

## 수소연료전지 스택용 가스켓 고무소재 개발동향

전북대학교 고분자나노공학과  
박상우 · 왕원석 · 전진석 · 원주혜 · 윤창현 · 나창운

### 1. 서 론

최근 화석연료를 대체할 수 있는 수소연료전지 자동차는 수소를 연료로 양성자 교환막을 이용하여 전기를 생산하고 이를 이용하여 자동차를 구동시키는 미래형 차량이다(Figure 1). 내연기관에서 필수적인 연소 과정을 거치지 않기 때문에 소음 및 대기오염에 대한 염려가 없다. 연료전지는 전해질에 따라 약 20종류가 있는데, 자동차용으로는 양성자 교환막(Proton Exchange Membrane, PEM) 시스템이 집중 검토되고

있다.<sup>1,2</sup> 자동차 구동에 충분한 전력을 생산하기 위해서 수백 층의 교환막을 적층하여 소위 ‘스택’의 형태로 이용되기 때문에 각 층간에 존재하는 액상 전해액과 기상 가스 등을 반드시 밀봉해야 한다. 이를 위해 고무 가스켓을 사용한다. 따라서 고무 가스켓의 요구 특성은 기계적 장기내구성과 함께 화학적 내구성 그리고 열적 내구성 (저온 및 고온특성) 등이 있다. 현재까지 이러한 목적을 달성할 수 있는 고무소재로서 실리콘 고무, 불소고무, 올레핀계 범용고무 등이 검토되고 있다. 본 리뷰에서는 수소연료전지 자동차의 개발



**박 상 우**

2015 전북대학교 고분자나노공학과 학사  
현재 전북대학교 고분자나노공학과 석사과정



**왕 원 석**

현재 전북대학교 고분자나노공학과 학사과정



**전 진 석**

현재 전북대학교 고분자나노공학과 학사과정



**원 주 혜**

현재 전북대학교 고분자나노공학과 학사과정



**윤 창 현**

현재 전북대학교 고분자나노공학과 학사과정



**나 창 운**

1984 이주대학교 화학공학과 학사  
1986 이주대학교 화학공학과 석사  
1995 Akron대학교 고분자공학과 박사  
현재 전북대학교 고분자나노공학과 교수

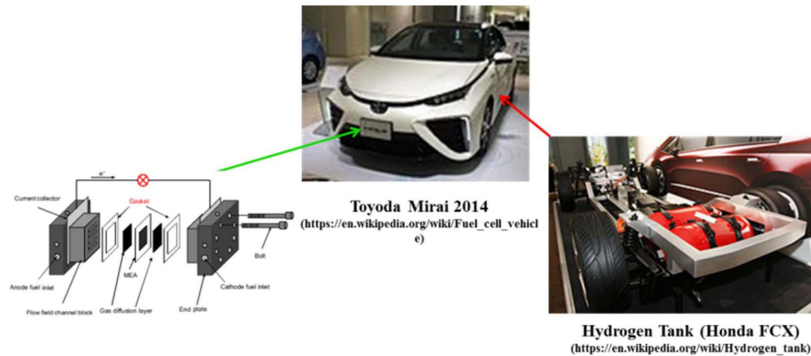


Figure 1. Concept and structure of a hydrogen fuel cell car.

과정에서 검토되었던 스택용 가스켓의 고무소재에 대해 특허와 연구문헌 분석을 통하여 기술동향을 간략히 살펴보고자 한다.

## 2. 특허분석을 통한 기술동향

수소연료전지 스택용 가스켓에 관련된 특허를 빠짐 없이 검색하기 위해 ‘가스켓 (Gasket)’ 이라는 키워드로 검색한 결과 Figure 2에 나타난 바와 같이 약 20만 건이 검색되었고, 그 중 ‘연료전지 (Fuel cell)’ 관련 특허가 1만 건이 확인되었다. 고무소재 종류별로 다시 분류한 결과 불소계, 실리콘계, 올레핀계, 블렌드계 등으로 나타났고, 실리콘계가 압도적으로 많은 관심을

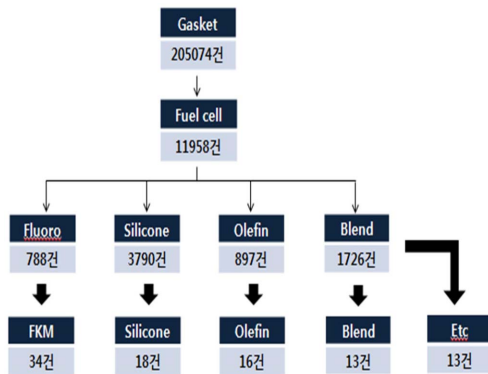


Figure 2. Classification of key words in patent search.

