

〈技術レポート〉

原子力関連設備向けゴムガスケット評価法の検討  
—高耐久性EPDM『EP-176』の圧縮永久ひずみ特性—

研究開発本部 浜松研究所 名 取 宏 崇  
工業製品事業本部 ゴム事業推進室 山 本 理 紗

1. はじめに

日本の原子力規制委員会は原子炉などの設計を審査するための新しい基準を作成し、その運用を開始している。原子炉と冷却系設備などを格納する容器のシール材にはゴムガスケットが使用され、耐熱性・耐蒸気性・耐放射線性に優れたものが求められている。

本稿では、一般的なゴムガスケットの漏えい機構について述べた後、ゴムガスケットを原子炉格納容器で使用した場合を想定した漏えいについて評価、考察した結果を報告する。

また、最後に原子炉格納容器のシール材に求められる耐熱性・耐蒸気性・耐放射線性に優れた、ニチアス製ゴムガスケットEP-176の特性について紹介する。

2. ゴムガスケットの漏えい機構

2.1 漏れの経路

一般的にガスケットの漏えいには浸透漏れと接面漏れの2つの経路が存在する。図1にゴムガスケットの漏れの模式図を示す。

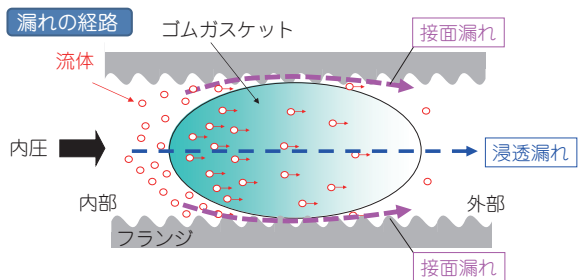


図1 ゴムガスケットの漏れの模式図

2.1.1 浸透漏れ

浸透漏れとは、ゴムガスケットの内部をガスなどの流体が吸着、拡散、離脱の過程を経て、透過する漏れである。図2に材料内部の化学結合状態と流体分子透過の模式図を示す。

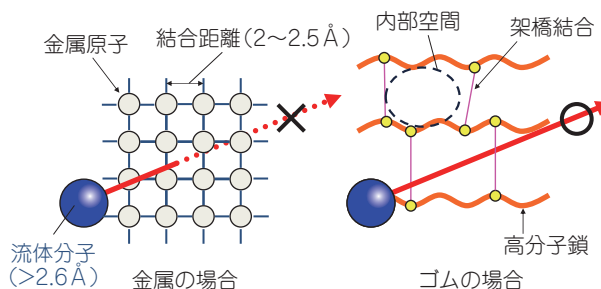


図2 材料内部の化学結合状態と流体分子透過の模式図

ガスケットが金属材料の場合、金属結合の距離 (2~2.5Å) が流体分子サイズ (例えばN<sub>2</sub>分子: 3.6Å) より小さいため、流体分子は透過することができない。一方で、ゴム材料は一次元の高分子鎖が架橋した三次元的な網目構造を形成しており、その空間が流体分子サイズよりも大きいため、ゴム材料内部で拡散し、透過することができる。これが浸透漏れのメカニズムである。

2.1.2 接面漏れ

接面漏れとは、フランジなどの基材表面とゴムガスケットの隙間から流体が漏れるものである。図3に表面粗さの異なるフランジに同一厚さのゴムガスケットを挟んで締め付けた際のフランジ間距離と漏れ量の関係を示す。フランジ表面

