로 운용 가능한 in-situ 수소 투과 측정 시스템을 개발하였다. 본 시스템은 압력 분석법을 기반으로 하여 O-ring의 압축률을 반영한 실험장 장착 조건에서 평가할 수 있도록 설계되었으며, 실시간으로 수소 투과량을 정확하게 측정할 수 있다는 장점을 갖는다. 또한, 자체 개발한 투과-확산 분석 프로그램을 활용하여 투과도, 확산도, 용해도 등의 투과 특성을 정확하게 평가할 수 있도록 하였다.

EPDM-Silica O-ring을 대상으로 수행된 실험 결과, 수소 투과 특성은 압력 및 압축률 변화에 따른 의존성을 보였다. 특히, 압력이 증가함에 따라 수소 투과도는 지수 함수적으로 감소하는 비선형 거동을 나타냈으며, 이는 기존의 시트형 고분자 재료에서 관찰된 선형적 압력 의존성과 상이한 결과로서, O-ring의 곡면 구조 및 Groove와의 상호작용에 의한 단면 변형과 응력 재분포 현상에 기인하는 것으로 판단된다. 또한, Groove의 깊이에 따른 O-ring의 압축률 증가는 투과도와 확산도의 부가적인 감소를 유발하여, 고압 하에서 O-ring의 밀봉 성능을 향상시키는 효과를 확인하였다.

이러한 실험 결과는 고압 수소 시스템 내 밀봉용 O-ring의 실제 운용 환경에서의 성능 평가와 최적 설계에 필요한 기초 데이터를 제공한다. 다만, 본 연구에서는 O-ring의 비선형적 압축 및 변형 거동을 단순화하기 위해 실제 형상 대신 이상화된 직사각형 단면을 가정하여 분석하였기 때문에, 실제 운용 환경에서 발생하는 국부적인 형상 변화 및 응력 분포를 완전히 반영하지 못한 한계가 존재한다. 그럼에도 불구하고, 본 연구는 고압 수소 환경에서 O-ring의 수소 투과 특성을 실제 장착 조건을

Table 2 Uncertainty sources and expanded uncertainties in manometric analysis method

Factor of uncertainty	Relative value (%)
Repeated measurements	3.8
Thickness measurement for the sample	0.8
Standard deviation between data and Eq. (3)	3.0
Accuracy of digital pressure gauge	0.6
Resolution of digital pressure gauge	0.02
Variation of temperature	0.01
Accuracy of portable sensor	0.06
Resolution of portable sensor	0.002
Volume deviation of portable sensor container	0.9
Combined standard uncertainty, $u_c$	5.0
Coverage factor, $k$	2.1
Expanded uncertainty, $U = ku_c$	10.6

반영하여 평가한 최초의 선행 사례로서, 향후 O-ring 재료의 구조적 특성, 장착 조건, 고압 수소 환경에서의 장기 열화 거동과 투과 특성 간의 상관관계를 정량적으로 규명하는 후속 연구의 기반이 될 것으로 기대된다.

### References

- 1) M. A. Rosen and S. Koohi-Fayegh, "The Prospects for Hydrogen as an Energy Carrier: An Overview of Hydrogen Energy and Hydrogen Energy Systems," *Energy, Ecology and Environment*, Vol.1, pp.10–29, 2016.
- 2) J. O. Abe, A. Popoola, E. Ajenifuja and O. M. Popoola, "Hydrogen Energy, Economy and Storage: Review and Recommendation," *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol.44, No.29, pp.15072–15086, 2019.
- 3) M. Kim, E. Yoo and H. H. Song, "Well-to-Wheel Greenhouse Gas Emissions Analysis of Hydrogen Fuel Cell Vehicle – Hydrogen Produced by Naphtha Cracking," *Transactions of KSAE*, Vol.25, No.2, pp.157–166, 2017.
- 4) O. J. Kwon, H. J. Jo, H. H. Chung and K. J. Myong, "Analysis and Modeling of Hydrogen Sales at Hydrogen Filling Stations," *Transactions of KSAE*, Vol.27, No.2, pp.93–100, 2019.