Table 1. Summary of patent depending on various classifications

재료	FKM	Silicone	Olefin	Blend		
	34	18	16	FKM+Silicone 10	FKM+Olefin 3	Etc 13
출원국	국내		국외			
	22	미국 (US) 26	일본 (JP) 39	유럽 (EU) 3	기타 (Etc) 4	
분류항목	국내		국외			
	대표출원인	NOK Corporation (JP) 7	현대자동차주식회사 (KR) 3	Shin-Etsu Chemical Co., Ltd. (JP) 11	NOK Corporation (JP) 11	Daikin Industries (JP) 7
공개일	1980 ~ 1989 년 1		1990 ~ 1999 년 8	2000 ~ 2009 년 68		2010 ~ 현재 17
가교	Peroxide 28		Sulfur 3		Etc 63	
전체	94					

받고 있는 것으로 나타났다. 이를 다시 수소연료전지 스택용 고무소재로 국한시키면 약 94건으로 비교적 특허출원이 예상보다 많지 않은 것으로 분석되었다.

수소연료전지 스택용 고무소재에 관련된 특허를 보다 상세하게 재료별, 출원국별, 출원인별 등으로 분류하여 Table 1에 정리하였다.

Figure 3에 고무소재 종류별 특허출원 경향을 도시하였다. 1980년 초반부터 관련특허가 출원되었고, 2000년대에 들면서 수소연료전지 자동차에 관심이 집중되면서 관련 특허도 급격히 증가하는 것으로 나타났다. 고무종류는 초기에 실리콘 고무관련 특허가 출원되었고, 이후 불소고무와 올레핀계 고무관련 특허출원이 활발한 것으로 나타났다. 이는 초기에 저렴한 단가, 우수한 가공성, 내열성 등으로 인해 실리콘 고무

가 주로 검토되었으나, 내산성 등의 약점 때문에 1990년대부터 우수한 내산성 및 내열성 등이 특징인 불소고무(FKM)가 검토된 것으로 분석되었다. 그러나 불소고무가 고가이고 가공성이 상대적으로 좋지 않기 때문에 2000년대에 들면서 저가이면서 우수한 내산성 등의 장점을 가진 올레핀계 고무조성에 관심이 집중되는 경향을 나타내었다.

출원국가별로는 미국이 가장 빠른 1980년대 초반부터 관련 특허들을 출원했으며, 일본이 그 뒤를 따라 1990년대부터 관련 특허를 출원하기 시작하였다 (Figure 4). 한국은 2000년대에 들어서야 관련 연구 진행 및 특허 출원 등이 이루어지고 있는 것으로 나타났다.

특허 출원인별로는 화학계 재료 회사들이 대부분의

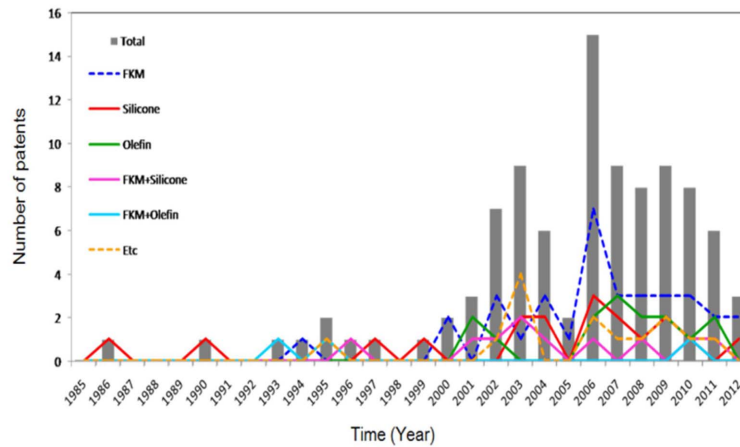


Figure 3. A trend of rubber type (1985~2012).