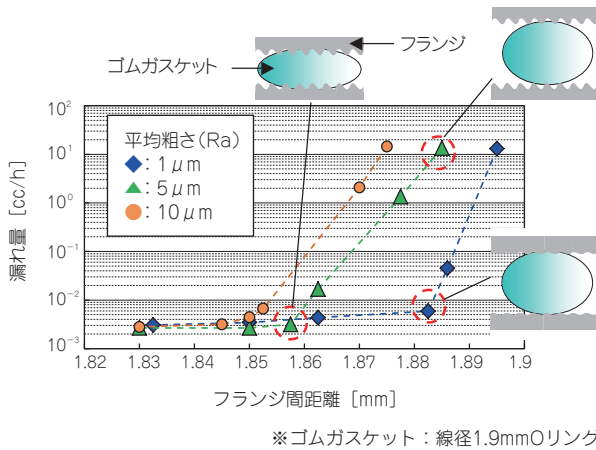


図3 表面粗さとゴムガスケット圧縮時の漏れの関係

粗さが大きいほど、フランジ表面とゴムガスケットとの隙間が大きく漏れやすいことがわかる。

また、フランジ表面との隙間を埋める因子としてゴムガスケット側の変形も大きく影響する。所定の荷重が負荷されることでフランジ表面とゴムガスケットが密着した状態を保ち、シール性を維持している。

すなわち、ゴムガスケットの接面漏れはフランジ表面とガスケットとの隙間に大きく影響され、この隙間の形成には、フランジの表面粗さとゴムガスケットの変形が関係している。

### 3. 使用環境によるゴムの劣化と漏えい

ゴムガスケットは使用環境下において熱・酸素・オゾン・水（蒸気）・光・油・圧力・放射線などさまざまな化学的・物理的ストレスにより劣化する。ここではゴムの劣化が漏えいに及ぼす影響について述べる。

#### 3.1 浸透漏れへの影響

図4にゴムの劣化状況の模式図を示す。ゴムの劣化機構は非常に複雑であるが、大別して以下

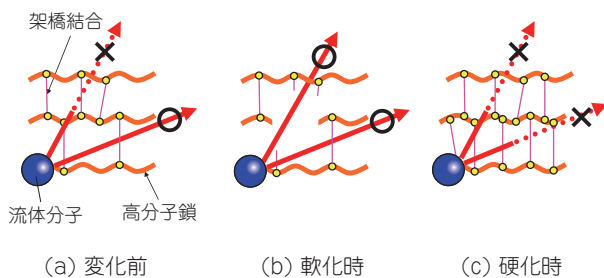


図4 ゴムの劣化状況の模式図

の2種の劣化モードが競合しておきていると考えられる。

1つめはゴムが軟らかくなる変化である（軟化）。これはゴムの架橋や分子鎖などの結合が切断されることにより引き起こされる現象である（図4b）。

この場合、結合が切断されたことでゴム内部の空間が広がり、流体分子がゴム材料内部を透過しやすくなることで、浸透漏れが増加すると考えられる。

2つめは、ゴムが硬くなる変化である（硬化）。これは、例えば酸化反応などによって架橋が進行し、化学結合が増加する現象である（図4c）。この場合、結合が増加したことで、ゴム内部の空間が狭まる。そのため、流体分子がゴム材料内部を通り抜けにくくなり、浸透漏れが低下すると考えられる。

#### 3.2 接面漏れへの影響

ゴムガスケットは長時間圧縮変形させた状態で使用され、特に高温環境下で使用すると、変形が完全には復元しない現象が生じる。これは一般的に圧縮永久ひずみと呼ばれる。

圧縮永久ひずみの概念図を図5に、また圧縮永久ひずみの算出方法を式1に示す。

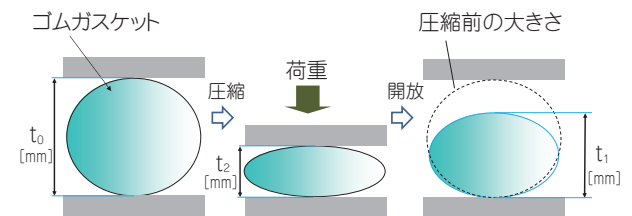


図5 圧縮永久ひずみの概念図

$$C_s = \frac{(t_0 - t_1)}{(t_0 - t_2)} \times 100 \dots\dots\dots(式1)$$

- C<sub>s</sub> : 圧縮永久ひずみ [%]
- t<sub>0</sub> : 試料の初期厚さ [mm]
- t<sub>1</sub> : 加熱試験後の試料厚さ [mm]
- t<sub>2</sub> : 圧縮時の試料厚さ [mm]