- 5) S. Niaz, T. Manzoor and A. H. Pandith, "Hydrogen Storage: Materials, Methods and Perspectives," *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, Vol.50, pp.457–469, 2015.
- 6) C. Tarhan and M. A. Çil, "A Study on Hydrogen, the Clean Energy of the Future: Hydrogen Storage Methods," *Journal of Energy Storage*, Vol.40, Paper No.102676, 2021.
- 7) M. R. Usman, "Hydrogen Storage Methods: Review and Current Status," *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, Vol.167, Paper No.112743, 2022.
- 8) G. Valenti, "Hydrogen Liquefaction and Liquid Hydrogen Storage," in *Compendium of Hydrogen Energy*, Elsevier, pp.27–51, 2016.
- 9) A. T. Wijayanta, T. Oda, C. W. Purnomo, T. Kashiwagi and M. Aziz, "Liquid Hydrogen, Methylcyclohexane, and Ammonia as Potential Hydrogen Storage: Comparison Review," *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol.44, No.29, pp.15026–15044, 2019.
- 10) A. Yamashita, M. Kondo, S. Goto and N. Ogami, "Development of High-Pressure Hydrogen Storage System for the Toyota 'Mirai'," *SAE 2015-0148-7191*, 2015.
- 11) M. Zhang, H. Lv, H. Kang, W. Zhou and C. Zhang, "A Literature Review of Failure Prediction and Analysis Methods for Composite High-Pressure Hydrogen Storage Tanks," *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol.44, No.47, pp.25777–25799, 2019.
- 12) C. Chilev and F. D. Lamari, "Hydrogen Storage at Low Temperature and High Pressure for Application in Automobile Manufacturing," *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol.41, No.3, pp.1744–1758, 2016.
- 13) J. Li, L. Zhang, R. Li, X. Yang and T. Zhang, "High-Pressure Gaseous Hydrogen Storage Vessels: Current Status and Prospects," *Energy Storage Science and Technology*, Vol.10, No.5, Paper No.1835, 2021.
- 14) Y. Song, "New Perspectives on Potential Hydrogen Storage Materials Using High Pressure," *Physical Chemistry Chemical Physics*, Vol.15, No.35, pp.14524–14547, 2013.
- 15) S. K. Jeon, J. K. Jung, N. K. Chung, U. B. Baek and S. H. Nahm, "Investigation of Physical and Mechanical Characteristics of Rubber Materials Exposed to High-Pressure Hydrogen," *Polymers*, Vol.14, No.11, Paper No.2233, 2022.
- 16) B. -L. Choi, M. -C. Choi, S. K. Jeon, U. B. Baek and B. -H. Choi, "In Situ Wear Test of Acrylonitrile Butadiene Rubber in a Low Pressure Hydrogen Environment," *Polymer Testing*, Paper No.108683, 2024.
- 17) J. K. Jung, K. -T. Kim and U. B. Baek, "Simultaneous Three-Channel Measurements of Hydrogen Diffusion with Light Intensity Analysis of Images by Employing Webcam," *Current Applied Physics*, Vol.37, pp.19–26, 2022.
- 18) C. H. Lee, J. -K. Jung, S. K. Jeon, K. S. Kim and C. J. Kim, "Hierarchical Channel Morphology in O-rings After Two Cycling Exposures to 70 MPa Hydrogen gas: a Case Study of Sealing Failure," *Scientific Reports*, Vol.14, Paper No.5319, 2024.
- 19) C. H. Lee, J. -K. Jung, S. K. Jeon, K. S. Ryu and U. B. Baek, "Nuclear Magnetic Resonance Study of O-ring Polymer Exposed to High-Pressure Hydrogen," *Journal of Magnetism*, Vol.22, No.3, pp.478–482, 2017.
- 20) C. Zhou, Z. Li, Y. Zhao, Z. Hua, L. Zhang, M. Wen and P. Xu, "Effect of Inside Diameter on Design Fatigue Life of Stationary Hydrogen Storage Vessel Based on Fracture Mechanics," *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol.39, No.25, pp.13634–

- 13642, 2014.