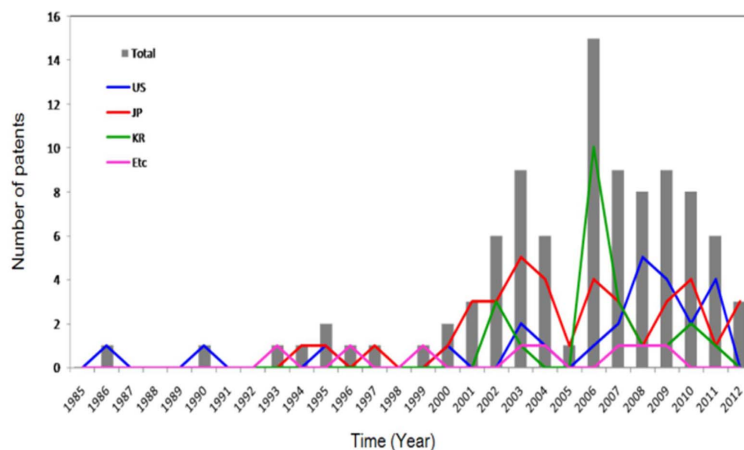


Figure 4. A trend of nation for patent applications (1985~2012).

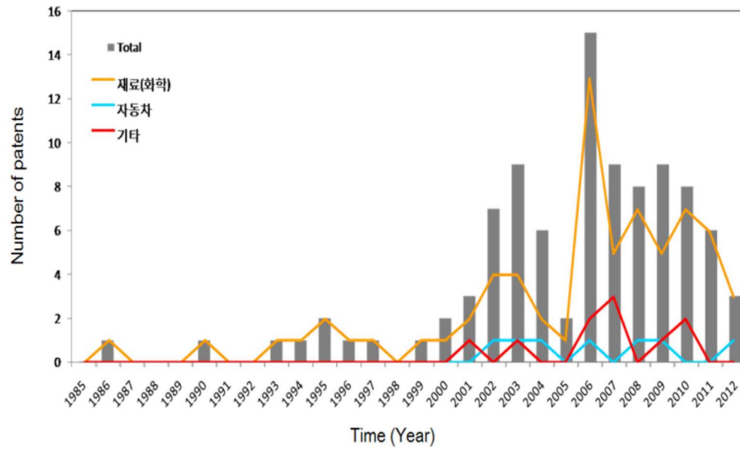


Figure 5. A trend of company for patent applications (1985~2012).

관련 특허를 가지고 있는 것으로 나타났으며, 자동차 회사 자체의 연료전지 가스켓 컴파운드 조성 관련 특허의 수는 아직까지 많지 않은 것으로 나타났다 (Figure 5).

### 3. 문헌분석을 통한 기술동향

일반적인 가스켓 고무소재에 대한 연구는 지난 수십 년 동안 많이 진행되어 왔으나, 수소연료전지 스택과 같은 특수한 환경조건에 잘 견디는 고무소재에 대한 연구는 최근에서야 관심이 집중되고 있다. 전술한 바와 같이 이러한 용도에 적합한 고무소재는 크게 불소계, 실리콘계, 올레핀계로 구분할 수 있고, 각 고무의 주요 특징을 Table 2에 정리하였다.<sup>32</sup> 각 고무소재에 대하여 보다 구체적인 연구내용과 제조된 가스켓의 노화거동을 다음에 살펴보았다.

#### 3.1. 실리콘 고무

실리콘 고무는 가공성이 매우 우수하고 내열성과 광범위한 사용 온도 조건 등으로 수소연료전지 스택 초기개발 단계에서 적용이 검토되었다. 그러나 내산성이 취약하여 스택내부와 같이 산성조건에 장시간 노출되면 노화에 의해 실리콘 파편조각들이 떨어져 나오게 되고 백금과 같은 촉매표면을 오염시켜 연료전지 효율감소를 유발시킬 수 있다.<sup>10</sup> 이러한 실리콘 고무의 노화거동은 다음에 기술된 최근 연구에서도 확인되고 있다.

Cui 연구팀은<sup>7</sup> 액체 실리콘 고무(Liquid Silicone Rubber, LSR)의 다양한 온도와 응력조건에서 응력완화 거동을 조사하였고, Williams-Landel-Ferry (WLF) 방정식을 적용하여 수명을 예측하였다. 약 70°C의 물과 공기조건에서 예측된 수명은 각각 5,000시간(6.9개월) 및 9,000시간(12.5개월)으로 나타났다. Schulze 등은<sup>11</sup> 장기간 작동시킨 연료전지 스택에 사용된 실리콘 가스켓의 성분을 분석하였다. 그 결과 실리콘 가스켓과 인접한 음극과 양극에서 공히 실리콘 성분이 검출되는 것을 확인하였다. Cleghorn<sup>12</sup>과 St-Pierre<sup>13</sup>도 유사한 실리콘 노화거동을 보고하였다.

