

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

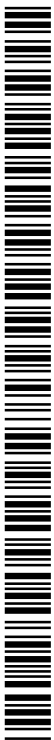
(43) 国際公開日
2017 年 10 月 5 日(05.10.2017)



(10) 国際公開番号

WO 2017/170189 A1

- (51) 国際特許分類:
C09K 3/10 (2006.01) *C08L 23/08* (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2017/011919
- (22) 国際出願日: 2017 年 3 月 24 日(24.03.2017)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2016-064574 2016 年 3 月 28 日(28.03.2016) JP
- (71) 出願人: N O K 株式会社(NOK CORPORATION)
[JP/JP]; 〒1058585 東京都港区芝大門 1 丁目 1 2 番 1 5 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 古賀 敦(KOGA Atsushi); 〒2510042 神奈川県藤沢市辻堂新町 4 - 3 - 1 N O K 株式会社内 Kanagawa (JP).
- (74) 代理人: アインゼル・フェリックス＝ラインハルト, 外(EINSEL Felix-Reinhard et al.); 〒1000005 東京都千代田区丸の内 1 丁目 6 番 2 号 新丸の内センタービルディング ゾンデルホフ&アインゼル法律特許事務所 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))



WO 2017/170189 A1

(54) Title: RUBBER COMPOSITION AND HIGH-PRESSURE HYDROGEN INSTRUMENT SEAL COMPONENT USING SAME

(54) 発明の名称: ゴム組成物およびそれを用いた高圧水素機器用シール部品

(57) Abstract: The purpose of the invention is to provide: a rubber composition suitable for producing a seal component for high-pressure hydrogen instruments that has particularly good low-temperature sealability and blister resistance; and a seal component for high-pressure hydrogen instruments that uses said rubber composition. This rubber composition comprises an ethylene-butene-ethylene norbornene terpolymer (EBENB), and is used for producing a seal component for a high-pressure hydrogen instrument.

(57) 要約: 本発明は、特に、低温シール性および耐ブリスタ性に優れた高圧水素機器用シール部品を製造するために好適なゴム組成物およびそれを用いた高圧水素機器用シール部品を提供することを目的とする。エチレン・ブテン・エチリデンノルボルネン 3 元共重合体 (EBENB) を含むゴム組成物であって、高圧水素機器用シール部品を製造するために用いられる、ゴム組成物。

明 細 書

発明の名称：

ゴム組成物およびそれを用いた高圧水素機器用シール部品

技術分野

[0001] 本発明は、ゴム組成物およびそれを用いた高圧水素機器用シール部品に関する。さらに詳しくは、低温（例えば、 -40°C ～ -60°C 程度）の環境下で使用される高圧水素機器用シール部品を製造するために適したゴム組成物に関する。

背景技術

[0002] 近年、水素と酸素により発電する燃料電池システムを用いた燃料電池自動車の普及が進んでいる。このような燃料電池車においてガソリン車と同等の航続距離を実現するためには、燃料電池自動車に積載した高圧タンクでは、 70MPa クラスの高圧水素ガスが使用されている。また、このような車載の高圧タンクに圧縮水素ガスを充填するための水素ステーションでは、 90MPa クラスの高圧水素ガスが使用されている。

[0003] さらに、高圧水素ガスの充填目標時間を、ガソリン車と同等の3分程度に設定した場合には、車載高圧タンクに水素ガスを急速に充填する必要があり、その際にガスの断熱膨張により車載高圧タンクの温度上昇が問題となる。そのため、車載高圧タンクの温度上昇を抑えるために、事前に -40°C 程度まで冷却した低温の水素ガスを使用するのが一般的である。

[0004] このような燃料電池自動車では、 -40°C の高圧水素ガスをシールし得るシール部品が不可欠であり、さらに極寒地での燃料電池車の使用を想定した場合には、 -50°C でもシール機能を発揮し得るシール部品が求められている。

[0005] 一方で、ガスシール用のシール部品としては、従来からニトリルゴム（NBR）、フッ素ゴム（FKM）、ブチルゴム（IIR）などを用いたゴム材料が広く用いられている。しかしながら、これらの材料は、上記のような低