- 21) C. San Marchi, B. P. Somerday and S. L. Robinson, "Permeability, Solubility and Diffusivity of Hydrogen Isotopes in Stainless Steels at High Gas Pressures," *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol.32, No.1, pp.100–116, 2007.
  - 22) J. K. Jung, J. H. Lee, S. K. Jeon, N. H. Tak, N. K. Chung, U. B. Baek, S. H. Lee, C. H. Lee, M. C. Choi and H. M. Kang, "Correlations Between H<sub>2</sub> Permeation and Physical/Mechanical Properties in Ethylene Propylene Diene Monomer Polymers Blended with Carbon Black and Silica Fillers," *International Journal of Molecular Sciences*, Vol.24, No.3, Paper No.2865, 2023.
  - 23) D. Mori and K. Hirose, "Recent Challenges of Hydrogen Storage Technologies for Fuel Cell Vehicles," *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol.34, No.10, pp.4569–4574, 2009.
  - 24) M. Honselaar, G. Pasaoglu and A. Martens, "Hydrogen Refuelling Stations in the Netherlands: An Intercomparison of Quantitative Risk Assessments Used for Permitting," *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol.43, No.27, pp.12278–12294, 2018.
  - 25) J. K. Jung, I. G. Kim, S. K. Jeon and K. S. Chung, "Characterizing the Hydrogen Transport Properties of Rubbery Polymers by Gravimetric Analysis," *Rubber Chemistry and Technology*, Vol.94, No.4, pp.688–703, 2021.
  - 26) J. Jung, G. Kim, G. Gim, C. Park and J. Lee, "Determination of Gas Permeation Properties in Polymer Using Capacitive Electrode Sensors," *Sensors*, Vol.22, No.3, Paper No.1141, 2022.
  - 27) J. Yamabe and S. Nishimura, "Influence of Carbon Black on Decompression Failure and Hydrogen Permeation Properties of Filled Ethylene-Fropylene-Diene-Methylene Rubbers Exposed to High-Pressure Hydrogen Gas," *Journal of Applied Polymer Science*, Vol.122, No.5, pp.3172–3187, 2011.
  - 28) J. -K. Jung, K. -T. Kim, N. -K. Chung, U. -B. Baek and S. -H. Nahm, "Characterizing the Diffusion Property of Hydrogen Sorption and Desorption Processes in Several Spherical-Shaped Polymers," *Polymers*, Vol.14, No.7, Paper No.1468, 2022.
  - 29) J. K. Jung, I. G. Kim, K. S. Chung and U. B. Baek, "Analyses of Permeation Characteristics of Hydrogen in Nitrile Butadiene Rubber Using Gas Chromatography," *Materials Chemistry and Physics*, Vol.267, Paper No.124653, 2021.
  - 30) J. Yamabe and S. Nishimura, "Influence of Fillers on Hydrogen Penetration Properties and Blister Fracture of Rubber Composites for O-ring Exposed to High-Pressure Hydrogen Gas," *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol.34, No.4, pp.1977–1989, 2009.
  - 31) J. K. Jung, I. G. Kim, K. -T. Kim, U. B. Baek and S. H. Nahm, "Novel Volumetric Analysis Technique for Characterizing the Solubility and Diffusivity of Hydrogen in Rubbers," *Current Applied Physics*, Vol.26, pp.9–15, 2021.
  - 32) J. K. Jung, J. H. Lee, J. Y. Park and S. K. Jeon, "Modeling of the Time-Dependent H<sub>2</sub> Emission and Equilibrium Time in H<sub>2</sub>-Enriched Polymers with Cylindrical, Spherical and Sheet Shapes and Comparisons with Experimental Investigations," *Polymers*, Vol.16, No.15, Paper No.2158, 2024.
  - 33) J. K. Jung, I. G. Kim, S. K. Jeon, K. -T. Kim, U. B. Baek and S. H. Nahm, "Volumetric Analysis Technique for Analyzing the Transport Properties of Hydrogen Gas in Cylindrical-Shaped Rubbery Polymers," *Polymer Testing*, Vol.99, Paper No.107147, 2021.