#### 3.2. 불소고무

실리콘 고무의 단점인 내산화성을 보완할 수 있는 고무로써 검토된 것이 바로 불소고무이다. 불소고무는 범용고무나 실리콘고무에 비해 단가가 매우 높고, 사출성형과 같은 가공에 적용하는 것이 제한적임에도 불구하고 우수한 내열성과 내산화성 때문에 사용되고 있다. 불소고무의 노화거동 연구는 상대적으로 많지 않다. 아민으로 가교된 불소고무인 경우 (Viton® A), 알칼리 조건에 노출되면 노화에 의해 표면이 거칠어지는 것으로 보고되었다.<sup>14</sup> 이러한 노화의 메커니즘으로 탈수소 불소화에 의해 고무사슬에 이중결합이 형성됨으로써 산소나 오존의 공격에 취약하게 되기 때문으로 설명되었다. 또한 유기화 점토를 불소고무에 첨가할 경우 저분자 유기물에 의해 불소고무의 노화가 진행할 수도 있다.<sup>15,16,17</sup> Sugama 등은<sup>18</sup> 불소계 고

**Table 2. Characteristics of major rubbers for the gasket material in PEM fuel cell<sup>32</sup>**

Type of rubber	Temperature range of application (°C)		Resistance to chemicals	Crack initiation time (weeks)	Disadvantage	Cost
	Lower	Upper				
Fluorocarbon rubber (FKM) or Fluoroelastomer (FPM) <sup>3, 4, 5</sup>	-26	+205	Excellent	>45 63 (80°C)	Hard and expensive, but less expensive than FFKM	High
Tetrafluoroethylene propylene (FEPM)	-5	+232	Excellent		Tetrapolymers are most costly and can't be use below -5°C	High
Perfluorocarbon rubber (FFKM) <sup>5</sup>			Excellent		Rather hard and prohibitively expensive	High
Polytetrafluoroethylene PTFE <sup>5, 6</sup>	+25	+180	Excellent		When used alone (flows or there can be creep)	Medium
Fluorosilicone (FSR) <sup>4</sup>	-70	+170	Very good	63 (80°C)	Typically not good for dynamic seals due to friction properties and poor abrasion resistance	High-medium
Liquid silicone rubber (LSR) <sup>4</sup>	-90	+250	Inferior	42 (80°C)	The silicone rubber materials degraded under the test fuel cell conditions, significant amount of silicone leachants and it reduce the efficiency of Pt catalyst.	Medium
Silicone Rubber (SR) <sup>7</sup>	-56	+205	Inferior	46 (80°C) 53 (70°C)		
Silicone rubber, S (SR) <sup>3, 4</sup>	-100	+250	Inferior	6 (80°C)		Medium
Silicone rubber, G (SR) <sup>3</sup>	-100	+250	Inferior			Medium
Ethylene-propylene-diene rubber (EPDM) <sup>3, 8, 9</sup>	-45	+120	Very good	14 (80°C) 47 (80°C)	Poor outgassing characteristics	Low

무를 약 150°C이상의 고온염수 펌프에 적용하여 관찰한 결과 산화에 의해 C-F와 C-C 결합이 파괴되어 결국 표면이 거칠게 되는 노화현상을 보고하였다. 그러나 수소연료전지 차량의 구동조건이 120°C 이하라는 점을 감안한다면 불소고무는 매우 유용한 가스켓 소재로 생각할 수 있다. 그러나 일반적인 불소고무의 유리전이온도가 -20~ -10°C라는 점을 고려한다면 저온 안정성에서는 매우 불리하기 때문에 수소연료전지 차량에 적용하는데 한계점을 갖고 있다.

### 3.3. 올레핀계 고무

실리콘 고무의 열악한 내산성과 불소고무의 고가, 가공 난이성, 열악한 내한성 등의 단점을 보완하기 위한 방안으로 비교적 최근에 활발히 검토되고 있는 올레핀계 고무는 에틸렌-프로필렌-디엔-모노머(EPDM)

이다.<sup>19</sup> 가교된 EPDM은 고분자 주사슬에 이중결합이 매우 작기때문에 열, 빛, 오존 등 내산화성이 우수하다. 그러나 불소고무에 비해 내화학성과 내열성 측면에서는 취약하기 때문에 이에 대한 연구가 활발히 이루어지고 있다.