ゴムガスケットは圧縮永久ひずみが大きくなるにつれて反力が失われ、反力の低下とともに

フランジ表面への密着性も低下するため、接面漏れが引き起こされる。

すなわち、ゴムガスケットの漏えいは、実使用環境下でのゴム材料の化学的な構造の変化(劣化)、反力低下などにより、浸透漏れと接面漏れの変化で説明される。

## 4. ゴムガスケットの評価条件・方法

### 4.1 試験サンプル

日本と米国の原子力関連設備(格納容器)では一般的にシリコンゴムとエチレンプロピレンジエンゴムがガスケット材料として使用されている。本稿では、これらが当該施設で使用される場合を想定した特性評価を行った。

特性評価用試験片(後述)は表1に示す当社製のゴム材料を用いて作製した。

表1 評価試験用ゴム材料

ゴム種類	サンプル名	備考
シリコン	VMQ	汎用
エチレン プロピレン ジエンゴム	EPDM	汎用
	EP-176	高耐久

作製した試験片に対し、原子力関連設備で想定される種々の使用環境を考慮し、表2, 3に示す条件で前処理を行った。

表2 放射線処理条件一覧

放射線の種類	照射線量 (kGy)	線量率 (kGy/h)	照射時温度
γ線 (線源 Co60)	1・10・100・800	10	室温

表3 加熱処理条件一覧

加熱雰囲気	加熱温度 (°C)	加熱時間 (h)
乾燥	30・150・200・225・250	72
飽和水蒸気		

## 4.2 評価方法

前述のように漏えいには浸透漏れと接面漏れの2種類がある。本稿では、浸透漏れの指標としてガス透過係数、接面漏れの指標として圧縮永久ひずみの測定を行った。

### 4.2.1 ガス透過係数測定

ガス透過性は「JIS K 7126-1 (差圧法)」に準拠し、ガス透過係数Pで評価した。図6にガス透過係数測定法の概略図を示す。試験片は前述の処理を施した薄い円盤形状(φ58.0mm×厚さ0.5mm)のサンプルを用いた。試験ガスは原子力関連設備(格納容器)を想定し、水素ガスを用いた。ガス透過係数は式2により算出した。

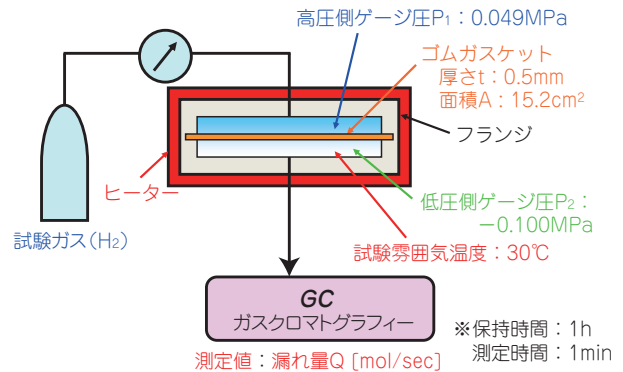


図6 ガス透過係数測定法の概略図

$$\text{ガス透過係数} P = \frac{Q \cdot t}{A \cdot (P_1 - P_2)} \dots\dots\dots (式2)$$

※単位: [mol・m / (m<sup>2</sup>・sec・MPa)]

Q: 漏れ量 [mol/sec] P<sub>1</sub>: 高圧側ゲージ圧 [MPa]  
 A: 透過面積 [m<sup>2</sup>] P<sub>2</sub>: 低圧側ゲージ圧 [MPa]  
 t: ゴムガスケットの平均厚さ [m]