  - 34) C. Zhou, Y. Huang, Y. Zheng and Z. Hua, "Hydrogen Permeation Behavior of Rubber Sealing Materials for Hydrogen Infrastructure: Recent Advances and Perspectives," *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol.59, pp.742–754, 2024.
  - 35) J. K. Jung, J. H. Lee, J. S. Jang, N. K. Chung, C. Y. Park, U. B. Baek and S. H. Nahm, "Characterization Technique of Gases Permeation Properties in Polymers: H<sub>2</sub>, He, N<sub>2</sub> and Ar Gas," *Scientific Reports*, Vol.12, Paper No.3328, 2022.
  - 36) J. K. Jung, I. G. Kim, K. S. Chung and U. B. Baek, "Gas chromatography techniques to evaluate the hydrogen permeation characteristics in rubber: ethylene propylene diene monomer," *Scientific Reports*, Vol.11, Paper No.4859, 2021.
  - 37) J. K. Jung and J. H. Lee, "High-Performance Hydrogen Gas Sensor System Based on Transparent Coaxial Cylinder Capacitive Electrodes and a Volumetric Analysis Technique," *Scientific Reports*, Vol.14, Paper No.1967, 2024.
  - 38) J. K. Jung, K. -T. Kim, J. H. Lee and U. B. Baek, "Effective and Low-Cost Gas Sensor Based on a Light Intensity Analysis of a Webcam Image: Gas Enriched Polymers under High Pressure," *Sensors and Actuators B: Chemical*, Vol.393, Paper No.134258, 2023.
  - 39) ASTM D1434-23, "Standard Test Method for Determining Gas Permeability Characteristics of Plastic Film and Sheeting," *ASTM International*,

- 2023.
- 40) ISO 15105-1, "Plastics — Film and Sheet — Determination of Gas-Transmission Rate — Part 1: Differential-Pressure Method," International Organization for Standardization, Geneva, Switzerland, 2007.
  - 41) R. M. Barrer, *Diffusion in and through Solids*, Рипол Классик, 1941.
  - 42) D. W. Brubaker and K. Kammermeyer, "Flow of Gases through Plastic Membranes," *Industrial & Engineering Chemistry*, Vol.45, No.5, pp.1148–1152, 1953.
  - 43) G. J. Van Amerongen, "The Permeability of Different Rubbers to Gases and Its Relation to Diffusivity and Solubility," *Journal of Applied Physics*, Vol.17, No.11, pp.972–985, 1946.
  - 44) A. Koga, K. Uchida, J. Yamabe and S. Nishimura, "Evaluation on High-Pressure Hydrogen Decompression Failure of Rubber O-ring Using Design of Experiments," *International Journal of Automotive Engineering*, Vol.2, No.4, pp.123–129, 2011.
  - 45) J. Yamabe, S. Nishimura and A. Koga, "A Study on Sealing Behavior of Rubber O-ring in High Pressure Hydrogen Gas," *SAE International Journal of Materials and Manufacturing*, Vol.2, No.1, pp.452–460, 2009.
  - 46) J. K. Jung, J. H. Lee, Y. W. Kim and N. K. Chung, "Development of Portable Gas Sensing System for Measuring Gas Emission Concentration And Diffusivity Using Commercial Manometric Sensors in Gas Exposed Polymers: Application to Pure Gases, H<sub>2</sub>, He, N<sub>2</sub>, O<sub>2</sub> and Ar," *Sensors and Actuators B: Chemical*, Vol.418, Paper No.136240, 2024.
  - 47) H. M. Kang, M. C. Choi, J. H. Lee, Y. M. Yun, J. S. Jang, N. K. Chung, S. K. Jeon, J. K. Jung, J. H. Lee and J. H. Lee, "Effect of the High-Pressure Hydrogen Gas Exposure in the Silica-Filled EPDM Sealing Composites with Different Silica Content," *Polymers*, Vol.14, No.6, Paper No.1151, 2022.
  - 48) J. K. Jung, U. B. Baek, S. H. Lee, M. C. Choi and J. W. Bae, "Hydrogen Gas Permeation in Peroxide-Crosslinked Ethylene Propylene Diene Monomer Polymer Composites with Carbon Black and Silica Fillers," *Journal of Polymer Science*, Vol.61, No.6, pp.460–471, 2023.
