

# 改良 EPDM 材料の高温環境特性の評価について

## Performance evaluation of EPDM at elevated temperature

|             |       |                  |            |
|-------------|-------|------------------|------------|
| 中部電力(株)     | 杉村 卓哉 | Takuya Sugimura  | Non Member |
| 中部電力(株)     | 松田 真一 | Shinichi Matsuda | Non Member |
| 日本バルカー工業(株) | 鈴木 憲  | Ken Suzuki       | Non Member |
| 日本バルカー工業(株) | 堤 裕介  | Yusuke Tsutsumi  | Non Member |

### Abstract

In Japanese BWR utilities, silicone rubber(VMQ) or fluoro rubber(FKM) has been used as a sealing material for the PCV upper flange and so on. However, these materials are not suitable for such use under the combined conditions of high-temperature steam and high-radiation dose by severe accident, so there is a possibility to reduce the sealing function that leads to a PCV flange leakage. Therefore, in the BWR plant owners recently decided to adopt an "improved EPDM" which has excellent characteristics against high-temperature and high-radiation emission conditions as the sealing material for the PCV upper flange.

In this paper, we explain the result of the compression set test and the leakage test using a small flange simulating the actual PCV upper flange under high temperature condition up to 300°C.

**Keywords:** EPDM, PCV, Steam, Radiation, Compression set test, Seal, Severe accident

## 1. 緒言

BWRの原子炉格納容器(以下、「PCV」という。)上蓋フランジ部等のシール部については、シール材としてシリコンゴムやフッ素ゴムを使用してきたが、これらゴム材料は、重大事故(以下、「SA」という。)時のように、200°Cの高温蒸気、数百キロGyの高放射線量が重畳するような環境では、高温劣化等によりシール機能が低下し、PCVからの漏えいの要因となる可能性が想定される[1]。

このため、BWRプラントでは、PCVシール部のシール材として、EPDM材料の高温蒸気環境下での特性、高放射線量環境下での特性を高めた、改良EPDM材料を新たに採用することとし、SA時にPCV内で想定される高放射線量、200°C、0.854MPa\*の高温、飽和蒸気環境下における圧縮永久ひずみ試験等の耐性試験により十分なシール性能が確保できることを確認してきた[2]。

当社では、更なる安全性向上の観点から、改良EPDM材料について、200°Cを超える高温環境における圧縮永

連絡先 杉村 卓哉

〒461-8680 愛知県名古屋市中区東新町1  
中部電力(株) 原子力本部 原子力部 設備設計 G  
E-mail: Sugimura.Takuya@chuden.co.jp

久ひずみ試験、実機フランジを模擬した小型フランジを用いた漏えい試験を実施しており、300°Cまでの試験が終了したことから、その結果について報告する。

\* : PCVの放射性物質の閉じ込め機能を確保できるとして設定した温度、圧力

## 2. PCVフランジ部のシール機能

PCVは事故時に原子炉から放出される放射性物質が発電所外へ放散されるのを抑制するために設けられた鋼製容器である。PCVにはプラント停止時の燃料交換や設備の点検等のために開放できるよう、フランジ部やハッチ等を設けており、その中で最も大きなものは、燃料交換の際にPCVを開放するために設けられたPCV上蓋フランジである。(Fig.1)

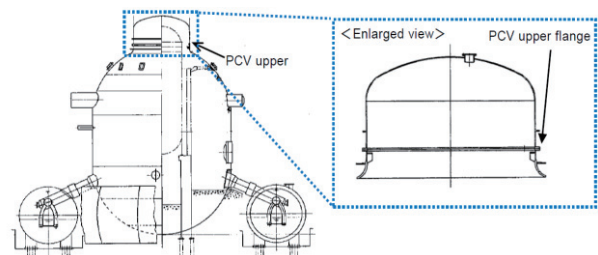


Fig.1 Structure of PCV upper flange

PCV 上蓋フランジは、プラント運転中は、内外二重に配置されたシール溝それぞれにシール材を挟み込み、ボルトで締付してシールしている。(Fig.2)

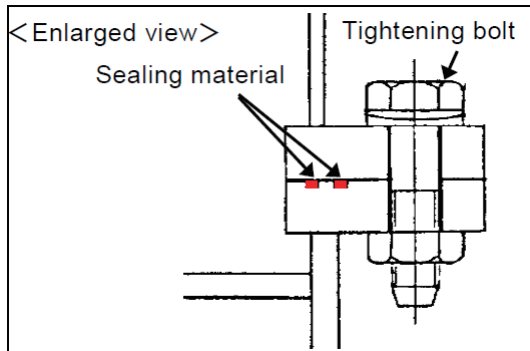


Fig.2 PCV upper flange (enlarged view)