### 4.2.2 圧縮永久ひずみ測定

加熱雰囲気が乾燥雰囲気の場合、圧縮永久ひずみは「JIS K 6262 B法」に準拠して評価した。飽和水蒸気雰囲気の場合は、加熱雰囲気を飽和水蒸気に変更した以外は「JIS K 6262 B法」を模して評価した。なお、試験片は前述の処理を施した大形試験片(φ29.0mm×厚さ12.5mm)を用いた。

## 5. 特性評価結果

### 5.1 ガス透過係数

#### 5.1.1 加熱による影響

加熱処理した試験片の水素ガス透過係数、架橋密度を測定した結果を図7, 表4に示す。

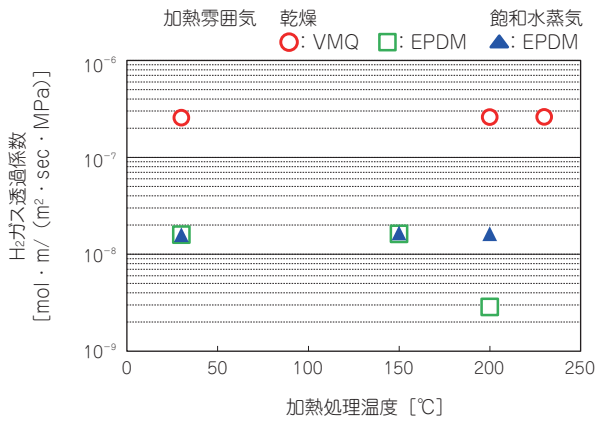


図7 加熱処理した試験片のガス透過係数測定結果

表4 加熱処理した試験片の架橋密度測定結果

サンプル	加熱雰囲気	加熱温度 (°C)	架橋密度* ( $\times 10^{-4}$ mol/cc)
VMQ	乾燥	30	5.6
		200	6.3
		225	6.5
EPDM	乾燥	30	3.4
		150	2.9
		200	50.2
	飽和水蒸気	30	3.4
		150	3.3
		200	2.6

\* Floryの式から算出, 溶媒にはトルエンを使用

VMQは乾燥雰囲気において常温から230℃まで加熱温度によるガス透過係数の変化は見られなかった。

EPDMは乾燥雰囲気において30℃から150℃まではガス透過係数に変化がないが、200℃加熱後はガス透過係数が減少した。このときEPDMは架橋密度が30℃加熱時よりも約15倍に増加していた(表4)。このことから、加熱により架橋が進み、網目構造が緻密化したため、ゴム材料内部の空間が狭くなり、ガスが透過しにくくなったと推測される。

一方、飽和水蒸気雰囲気では200℃でもガス透過係数の変化が無かった。架橋密度は30℃加熱時よりも減少しており(表4)、同時に、EPDMの硬度は低下し、軟化がみられた。このことから、200℃の水蒸気により、架橋結合が切断されたと

考えられる。ただし、この程度の架橋密度低下であれば、ガス透過性に影響がないことがわかった。

### 5.1.2 放射線照射による影響

図8、表5に放射線照射した試験片の水素ガス透過係数、架橋密度を測定した結果を示す。

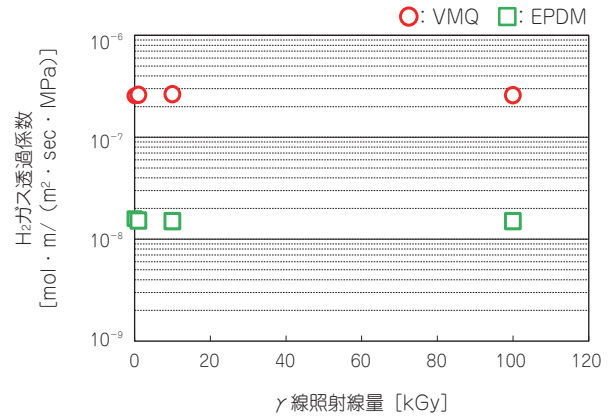


図8 放射線照射した試験片の水素ガス透過係数測定結果

表5 放射線照射した試験片の架橋密度測定結果

サンプル	照射線量 (kGy)	架橋密度* ( $\times 10^{-4}$ mol/cc)
VMQ	1	5.6
	10	6.0
	100	7.8
EPDM	1	3.2
	10	3.4
	100	4.0