温環境下では、十分なシール機能を有しているとは言えず、低温シール性の不足による漏れの発生が懸念される。

[0006] これに対し、低温でもシール性を発揮し得るゴム材料としては、エチレン・プロピレン・ジエン3元共重合体（EPDM）が広く知られている。EPDMを用いたゴム組成物は、その優れた低温シール性から、既に高圧水素機器用シール部品としても用いられている（特許文献1）。

[0007] また、近年、高圧水素機器用シール部品は、更なる特性の向上が求められており、特に、耐ブリスタ性の向上が望まれている。ここで、高圧水素機器用シール部品の耐ブリスタ性とは、シール部品が高圧水素に接触したときにブリスタ（亀裂や発泡など）を形成しない特性を意味する。このようなブリスタの形成は、ゴム破壊の原因となるため望ましくない。

[0008] また、ブリスタに起因するゴム破壊は、特に、シール部品における水素ガスの拡散係数との相関が知られている（例えば、非特許文献1）。シール部品は、高圧の水素ガスと接触したときに、その内部を多少水素ガスが透過するが、シール部品中での水素ガスの拡散が速い（拡散係数大きい）場合には、ゴム破壊が生じにくい。

[0009] これに対し、従来のEPDMを用いた高圧水素機器用シール部品は、その内部に水素ガスが浸透した場合、水素ガスが拡散しにくいため（水素ガスの拡散係数が小さく）、未だ十分な耐ブリスタ性が達成されていなかった。

先行技術文献

特許文献

[0010] 特許文献1：特開2015-206002号公報

非特許文献

[0011] 非特許文献1：「ゴムOリングのブリスタ破壊の可視化評価」日本ゴム協会誌、第85巻、第5号、162頁～167頁、2012年

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0012] そこで本発明は、特に、低温シール性および耐ブリスタ性に優れた高圧水素機器用シール部品を製造するために好適なゴム組成物およびそれを用いた高圧水素機器用シール部品を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0013] 本発明者らは、鋭意検討の結果、エチレン・ブテン・エチリデンノルボルネン3元共重合体（E B E N B）が、優れた低温シール性を有することに着目し、従来のE P D Mに替えて、E B E N Bを用いることにより、優れた低温シール性および耐ブリスタ性の双方を有する高圧水素機器用シール部品を製造するために好適なゴム組成物が得られることを見出し、本発明を完成させるに至った。

[0014] すなわち、本発明の要旨構成は、以下のとおりである。

[1] エチレン・ブテン・エチリデンノルボルネン3元共重合体（E B E N B）を含むゴム組成物であって、

高圧水素機器用シール部品を製造するために用いられる、ゴム組成物。

[2] 前記エチレン・ブテン・エチリデンノルボルネン3元共重合体（E B E N B）のヨウ素価が、3～20である、上記[1]に記載のゴム組成物。

[3] 前記高圧水素機器用シール部品が、 -50°C での低温シール性を有する、上記[1]または[2]に記載のゴム組成物。

[4] 上記[1]～[3]のいずれか1項に記載のゴム組成物を加硫成形した物である高圧水素機器用シール部品であって、

J I S K 6 2 6 1 : 2 0 0 6 に規定されている低温弾性回復試験で測定したT R 1 0の値が、 -50°C 以下であり、

水素ガスの拡散係数が、 $5 \times 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{s}$ 以上である、高圧水素機器用シール部品。