事故等においてPCV内の圧力が上昇していく場合には、フランジ部に開口する方向の力が加わり、フランジ外周部にてフランジを締結しているボルトが支点となってフランジが内側から開口していく。

なお、浜岡原子力発電所4号機（以下、「浜岡4号機」という。）のSA時のPCV上蓋フランジ部の開口量は、PCV上蓋フランジ部の三次元FEM解析結果から数mmと評価している。(Fig.3)

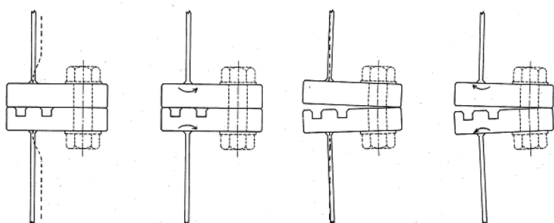


Fig.3 Flange behavior under high pressure condition

シール材は、シール溝に圧縮された状態で収められている。このため、フランジ部の開口に対してシール材が追従できる場合には、外部への漏えいを防止することができる。

しかし、シール材の劣化（復元力の低下）等により、フランジ部の開口にシール材が追従できない場合には、外部への漏えいが生じることとなる。(Fig.4)

浜岡4号機におけるシール材は、SA時のフランジ部の開口量（数mm）に対して、十分追従できることから、PCVの上蓋フランジ部等シール部のシール性能は、シール材である改良EPDM材料の劣化、特に復元力を

確認することによって評価できる。

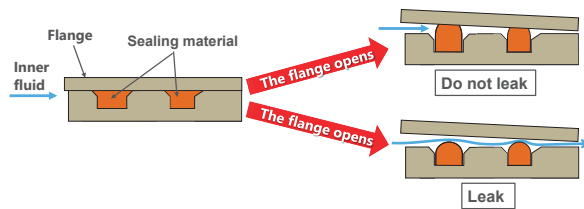


Fig.4 Leakage mechanism of flange portion

以下では、PCV等のシール材として新たに採用した改良EPDM材料について、SA環境を模擬して実施した下記試験について述べる。

- ・圧縮永久ひずみ試験、外観確認
- ・実機フランジを模擬した小型フランジを用いた漏えい試験

### 3. 圧縮永久ひずみ試験及び外観確認

#### 3.1 圧縮永久ひずみ試験

シール材は、圧縮状態にてシールしており、シール材に全く劣化がない場合、圧縮状態から解放すると完全に元の形に復元（弾性変形）するが、圧縮状態で高温使用する等により劣化した場合には、圧縮状態から解放しても完全に復元せずに塑性変形してしまう。

シール材の復元量の評価の一つに、圧縮永久ひずみがあり、「JIS K 6262（加硫ゴム及び熱可塑性ゴム-常温、高温及び低温における圧縮永久ひずみの求め方）」にて、圧縮永久ひずみ率の測定方法等が規定されており、圧縮永久ひずみ率は完全に元の形に復元した状態を0%、圧縮状態から解放しても復元せずに塑性変形した状態を100%として定義されている。(Fig.5)

$$Cs = (h_0 - h_2) / (h_0 - h_1) \times 100$$

Cs: 圧縮永久ひずみ(%)

h0: 試験片の元の厚さ(mm)

h1: 試験片の圧縮時の厚さ(mm)

h2: 圧縮治具から取り外した試験片の厚さ(mm)



Fig.5 Method of calculating compression set ratio

### 3.2 試験条件

試験条件として、SA 時に PCV 内で想定される環境温度及び放射線照射量を考慮し、改良 EPDM 材料をγ線により照射した後、飽和蒸気にて暴露した試験片を用いて、圧縮永久ひずみ率を測定した。試験条件を Table 1 に示す。