\* Floryの式から算出, 溶媒にはトルエンを使用

EPDM, VMQともに100kGyまでのγ線照射でガス透過係数に変化は無かった。また、どちらもγ線照射量に伴って架橋密度はわずかに増加しただけであった(表5)。

このことから、100kGy程度の照射量では、EPDM, VMQともほとんどガス透過性に影響を及ぼさないことがわかった。

以上のことから、原子力関連設備(格納容器)を想定した今回の試験環境下で、VMQ, EPDMともゴム特性に変化(硬化, 軟化)は起きるが、ゴムガasketの漏えい経路の一つである浸透漏れが増大するほどの影響を及ぼさないことが明らかとなった。



## 5.2 圧縮永久ひずみ

加熱温度200℃、 $\gamma$ 線を800kGy照射した大形試験片の圧縮永久ひずみ測定結果を図9に示す。

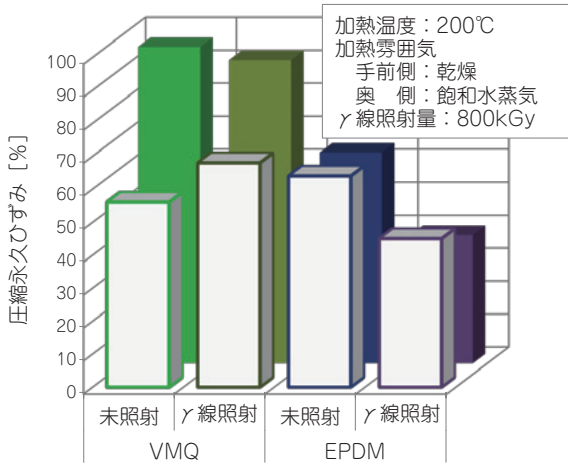


図9 圧縮永久ひずみ測定結果

VMQは $\gamma$ 線照射や飽和水蒸気雰囲気加熱により、圧縮永久ひずみの増加がみられた。また、この時VMQの硬度は大きく低下していた。このことから、 $\gamma$ 線や水蒸気によりVMQの化学結合が多く切断されたためと考えられる。

これに対しEPDMでは、水蒸気の影響はほとんどなかったが、 $\gamma$ 線を照射すると圧縮永久ひずみが減少した。これは800kGyの多量な $\gamma$ 線照射によりEPDMの架橋密度が高くなったためと推測される。すなわちEPDMは水蒸気、 $\gamma$ 線照射に対して圧縮永久ひずみの増加がないため、接面漏れを起こしにくいことがわかった。

原子力関連設備での使用を想定したゴム材料のガス透過係数、圧縮永久ひずみを評価した結果、EPDMはVMQよりもガス透過係数が小さく、耐水蒸気性、耐放射線性にも優れていた。EPDMは原子炉に重大な被害を及ぼすシビアアクシデント (SA) 時に対しても、今後、有望な材料と考えられる。

## 6. EP-176の圧縮永久ひずみ

当社では、SA時を想定した高耐久性EPDMゴムEP-176を開発した<sup>1)</sup>。図10に各種条件で処理したEP-176の圧縮永久ひずみ測定結果を示す。

EP-176は汎用のEPDMと比較して圧縮永久ひ

ずみが小さく、加熱雰囲気や $\gamma$ 線照射による影響もほとんどない良好な特性を有していることが確認された。次に、加熱温度による影響も調べた。その結果を図11に示す。