発明の効果

[0015] 本発明のゴム組成物によれば、優れた低温シール性および耐ブリスタ性を有する高圧水素機器用シール部品を得ることができる。

発明を実施するための形態

- [0016] 本発明に従うゴム組成物の実施形態について、以下で詳しく説明する。
- [0017] 本実施形態に係るゴム組成物は、エチレン・ブテン・エチリデンノルボルネン3元共重合体（EBENB）を含む。また、ゴム組成物は、充填剤、架橋剤および加工助剤をさらに含むことが好ましい。また、必要に応じて、さらに各種配合剤を含有してもよい。
- [0018] 従来、低温シール性を有する材料としては、EPDMが広く用いられていたが、EPDMを用いたゴム組成物は、他のゴム材料を用いたゴム組成物に比べて材料コストや加工性の観点から、生産コストが高くなる傾向にあった。そこで、本発明者は、優れた耐寒性を有し、柔軟性に優れたEBENBに着目し、検討を進めたところ、EBENBを用いて得られる高圧水素機器用シール部品は、EPDMを用いた場合に比べて、低温シール性も同等かそれ以上であり、また、その柔軟性からゴム組成物としての加工性にも優れていることが分かった。さらに、EBENBを用いて得られる高圧水素機器用シール部品は、特に水素ガスの拡散が早く（水素ガスの拡散係数が大きく）、耐ブリスタ性も優れていることが分かった。
- [0019] 上記のような検討を経て完成された本発明に係るゴム組成物によれば、高圧水素機器用シール部品として求められる所望のシール特性を有し、特に、優れた低温シール性および耐ブリスタ性の双方を有する高圧水素機器用シール部品を製造できる。
- [0020] EBENBとしては、エチレンおよびブテンに各種のエチリデンノルボルネン成分を少量共重合させたもののいずれをも用いることができ、実際には各種の市販EBENBをそのまま用いることができる。
- [0021] EBENBのヨウ素価（g／100g）は、3～20であることが好ましく、より好ましくは5～18である。上記範囲とすることにより、低温環境下においても安定した分子の状態を維持することができ、低温シール性を向上でき、さらに機械強度も向上することから、耐ブリスタ性をも向上できる。

[0022] また、EBENBは、EPDMに比べて、ムーニー粘度（ ML_{1+4} 、 $100^{\circ}C$ ）で表されるポリマー粘度が小さく、加工性（例えば混練性や成形性）の観点でも優れているといえる。そのため、EPDMに替えて、EBENBを用いることにより、成形効率などの生産性が向上し、ひいては生産コストの低減にもつながる。

[0023] このようなEBENBのムーニー粘度（ ML_{1+4} 、 $100^{\circ}C$ ）としては、好ましくは $10\sim45$ であり、より好ましくは $15\sim25$ である。このムーニー粘度が低すぎると、圧縮永久ひずみが大きくなり、引張強さが小さくなる場合がある。一方、このムーニー粘度が高すぎると、特性は向上するが、加工性に劣る場合がある。なお、ムーニー粘度（ ML_{1+4} 、 $100^{\circ}C$ ）は、JIS K6300-1：2013の規定に従って求めることができる。

[0024] また、EBENB中のエチレン成分の含有量は、好ましくは $60\sim80$ 質量％であり、より好ましくは $65\sim75$ 質量％である。上記範囲とすることにより、EBENBのガラス転移温度が最小値を示し、耐寒性が向上する。

[0025] このようなEBENBの含有量は、本実施形態に係るゴム組成物中に、 $1\sim100$ 重量部であることが好ましく、より好ましくは $50\sim100$ 重量部、さらに好ましくは $70\sim100$ 重量部である。EBENBの含有量を上記範囲とすることにより、加工性、生産性の向上が見込める。

[0026] 充填剤は、従来から公知の充填剤が使用可能である。具体的にはカーボンブラックや、珪酸、珪酸塩、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、クレー、タルク、ベントナイト、セリサイト、マイカ、珪酸カルシウム、アルミナ水和物、硫酸バリウムなどの無機系充填剤や、ポリエチレン樹脂、ポリプロピレン樹脂、スチレン樹脂、クマロンーインデン樹脂、メラミン樹脂、フェノール樹脂及びコルク粉末などの有機系充填剤が挙げられ、単独あるいは組み合わせて用いることができる。中でも、充填剤としては、カーボンブラックが好ましい。

[0027] 充填剤の配合量は、EBENB 100 重量部に対して、 $0.1\sim300$ 重量部であることが好ましいが、充填剤の種類によっては上記範囲外であって

も配合可能な場合がある。これらの充填剤はその目的に合わせて任意に種類、配合量を決定すればよい。

[0028] 架橋剤としては、主に有機過酸化物が好ましい。有機過酸化物としては、*t*-ブチルパーオキサイド、ジクミルパーオキサイド、2,5-ジメチル-2,5-ジ-*t*-ブチルパーオキシヘキサン、2,5-ジメチル-2,5-ジ-*t*-ブチルパーオキシヘキシン-3、*t*-ブチルクミルパーオキサイド、1,3-ジ-*t*-ブチルパーオキシイソプロピルベンゼン、2,5-ジメチル-2,5-ジベンゾイルパーオキシヘキサン、*t*-ブチルパーオキシベンゾエート、*t*-ブチルパーオキシイソプロピルカーボネート、*n*-ブチル-4,4-ジ-*t*-ブチルパーオキシバレレートなどが挙げられる。