Table 1 Test condition

| Test No. | Radiation dose kGy | Environ | Temp °C | Time hr |
|----------|--------------------|---------|---------|---------|
| 1-1      | 800                | Steam   | 200     | 24      |
| 1-2      | 800                | Steam   | 200     | 72      |
| 1-3      | 800                | Steam   | 200     | 168     |
| 2-1      | 800                | Steam   | 225     | 24      |
| 2-2      | 800                | Steam   | 225     | 72      |
| 2-3      | 800                | Steam   | 225     | 168     |
| 3-1      | 800                | Steam   | 250     | 24      |
| 3-2      | 800                | Steam   | 250     | 72      |
| 3-3      | 800                | Steam   | 250     | 168     |
| 4-1      | 1000               | Steam   | 265     | 72      |
| 4-2      | 1000               | Steam   | 265     | 168     |
| 4-3      | 1000               | Steam   | 265     | 336     |
| 5-1      | 1000               | Steam   | 280     | 168     |
| 6-1      | 1000               | Steam   | 300     | 24      |
| 6-2      | 1000               | Steam   | 300     | 72      |
| 6-3      | 1000               | Steam   | 300     | 168     |

### 3.3 試験装置の概要

圧縮永久ひずみ試験では、一つの試験条件で、試験片 3 体を使用し、圧縮永久ひずみ率は 3 体の試験片の圧縮永久ひずみ率の平均値を用いて評価する。

試験片 (改良 EPDM 材料) は、γ線により 800kGy 又は 1000kGy で照射した後、圧縮治具に挟み込み高さの 25% 圧縮した状態 (圧縮率 25%) で、飽和蒸気環境下で暴露し、治具から取り外して、圧縮永久ひずみ率を測定する。

今回の試験で使用した、圧縮永久ひずみ試験片及び圧縮治具を Fig.6 に示す。

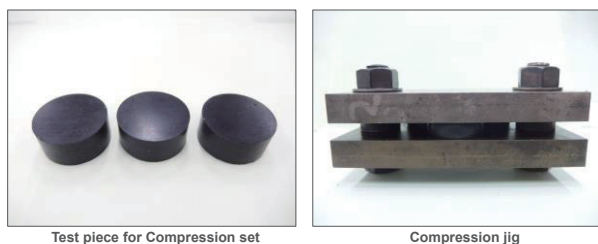


Fig.6 Test piece and Jig for Compression set

### 3.4 圧縮永久ひずみ試験結果

改良 EPDM 材料の圧縮永久ひずみ試験の結果を Table 2 に、グラフ化したものを Fig.7 に示す。

Table 2 Compression set test result of improved EPDM

| Test No. | Radiation dose kGy | Environ | Temp °C | Time hr | Cs % |
|----------|--------------------|---------|---------|---------|------|
| 1-1      | 800                | Steam   | 200     | 24      | 10   |
| 1-2      | 800                | Steam   | 200     | 72      | 11   |
| 1-3      | 800                | Steam   | 200     | 168     | 16   |
| 2-1      | 800                | Steam   | 225     | 24      | 10   |
| 2-2      | 800                | Steam   | 225     | 72      | 15   |
| 2-3      | 800                | Steam   | 225     | 168     | 18   |
| 3-1      | 800                | Steam   | 250     | 24      | 13   |
| 3-2      | 800                | Steam   | 250     | 72      | 16   |
| 3-3      | 800                | Steam   | 250     | 168     | 22   |
| 4-1      | 1000               | Steam   | 265     | 72      | 25   |
| 4-2      | 1000               | Steam   | 265     | 168     | 34   |
| 4-3      | 1000               | Steam   | 265     | 336     | 38   |
| 5-1      | 1000               | Steam   | 280     | 168     | 53   |
| 6-1      | 1000               | Steam   | 300     | 24      | 47   |
| 6-2      | 1000               | Steam   | 300     | 72      | 67   |
| 6-3      | 1000               | Steam   | 300     | 168     | 84   |

改良 EPDM 材料は、高温環境に晒される時間が長くなるにつれて圧縮永久ひずみ率が増加する (復元力が低下していく) こと、同一時間の場合、高温になるにつれて圧縮永久ひずみ率が大きくなること判る。

また、各温度における圧縮永久ひずみ率は直線近似可能であり、傾きもほぼ同じであることが判る。

(Fig.7)