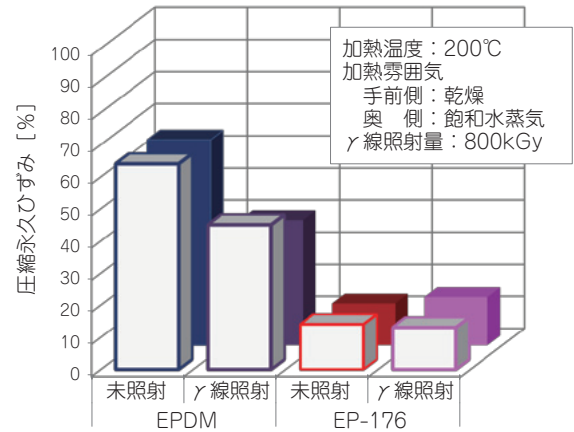


図10 EP-176の圧縮永久ひずみ測定結果

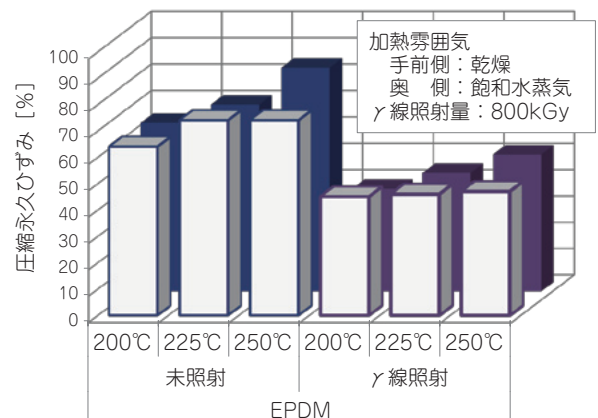
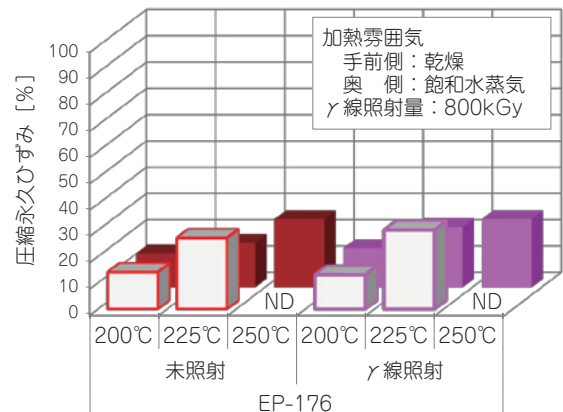


図11 EP-176およびEPDMを種々の温度で加熱した時の圧縮永久ひずみ測定結果

EP-176は加熱温度が高くなると、僅かに圧縮永久ひずみが上昇するが、汎用EPDMと比較しても良好な圧縮永久ひずみ特性を維持していることがわかった。

以上のことから、EP-176は良好な耐熱性、耐水蒸気性、耐放射線性を有するゴム材であり、SA時の環境下でもガスケットとして使用できる可能性があることが明らかとなった。

## 7. おわりに

本稿では、原子力関連設備の厳しい環境下でのゴムガスケットの漏えいについて調査・考察した。この中で、当社開発のEPDMゴムであるEP-176は、漏えいに大きく影響する特性の一つである、圧縮永久ひずみ特性が優れていることを示した。しかしながら、圧縮永久ひずみはゴム材料のシール性を代替評価する方法の一つではない。このため、今後もユーザの要求に対応し、使用環境や使用条件を考慮した試験を立案し、試験評価（水素ガス透過性など）を実施していく必要があると考える。ご意見・ご要望などをぜひお聞かせ願いたい。

## 参考文献

- 1) 山本, 渡邊, 花島:ニチアス製原子力向けEPDM「EP-176」の圧縮永久ひずみ評価報告書, ニチアス株式会社 工業製品事業本部, (2014).

\*本稿の測定値は参考値であり、保証値ではありません。

## 筆者紹介



### 名取宏崇

研究開発本部 浜松研究所  
シール材の研究開発に従事



### 山本理紗

工業製品事業本部 ゴム事業推進室  
ゴム製品全般に関する企画・開発・製品化業務に従事