[0029] 架橋剤の配合量は、EBENB100重量部に対して、0.5~10重量部であることが好ましく、より好ましくは1~5重量部である。上記範囲とすることにより、加硫時に発泡して成形できなくなることを防止でき、また架橋密度が良好となるため十分な物性のものが得やすくなる。

[0030] また、上記のような有機過酸化物が含まれるマスターバッチ、例えばDCP30ZPO3K（日本ゼオン株式会社製マスターバッチ；ジクミルパーオキサイド30質量%、Zetpol2010L30質量%、SRFカーボンブラック40質量%）などを用いることもできる。このようなマスターバッチは、ゴム組成物を調製する際の混練性および分散性を向上し得る点で好ましい。

[0031] さらに、必要に応じて架橋促進剤を含有してもよい。架橋促進剤としては、トリアリルイソシアヌレート（TAIC）、トリアリルシアネート（TAC）、液状ポリブタジエン、N,N'-*m*-フェニレンジマレイミド、トリメタクリル酸トリメチロールプロパンなどを用いることができる。架橋促進剤は、適量配合添加されることにより、架橋効率を向上でき、さらに耐熱性や機械的特性を向上できるので、シール部品としての安定性も向上し得る。

[0032] 加工助剤としては、脂肪族炭化水素を主成分とするプロセスオイル、例えば出光興産株式会社製品PW380、PW220などが挙げられ、単独ある

いは組み合わせて用いることができる。特に、プロセスオイルは、化学構造が類似するパラフィンワックスに比べて低分子であるため、パラフィンワックスを配合した場合には達成し得ない特有の効果を奏する点で、より好ましい。

[0033] 加工助剤の配合量は、E B E N B 1 0 0 重量部に対して、1～20重量部であることが好ましく、より好ましくは3～15重量部である。上記範囲とすることにより、混練加工性が良好となり、またオイルのブリード発生などを防止できる。

[0034] 本実施形態に係るゴム組成物中には、上記成分以外にも、ゴム配合剤として、受酸剤や、酸化防止剤などのゴム工業で一般的に使用されている配合剤が、必要に応じて適宜添加されて用いられてもよい。ゴム配合剤の配合量は、E B E N B 1 0 0 重量部に対して、300重量部以下であることが好ましい。

[0035] ゴム組成物の調製は、各種材料を、例えば一軸押出機、二軸押出機、ロール、バンバリーミキサー、ニーダー、高剪断型ミキサーなどの混練機を用いて混練することによって行うことができる。

[0036] また、ゴム組成物の加硫は、射出成形機、圧縮成形機などを用いて、一般に約150～230℃、約0.5～30分間の加圧加硫によって行うことができる。また、上記のような加硫を一次加硫として施した後、加硫物の内部まで確実に加硫させるため、必要に応じて二次加硫を行ってもよい。二次加硫は、一般に約150～250℃、約0.5～24時間のオーブン加熱によって行うことができる。

[0037] 本発明に係るゴム組成物を加硫成形して得られるもの（成形品）は、高圧水素機器用シール部品として好適である。ここで、高圧水素機器とは、例えば、燃料電池自動車の車載タンクや、水素ステーション、各種水素ガスタンク等の、高圧水素ガスを充填または輸送する際に用いる容器や配管等が挙げられる。

[0038] また、上記のような高圧水素機器用シール部品は、高圧水素機器内の水素

ガスをシール（封止）するために用いられる部品である。高圧水素機器用シール部品は、低温（例えば、 $-40 \sim 60^{\circ}\text{C}$ 程度）の環境下でも、優れたシール性が発揮され、特に -50°C 以下の環境下で用いられる場合に好適である。このような高圧水素機器用シール部品は、例えば、JIS K 6261 : 2006に規定されている低温弾性回復試験で測定したTR10の値が、 -50°C 以下であることが好ましい。さらに、上記のような高圧水素機器用シール部品は、水素ガスの拡散が早いことが好ましく、例えば、水素ガスの拡散係数が、 $5 \times 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{s}$ 以上であることが好ましい。