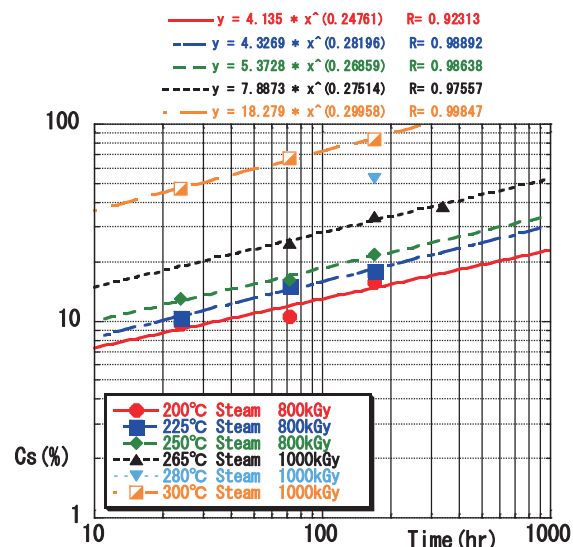


Fig.7 The result of Compression set test

各温度に対して、一般的にシール機能が確保できる圧縮永久ひずみ率が 80% [3] となる時間 (t) で整理 (ア

レニウスプロット)した結果、高い相関を持って直線近似可能であることが判る。(Fig.8)

図中の直線は、250°Cと265°Cのデータを除き、200°C、225°C、300°Cのデータを用いた直線近似したものであるが、この近似直線から、t=168時間とした場合の温度を評価した結果、297.9°Cである。

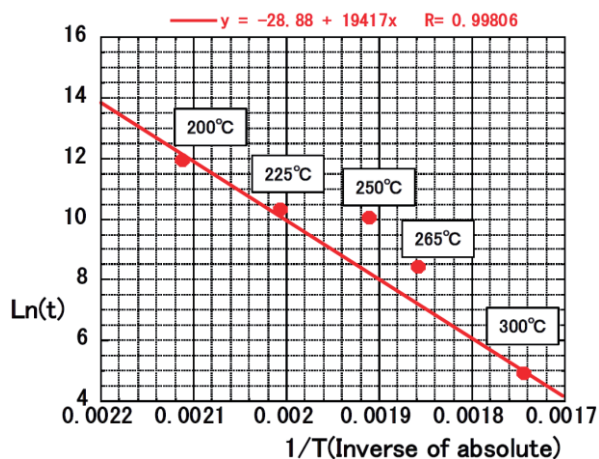


Fig.8 Arrhenius plot data of up to 300°C

次に、改良 EPDM 材料の熱重量分析結果を示す。TG 曲線 (図中の紫色の曲線) から 200°Cまでは重量減少はほとんど見られず、300°C程度となったところで重量減少がわずかに確認できる。

このことから、改良 EPDM 材料は、約 300°Cまでは材料として大きな構造変化は発生していないと考えられる。(Fig.9)

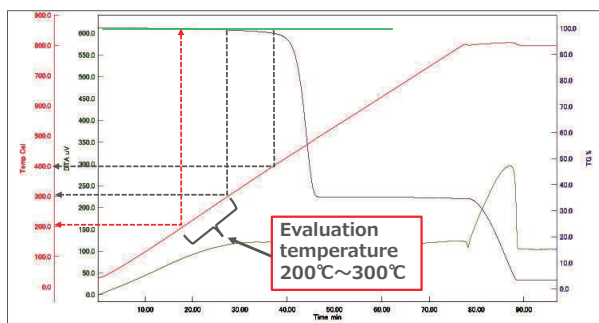


Fig.9 Thermogravimetric analysis test results

これらの結果から、改良 EPDM 材料は、200°Cから 300°Cの劣化挙動としては同一の機構であり、温度変化による突発的な異常劣化が発生している可能性は低いと考えられることから、約 300°Cまでの蒸気環境下で安定的に使用可能なシール材料であると評価できる。

### 3.5 外観確認

劣化が進んでいると考えられる 265°C、336 時間 (Test No.4-3) 及び 300°C、168 時間 (Test No.6-3) の試験片の外観確認結果を示す。外観確認では、試験片の外面の確認に加え、試験片中央部で切断し、内面の状態についても確認を行った。

試験片 (Test No.4-3) の外観は、直接暴露されている側面の表層には軽微なクラックが確認されたが、シール面には異常は確認されなかった。切断した内面については、側面のクラックは表層のみであり、内面に異常は確認されなかった。また、硬度は、73 度であり、未照射の製品の硬度 (約 70 度) と同等であった。

(Fig.10)

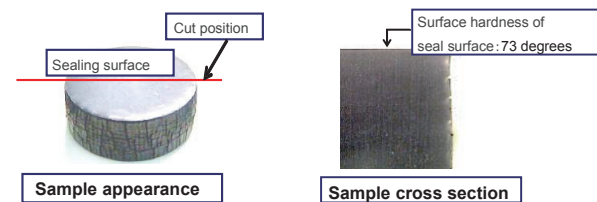


Fig.10 Photo of sample after test (Test No.4-3)