  - 49) J. K. Jung, C. H. Lee, U. B. Baek, M. C. Choi and J. W. Bae, "Filler Influence on H<sub>2</sub> Permeation Properties in Sulfur-CrossLinked Ethylene Propylene Diene Monomer Polymers Blended with Different Concentrations of Carbon Black and Silica Fillers," *Polymers*, Vol.14, No.3, Paper No.592, 2022.
  - 50) R. Karpeles and A. V. Grossi, "EPDM Rubber Technology," in *Handbook of Elastomers*, CRC Press, pp.863–894, 2000.
  - 51) J. K. Jung, J. H. Lee, S. K. Jeon, U. B. Baek, S. H. Lee, C. H. Lee and W. J. Moon, "H<sub>2</sub> Uptake and Diffusion Characteristics in Sulfur-Crosslinked Ethylene Propylene Diene Monomer Polymer Composites with Carbon Black and Silica Fillers after High-Pressure Hydrogen Exposure Reaching 90 MPa," *Polymers*, Vol.15, No.1, Paper No.162, 2022.
  - 52) H. Kang, J. Bae, J. Lee, Y. Yun, S. Jeon, N. Chung, J. Jung, U. Baek, J. Lee and Y. Kim, "The Synergistic Effect of Carbon Black/Carbon Nanotube Hybrid Fillers on the Physical and Mechanical Properties of EPDM Composites after Exposure to High-Pressure Hydrogen Gas," *Polymers*, Vol.16, No.8, Paper No.1065, 2024.
  - 53) B. -L. Choi, J. K. Jung, U. B. Baek and B. -H. Choi, "Effect of Functional Fillers on Tribological Characteristics of Acrylonitrile Butadiene Rubber after High-Pressure Hydrogen Exposures," *Polymers*, Vol.14, No.5, Paper No.861, 2022.
  - 54) S. K. Jeon, O. H. Kwon, N. H. Tak, N. K. Chung, U. B. Baek and S. H. Nahm, "Relationships between Properties and Rapid Gas Decompression (RGD) Resistance of Various Filled Nitrile Butadiene Rubber Vulcanizates under High-Pressure Hydrogen," *Materials Today Communications*, Vol.30, Paper No.103038, 2022.
  - 55) Y. Moon, H. Lee, J. Jung and H. Han, "Direct Visualization of Carbon Black Aggregates in Nitrile Butadiene Rubber by THz Near-Field Microscope," *Scientific Reports*, Vol.13, Paper No.7846, 2023.
  - 56) J. K. Jung, C. H. Lee, M. S. Son, J. H. Lee, U. B. Baek, K. S. Chung, M. C. Choi and J. W. Bae, "Filler Effects on H<sub>2</sub> Diffusion Behavior in Nitrile Butadiene Rubber Blended with Carbon Black and Silica Fillers of Different Concentrations," *Polymers*, Vol.14, No.4, Paper No.700, 2022.
  - 57) G. -H. Kim, Y. -I. Moon, J. -K. Jung, M. -C. Choi and J. -W. Bae, "Influence of Carbon Black and Silica Fillers with Different Concentrations on Dielectric Relaxation in Nitrile Butadiene Rubber Investigated by Impedance Spectroscopy," *Polymers*, Vol.14, No.1, Paper No.155, 2021.
  - 58) A. A. Basfar, "Hardness Measurements of Silicone Rubber and Polyurethane Rubber Cured by Ionizing Radiation," *Radiation Physics and Chemistry*, Vol.50, No.6, pp.607–610, 1997.

- 59) J. Feng, Q. Zhang, Z. Tu, W. Tu, Z. Wan, M. Pan and H. Zhang, "Degradation of Silicone Rubbers with Different Hardness in Various Aqueous Solutions," *Polymer Degradation and Stability*, Vol.109, pp.122–128, 2014.
- 60) G. Theiler, N. Cano Murillo and A. Hausberger, "Effect of Hydrogen Pressure on the Fretting Behavior of Rubber Materials," *Lubricants*, Vol.12, No.7, Paper No.233, 2024.