Mitra 등은<sup>20,21</sup> 산성조건 (20% Cr/H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>)에서 EPDM의 화학적 노화거동을 조사하였다. X-ray Photoelectron Spectroscopy (XPS)와 Attenuated Total Reflection-Fourier Transform Infrared (ATR-FTIR) 등으로 표면에서의 분자구조 변화거동을 관찰한 결과 O/C 비율이 증가하였고, 히드록실/카르보닐/카르복실레이트 피크가 관찰됨으로써 산화거동을 확인하였다. 과산화물로 가교된 EPDM의 경우 가교조제를 사용하면 화학적 노화가 더 심화되는 것으로 보고하였다. 표면의 분자구조변화에 기인된 노화는 결국 벌크 고무의 기계적 물성 하락에 크게 기여하는 것으로 나타났다. 또한 열

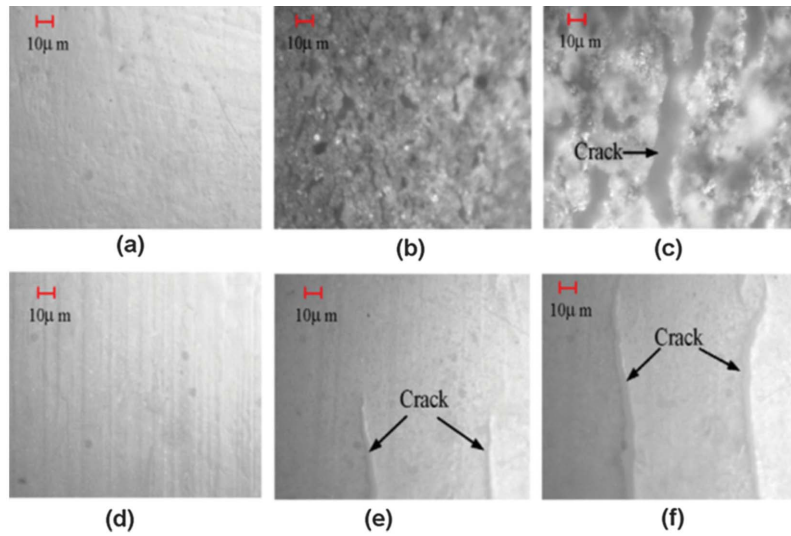


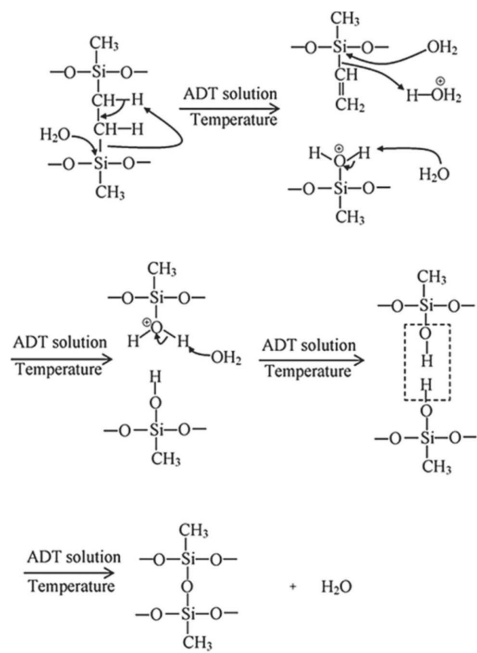
Figure 7. SEM micrograph of a particle of the backside of the cathode backing after fuel cell operation (a) and the corresponding EDX mappings for carbon (b), fluorine (c), silicon (d), oxygen (e) and platinum (f).<sup>11</sup>

노화를 통해서 표면에너지의 변화도 보고 되었다.<sup>22</sup> Tan등은 연료전지 스택과 유사한 환경에서 EPDM의 기계적 특성을 조사하였는데 35주 이내에서는 큰 변화는 보이지 않은 것으로 나타났다.<sup>3,9,23,24</sup>

### 3.4. 수소연료전지 가스켓의 노화거동

실제 수소연료전지 차량의 구동 중에 스택 가스켓의 노화거동을 이해하는 것은 차량개발과정에서 매우 중요하다. 따라서 실제 스택환경과 유사한 가속노화 시험(ADT) 조건에서 고무 가스켓 노화거동에 대한 연구가 진행되고 있다. Tan 등은<sup>23,25</sup> ADT 조건(HF, H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>)과 실제 스택과 유사한 압축조건에서 실리콘 고무의 노화거동을 연구하였다. 노화온도를 60°C에서 80°C로 증가하면 노화는 더 빠른 속도로 진행됨을 확인하였다. 또한 실리콘 고무종류 (S, G)에 따라서도 매우 큰 영향을 받는 것으로 나타났다(Figure 6). 노화시간이 증가함에 따라 고무표면에 크랙이 형성되었고, 45주 이후에는 표면의 색깔이 변하면서 결국 시편파괴로 이어졌다.