試験片 (Test No.6-3) の外観は、側面に異常は確認されなかったが、シール面の表層中央付近にへこみが確認された。切断した内面については、内部に亀裂が確認されたものの、シール面に貫通したものではなかった。また、硬度は、42 度と未照射の製品の硬度 (約 70 度) からの軟化が確認されたが、溶解、粘着や、分解による粘土状への形態変化等は確認されておらず形状は維持されていた。(Fig.11)

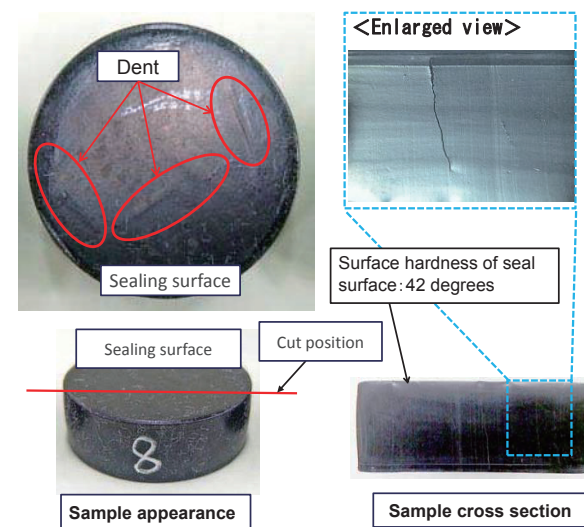


Fig.11 Photo of sample after test (Test No.6-3)



## 4. 小型フランジ漏えい試験

### 4.1 試験概要

圧縮永久ひずみ試験に加え、SA 時の温度、圧力においてシール機能が確保されることを確認するために、実機フランジを模擬した小型フランジを用いた漏えい試験を実施した。小型フランジは、シール材の納まるフランジ溝断面形状は浜岡 4 号機の実機と同様の形状（甲丸型）とした。（Fig.12）

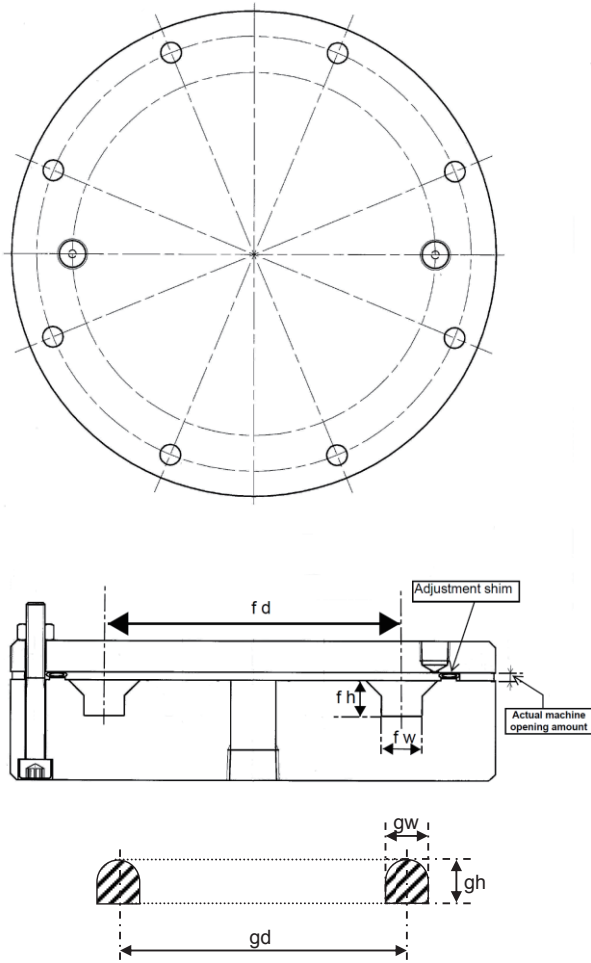


Fig.12 Comparison of dimensions

シール材及びフランジ溝寸法は、Table 3 に示すとおり、幅・高さともに実機と同等であり、フランジ溝のシール材の中心径を縮小したものである。

Table 3 Test condition

|              | Seal material dimensions |                                  |                                  | Groove dimensions     |                                  |                                  | Opening amount                |
|--------------|--------------------------|----------------------------------|----------------------------------|-----------------------|----------------------------------|----------------------------------|-------------------------------|
|              | Center diameter (gd)     | Width (gw)                       | Height (gh)                      | Center diameter (fd)  | Width (fw)                       | Height (fh)                      |                               |
| Small flange | Shrink actual machine    | Same dimension as actual machine | Same dimension as actual machine | Shrink actual machine | Same dimension as actual machine | Same dimension as actual machine | Actual machine opening amount |