- 61) J. K. Jung, "Review of Developed Methods for Measuring Gas Uptake and Diffusivity in Polymers Enriched by Pure Gas under High Pressure," *Polymers*, Vol.16, No.5, Paper No.723, 2024.
- 62) J. K. Jung, U. B. Baek, S. H. Nahm and K. S. Chung, "Hydrogen Sorption and Desorption Properties in Rubbery Polymer," *Materials Chemistry and Physics*, Vol.279, Paper No.125745, 2022.
- 63) H. Fujiwara, H. Ono and S. Nishimura, "Effects of Fillers on the Hydrogen Uptake and Volume Expansion of Acrylonitrile Butadiene Rubber Composites Exposed to High Pressure Hydrogen: Property of Polymeric Materials for High Pressure Hydrogen Devices (3)," *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol.47, No.7, pp.4725–4740, 2022.
- 64) J. K. Jung, I. G. Kim, K. S. Chung, Y. -I. Kim and D. H. Kim, "Determination of Permeation Properties of Hydrogen Gas in Sealing Rubbers Using Thermal Desorption Analysis Gas Chromatography," *Scientific Reports*, Vol.11, Paper No.17092, 2021.
- 65) H. Fujiwara, H. Ono, K. Ohyama, M. Kasai, F. Kaneko and S. Nishimura, "Hydrogen Permeation under High Pressure Conditions and the Destruction of Exposed Polyethylene: Property of Polymeric Materials for High-Pressure Hydrogen Devices (2)," *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol.46, No.21, pp.11832–11848, 2021.
- 66) J. K. Jung, I. G. Kim, K. -T. Kim, K. S. Ryu and K. S. Chung, "Evaluation Techniques of Hydrogen Permeation in Sealing Rubber Materials," *Polymer Testing*, Vol.93, Paper No.107016, 2021.
- 67) J. K. Jung, K.-T. Kim and K. S. Chung, "Two Volumetric Techniques for Determining the Transport Properties of Hydrogen Gas in Polymer," *Materials Chemistry and Physics*, Vol.276, Paper No.125364, 2022.
- 68) H. Fujiwara, H. Ono, K. Onoue and S. Nishimura, "High-Pressure Gaseous Hydrogen Permeation Test Method: Property of Polymeric Materials for High-Pressure Hydrogen Devices (1)," *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol.45, No.53, pp.29082–29094, 2020.
- 69) J. K. Jung, K. -T. Kim, U. B. Baek and S. H. Nahm, "Volume Dependence of Hydrogen Diffusion for Sorption and Desorption Processes in Cylindrical-Shaped Polymers," *Polymers*, Vol.14, No.4, Paper No.756, 2022.
- 70) G. Firpo, E. Angeli, P. Guida, R. L. Savio, L. Repetto and U. Valbusa, "Gas Permeation through Rubbery Polymer Nano-Corrugated Membranes," *Scientific Reports*, Vol.8, No.1, Paper No.6345, 2018.
- 71) J. Humpenöder, "Gas Permeation of Fibre Reinforced Plastics," *Cryogenics*, Vol.38, No.1, pp.143–147, 1998.
- 72) M. -H. Klopffer, P. Berne and É. Espuche, "Development of Innovating Materials for Distributing Mixtures of Hydrogen and Natural Gas: Study of the Barrier Properties and Durability of Polymer Pipes," *Oil & Gas Science and Technology—Revue d'IFP Energies nouvelles*, Vol.70, No.2, pp.305–315, 2015.
- 73) J. Lagaron, R. Catalá and R. Gavara, "Structural Characteristics Defining High Barrier Properties in Polymeric Materials," *Materials Science and Technology*, Vol.20, No.1, pp.1–7, 2004.
- 74) J. K. Jung, I. G. Kim and K. Kim, "Evaluation of Hydrogen Permeation Characteristics in Rubbery Polymers," *Current Applied Physics*, Vol.21, pp.43–49, 2021.
- 75) J. Macher, A. Hausberger, A. E. Macher, M. Morak and B. Schritterser, "Critical Review of Models for H<sub>2</sub>-Permeation through Polymers with Focus on the Differential Pressure Method," *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol.46, No.43, pp.22574–22590, 2021.