실리콘 고무의 노화메커니즘을 Scheme 1에 도시하였다. 실리콘 고무 주사슬의 Si-O-Si 결합은 강산에 의해 Si-OH로 변하고, 결국 Si-O 변하게 된다고 보고하였다. 따라서 실리콘 고무의 노화는 탈가교반응과



Scheme 1. Proposed mechanism of chemical reaction during degradation of silicone rubber at an ADT solution.<sup>23</sup>

함께 주사슬 절단반응도 함께 관여하는 것으로 나타났다.<sup>26,27,28,29</sup>

실제 수소연료전지 차량에 적용되었던 실리콘 가스

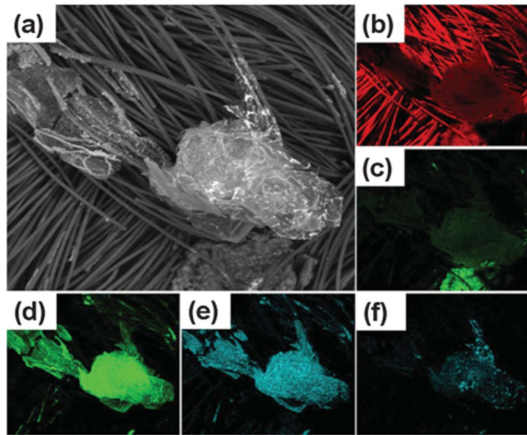


Figure 8. A gasket failure at cathode.<sup>30</sup>

켓에 대한 정밀분석결과 실리콘 가스켓이 열이나 산에 의해 분해되는 과정에서 실리콘 입자들이 양극표면에서 검출되었고(Figure 7), 이는 결국 실리콘 가스켓의 파괴로 이어졌다(Figure 8).<sup>11,30</sup>

한편 Tan 연구팀은 ADT 용액조건에서 EPDM과 불소고무의 노화거동을 비교평가 하였는데,<sup>24</sup> 동적점탄성 안정성 측면에서는 EPDM이 불소고무보다 우수한 것으로 나타났다. Lin 연구팀은 5종의 서로 다른 고무 종류 즉, 클로로프렌 고무(CR), 액상 실리콘 고무(LSR), 불소화 실리콘고무(FSR), EPDM, 불소고무

(FKM)에 대해 ADT 용액에서 노화거동 비교실험을 진행하였다.<sup>31</sup> 80°C에서 63주 후 표면 색깔변화를 살펴보면(Figure 9), CR, LSR에서 가장 큰 변화를 보였고, FKM과 EPDM은 변화가 작았다. 즉, 실리콘 고무보다 불소고무나 EPDM이 실제 스택조건에서 더 안정성을 나타낼 것으로 기대된다.

#### 4. 결론 및 제언

수소연료전지 자동차는 차세대 수소수단으로 전망되며 경제적인 파급효과도 크기 때문에 국가적인 차원의 지원이 이루어지고 있다. 아울러 관련부품을 구성하는 소재에 대한 원천기술 확보도 시급한 실정이다. 본 리뷰에서는 스택용 가스켓 소재에 대한 개발동향을 특허와 문헌을 바탕으로 전망하였다. 초기에 도입되었던 실리콘 고무는 스택내 산성조건에서 분해가 심하여 장기간 적용은 어려울 것으로 판단된다. 현재 사용되고 있는 불소고무의 경우 저온특성과 가격경쟁력에 대한 해결이 절실한 실정이다. 올레핀계 EPDM 고무는 최근 관심이 집중되고 있는 고무로써 내한성과 내노화성에 대해서는 어느 정도 확인되었으나, 100°C 이상의 고온에서 사용할 경우 노화특성을 담보할 수 없는 점이 문제점으로 예상된다.