フランジの開口量は、フランジ平坦部に調整シムを挿入することで調整し、フランジ溝の内側から He にて加圧することで、SA 時に PCV 内の圧力が上昇した際のフランジ開口量を模擬した状態における漏えいの有無を確認できる。

小型フランジ漏えい試験装置の概要を Fig.13 に示す。

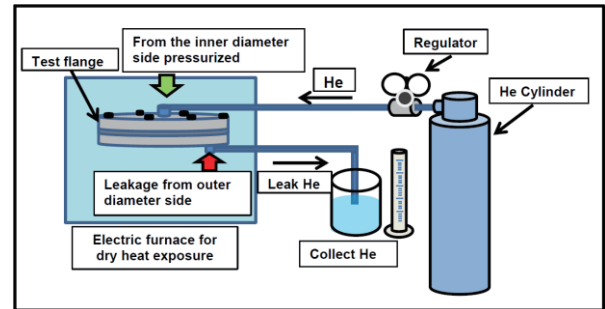


Fig.13 Outline of Small Flange Leakage Test Equipment

### 4.2 試験条件

試験条件として、SA 時に PCV 内で想定される環境温度及び放射線照射量を考慮し、シール材（改良 EPDM 材料）を γ 線により照射後、小型フランジのフランジ溝に収め、調整シムにより PCV 上蓋フランジの開口量を模擬した状態で飽和蒸気環境にて暴露した。

その後、漏えいの有無を確認するため、小型フランジを電気炉に移して再昇温し、フランジ溝の内側から圧力 1MPa の He を 10 分間加圧、フランジ溝の外側からの漏えいの有無を確認した。試験条件を Table 4 に示す。

なお、予備試験として 300℃ の飽和蒸気環境にて暴露した際に、シール材が破損する事象が確認された。これは 300℃ の飽和蒸気環境は高圧（約 8.6MPa）であり、試験体（小型フランジ）の取り出し時に急減圧したため、シール材内部に浸透していた蒸気ガス成分が減圧沸騰し、シール材が破損したと考えられた。このため、本試験においては、試験体（小型フランジ）取り出し時の減圧速度には細心の注意を図り試験を実施した。

Table 4 Test condition

| Test No. | Radiation dose | Heating              |      |      |                  |      |
|----------|----------------|----------------------|------|------|------------------|------|
|          |                | Exposure environment |      |      | Test environment |      |
|          |                | Environ              | Temp | Time | Environ          | Temp |
|          | kGy            | -                    | ℃    | hr   | -                | ℃    |
| 7-1      | 1000           | Steam                | 280  | 168  | Dry              | 280  |
| 8-1      | 1000           | Steam                | 300  | 168  | Dry              | 300  |

### 4.3 試験結果

小型フランジ漏えい試験を実施した結果、Test No.7-1 及び Test No.8-1 共に漏えいは認められなかった。

試験後のシール材の外観確認の結果、300℃の場合では、一部に周方向の亀裂が確認されたが、漏えいに影響するような（シール面を貫通するような）破損は認められなかった。

このことから、280℃及び300℃においても、168 時間、フランジ部のシール機能は維持できると評価できる。

## 5. 結言

放射線照射、200℃を超える高温蒸気環境下に暴露した改良 EPDM 材料について、以下のことが判った。

- ・改良 EPDM 材料は、200℃から 300℃の劣化挙動としては同一の機構であり、温度変化による突発的な異常劣化が発生している可能性は低い。
- ・約 300℃までの蒸気環境下で安定的に使用可能なシール材料である。
- ・小型フランジを用いた漏えい試験の結果、280℃及び 300℃飽和蒸気、168 時間の条件で漏えいは認められなかった。

## 参考文献

- [1] 伊藤 浩史, “真空エラストマーの耐放射線性の調査” 第 27 回リニアック技術研究会, 7P-19, Aug2002
- [2] 鈴木 憲, “耐放射線性エラストマー製品の展開 高機能 EPDM H3070 H0880”, バルカーテクノロジーニュース No.30, P14-19, Winter 2016
- [3] 川村 敏夫, “Oリングの寿命と信頼性”, バルカーレビューVol26, No6, 1982