- 76) R. Scheichl, M. -H. Klopffer, Z. Benjelloun-Dabaghi and B. Flaconnèche, "Permeation of Gases in Polymers: Parameter Identification and Nonlinear Regression Analysis," *Journal of Membrane Science*, Vol.254, No.1–2, pp.275–293, 2005.
- 77) D. Paul and A. DiBenedetto, "Diffusion in Amorphous Polymers," *Journal of Polymer Science Part C: Polymer Symposia*, Wiley Online Library, pp.17–44, 1965.
- 78) R. L. Jenkins, P. Nelson and L. Spirer, "Calculation of the Transient Diffusion of a Gas through a Solid Membrane into a Finite Outflow Volume," *Transactions of the Faraday Society*, Vol.66, pp.1391–1401, 1970.
- 79) J. Crank, *The Mathematics of Diffusion*, Oxford University Press, 1979.

- 80) M. Sefa and J. Setina, "Comparison of Permeation of Atmospheric Gases through Viton O-ring Gaskets for Different Initial Conditions," *Journal of Vacuum Science & Technology A*, Vol.35, No.4, 2017.
- 81) E. Ho and B. Nau, "Gas Emission by Permeation through Elastomeric Seals," *Tribology Transactions*, Vol.39, No.1, pp.180–186, 1996.
- 82) K. Brehm, K. Ecker, H. Kowalewsky and H. Weise, "Permeation through Elastomeric O-ring Seals," *Proceedings of 8th PATRAM*, Vol.2, pp.359–367, 1986.
- 83) C. Zhou, J. Zheng, C. Gu, Y. Zhao and P. Liu, "Sealing Performance Analysis of Rubber O-ring in High-Pressure Gaseous Hydrogen Based on Finite Element Method," *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol.42, No.16, pp.11996–12004, 2017.
- 84) X. Qiao, Y. Miao, X. Zhang, H. Shen, Y. Hua, L. Sun, Y. Huang, J. Xu and D. Wu, "An Analytical Model for Stress Distribution of NBR O-ring During Dynamic Hydrogen Permeation," *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol.109, pp.164–173, 2025.
- 85) J. Zhu, J. Zhang, Y. Lu, Y. Duan, L. He, C. Liu, J. Zhao and X. Liu, "Experimental and Simulation Study on the Sealing Performance of Rubber O-Rings Exposed to Hydrogen Conditions," Available at SSRN 5175699.
- 86) S. Stern, S. Fang and R. Jobbins, "Permeation of Gases at High Pressures," *Journal of Macromolecular Science, Part B: Physics*, Vol.5, No.1, pp.41–69, 1971.
- 87) Y. Naito, D. Bourbon, K. Terada and Y. Kamiya, "Permeation of High-Pressure Gases in Poly (Ethylene-Co-Vinyl Acetate)," *Journal of Polymer Science Part B: Polymer Physics*, Vol.31, No.6, pp.693–697, 1993.
- 88) JCGM 100:2008, Evaluation of Measurement Data – Guide to the Expression of Uncertainty in Measurement (GUM 1995 with Minor Corrections), Joint Committee for Guides in Metrology, 2008.
- 89) J. K. Jung, K. -T. Kim, K. S. Ryu and K. S. Chung, "Method for Determining Dissipation Factor of Capacitors Without Reference Capacitor at Voltages up to 1 kV," *Journal of Electrical Engineering & Technology*, Vol.14, pp.371–376, 2019.
- 90) J. K. Jung, A. Faisal, Y. S. Lee and K. -T. Kim, "Calibration of Voltage Transformer Test Set Using an Error Simulator," *Measurement Science and Technology*, Vol.26, No.9, Paper No.095004, 2015.
- 91) J. K. Jung, E. So, S. H. Lee and D. Bennett, "Comparison of Systems between KRIS and NRC to Evaluate the Performance Characteristics of a 400-kV Capacitive Voltage Divider," *IEEE Transactions on Instrumentation and Measurement*, Vol.60, No.7, pp.2634–2641, 2011.