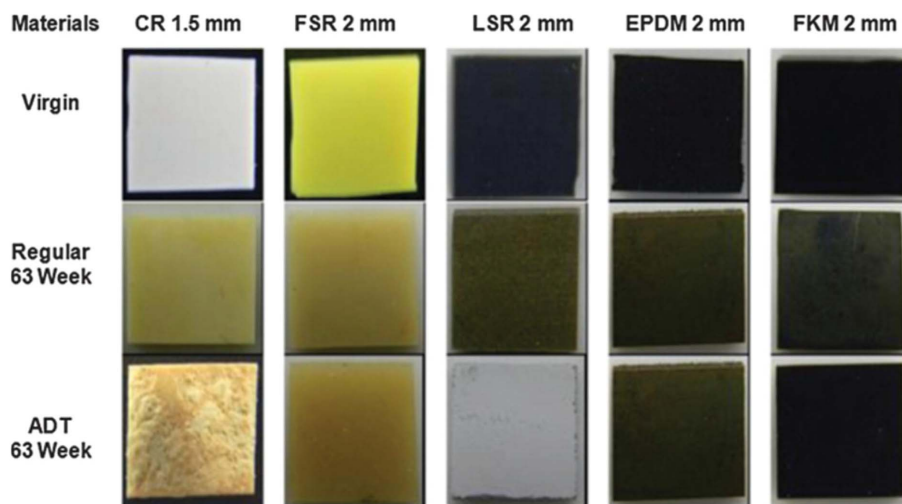


Figure 9. The color change of surface of CR, FSR, LSR, EPDM, and FKM aged in two solutions at 80°C after 63 week.<sup>4</sup>

## 감사의 글

이논문은 2016년도 정부(미래창조과학부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 지역신산업 선도인력사업 성과임 (NRF-2016H1D5A1910159).

## 참고문헌

1. K. A. Mauritz and R. B. Moore, "State of Understanding of Nafion", *Chem. Rev.*, **104**, 4535 (2004).
2. S. Gottesfeld and T. Zawodzinski, "Polymer Electrolyte Fuel Cells", *Adv. Electrochem. Sci. Eng.*, **5**, 195 (1997).
3. J. Tan, Y. J. Chao, J. W. van Zee and W. K. Lee, "Degradation of elastomeric gasket materials in PEM fuel cells", *Mater. Sci. Eng. A*, **445**, 669 (2007).
4. C. W. Lin, C. H. Chien, J. Tan, Y. J. Chao and J. W. van Zee, "Chemical degradation of five elastomeric seal materials in a simulated and an accelerated PEM fuel cell environment", *J. Power Sourc.*, **196**, 1955 (2011).
5. R. Blunk, F. Zhong and J. Owens, "Automotive composite fuel cell bipolar plates: Hydrogen permeation concerns", *J. Power Sourc.*, **159**, 533 (2006).
6. G. Bandlamudi, C. Siegel, S. Mulhaupt, T. Derith, I. Buder, J. burfeind, P. Beckhaus and A. Heinzl, Duisburg, Chemical and mechanical stability of HTPEM fuel cell components report, Germany.
7. T. Cui, C. W. Lin, C. H. Chien, Y. J. Chao and J. W. van Zee, "Service life estimation of liquid silicone rubber seals in polymer electrolyte membrane fuel cell environment", *J. Power Sourc.*, **196**, 1216 (2011).
8. J. Tan, Y. J. Chao, J. W. van Zee, X. Li, X. Wang and M. Yang, "Assessment of mechanical properties of fluoroelastomer and EPDM in a simulated PEM fuel cell environment by microindentation test", *Mater. Sci. Eng. A*, **496**, 464 (2008).
9. J. Tan, Y. J. Chao, H. Wang, J. Gong and J. W. van Zee, "Chemical and mechanical stability of EPDM in a PEM fuel cell environment", *Polym. Degrad. Stab.*, **94**, 2072 (2009).
10. V. Parry, G. Berthome, J. C. Joud, O. Lemaire and A. A. Franco, "XPS investigations of the proton exchange membrane fuel cell active layers aging: Characterization of the mitigating role of an anodic CO contamination on cathode degradation", *J. Power Sourc.*, **196**, 2530 (2011).
11. M. Schulze, T. Knori, A. Schneider and E. Gulzow, "Degradation of sealings for PEFC test cells during fuel cell operation", *J. Power Sourc.*, **127**, 222 (2004).
12. S. J. C. Cleghorn, D. K. Mayfield, D. A. Moore, J. C. Moore, G. Rusch, T. W. Sherman, N. T. Sisof and U. Beuscher, "A polymer electrolyte fuel cell life test: 3 years of continuous operation", *J. Power Sourc.*, **158**, 446 (2006).
13. J. St-Pierre and N. Jia, "Successful demonstration of ballard PEMFCS for space shuttle applications", *J. New Mater. Electrochem. Syst.*, **5**, 263 (2002).
14. S. Mitra, A. Ghanbari-Siahkali, P. Kingshott, K. Almdal, H. K. Rehmeier and A. G. Christensen, "Chemical degradation of fluoroelastomer in an alkaline environment", *Polym. Degrad. Stab.*, **83**, 195 (2004).
15. M. A. Kader, M. Y. Lyu and C. Nah, "A study on melt processing and thermal properties of fluoroelastomer nanocomposites", *Compos. Sci. Technol.*, **66**, 1431 (2006).
16. M. Maiti, S. Mitra and A. K. Bhowmick, "Effect of nanoclays on high and low temperature degradation of fluoroelastomers", *Polym. Degrad. Stab.*, **93**, 188 (2008).
17. Y. Wang, L. Liu, Y. Luo and D. Jia, "Aging behavior and thermal degradation of fluoroelastomer reactive blends with poly-phenol hydroxy EPDM", *Polym. Degrad. Stab.*, **94**, 443 (2009).
18. T. Sugama, "Surface analyses of fluoroelastomer bearings exposed to geothermal environments", *Mater. Lett.*, **50**, 66 (2001).
19. S. Maria-Daniela, "Physico-Mechanical Characteristics of Some EPDM/Plasticized PVC Blends", *Macromol. Symp.*, **263**, 70 (2008).
20. S. Mitra, A. Ghanbari-Siahkali, P. Kingshott, H. K. Rehmeier, H. Abildgaard and K. Almdal, "Chemical degradation of crosslinked ethylene-propylene-diene rubber in an acidic environment. Part I. Effect on accelerated sulphur crosslinks", *Polym. Degrad. Stab.*, **91**, 69 (2006).
21. S. Mitra, A. Ghanbari-Siahkali, P. Kingshott, H. K. Rehmeier, H. Abildgaard and K. Almdal, "Chemical degradation of crosslinked ethylene-propylene-diene rubber in an acidic environment. Part II. Effect of peroxide crosslinking in the



- presence of a coagent”, *Polym. Degrad. Stab.*, **91**, 81 (2006).
22. R. Nevshupa, L. Martinez, L. Alvarez, M. F. Lopez, Y. Huttel, J. Mendez and E. Roman, “Influence of thermal ageing on surface degradation of ethylene-propylene-diene elastomer” *J. Appl. Polym. Sci.*, **119**, 242 (2011).
  23. J. Tan, Y. J. Chao, X. Li and J. W. van Zee, “Degradation of silicone rubber under compression in a simulated PEM fuel cell environment”, *J. Power Sourc.*, **172**, 782 (2007).
  24. J. Tan, Y. J. Chao, M. Yang, W. K. Lee and J. W. van Zee, “Chemical and mechanical stability of a Silicone gasket material exposed to PEM fuel cell environment”, *Int. J. Hydrogen Energ.*, **36**, 1846 (2011).
  25. J. Tan, Y. J. Chao, W. K. Lee, C. S. Smith, J. W. van Zee and C. T. William, Degradation of gasket materials in a simulated fuel cell environment, *Proceedings of the 4th International Conference on Fuel Cell Science Engineering and Technology*, Irvine, CA, June (2006).
  26. J. Tan, Y. J. Chao, M. Yang, C. T. Williams and J. W. van Zee, “Degradation characteristics of elastomeric gasket materials in a simulated PEM fuel cell environment”, *J. Mater. Eng. Perform.*, **17**, 785 (2008).
  27. P. F. Aparicio, B. Gallardo-Lopez, A. M. Chaparro and L. Daza, “Physico-chemical study of the degradation of membrane-electrode assemblies in a proton exchange membrane fuel cell stack”, *J. Power Sourc.*, **196**, 4242 (2011).
  28. 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”, *Polym. Degrad. Stab.*, **109**, 122 (2014).
  29. G. Li, J. Tan and J. Gong, “Degradation of the elastomeric gasket material in a simulated and four accelerated proton exchange membrane fuel cell environments”, *J. Power Sourc.*, **205**, 244 (2012).
  30. A. Husar, M. Serra and C. Kunusch, “Description of gasket failure in a 7 cell PEMFC stack” *J. Power Sourc.*, **169**, 85 (2007).
  31. C. W. Lin, C. H. Chien, J. Tan, Y. J. Chao, and J. W. Van Zee, “Dynamic mechanical characteristics of five elastomeric gasket materials aged in a simulated and an accelerated PEM fuel cell environment”, *Int. J. Hydrogen Energ.*, **36**, 6756 (2011).
  32. U. Basuli, J. Jose, R. H. Lee, Y. H. Yoo, K. U. Jeong, J. H. Ahn and C. Nah, “Properties and Degradation of the Gasket Component of a Proton Exchange Membrane Fuel Cell—A Review”, *J. Nanosci. Nanotechnol.*, **12**, 7641 (2012).