[0039] また、高圧水素機器用シール部品の形状は特に限定されず、用途に応じた様々な形状にすることができるが、例えば、リング、パッキンおよびシートなどの形状が挙げられる。

[0040] 以上、本発明の実施形態について説明したが、本発明は上記実施形態に限定されるものではなく、本発明の概念および特許請求の範囲に含まれるあらゆる態様を含み、本発明の範囲内で種々に改変することができる。

実施例

[0041] 次に、本発明の効果をさらに明確にするために、実施例および比較例について説明するが、本発明はこれら実施例に限定されるものではない。

[0042] （実施例1）

実施例1では、ヨウ素価16のEBENB（実験合成品）100重量部に対して、カーボンブラックを70重量部、過酸化物架橋剤を3重量部、酸化亜鉛を5重量部、ステアリン酸を1重量部、さらに必要に応じて加工助剤および酸化防止剤を適量配合し、これらをニーダーおよびオープンロールにて混練して、ゴム組成物を得た。

[0043] （実施例2）

実施例2では、ヨウ素価10のEBENB（実験合成品）を用いた以外は、実施例1と同様の方法で、ゴム組成物を得た。

[0044] （実施例3）

実施例3では、ヨウ素価5のEBENB（実験合成品）を用いた以外は、

実施例 1 と同様の方法で、ゴム組成物を得た。

[0045] (比較例 1)

比較例 1 では、ヨウ素価 16 の EPDM (実験合成品) を用いた以外は、実施例 1 と同様の方法で、ゴム組成物を得た。

[0046] (比較例 2)

比較例 2 では、ヨウ素価 26 の EPDM (実験合成品) を用いた以外は、実施例 1 と同様の方法で、ゴム組成物を得た。

[0047] [評価]

上記実施例および比較例に係るゴム組成物を用いて、下記に示す特性評価を行った。各特性の評価条件は下記の通りである。結果を表 1 に示す。

[0048] [1] 低温弾性回復試験 (低温シール性)

上記ゴム組成物について、シート金型を用いて、180℃、8 分間の加圧加硫 (一次加硫) および 180℃、24 時間のオープン加硫 (二次加硫) を行い、厚さ 2 mm の板状加硫ゴムを成型した。

得られた板状加硫ゴムについて、JIS K6261:2006 に従って、TR-10 および TR70 を測定した。TR10 および TR70 は、試験片を 50% 伸張して凍結させた後、これを昇温して弾性率を回復する際に、収縮率がそれぞれ 10% および 70% になる温度である。TR10 および TR70 の各温度は、低いほど、低温でゴム弾性が回復していることを示しており、ゴム弾性によりシール性を付与するシール部品においては、これらの温度がより低いことが望ましい。また、これらの温度の温度差は、値が小さいほど、弾性の回復がより狭い温度範囲で実現することを示しており、このような材料は、ゴム弾性の観点から好ましいシール挙動を示すことがわかる。

なお、本実施例では、特に TR10 が -50℃ 以下である場合を低温シール性が良好であると評価した。

[0049] [2] 圧縮永久ひずみ試験 (耐熱性)

上記ゴム組成物について、Oリング金型を用いて、180℃、10 分間の

加圧加硫（一次加硫）および150℃、24時間のオープン加硫（二次加硫）を行い、JIS B2401-1:2012 G25で規定するリングを得た。

得られたリングについて、JIS K6262:2006に従って、圧縮率25%、試験温度150℃、試験時間70時間の耐熱老化後の、圧縮永久ひずみ（%）を測定した。リングの圧縮永久ひずみは、その値が小さいほど、リングのシール性がよく、シール寿命が長いことを意味する。

[0050] [3] ガス透過試験（ガスバリア性および耐ブリスタ性）

上記ゴム組成物について、シート金型を用いて、180℃、8分間の加圧加硫（一次加硫）および150℃、24時間のオープン加硫（二次加硫）を行い、厚さ0.5mmの板状加硫ゴムを成型した。

次に、得られた板状加硫ゴムについて、JIS K6275-1:2009に準拠し、30℃、0.6MPaにおける、水素ガスの透過係数およびガスの拡散係数を算出した。水素ガスの透過係数は、水素ガスがゴム材料を透過する際の透過のし易さを表す指標であり、その値が大きいほど、ゴム材料はより多くの水素を透過させることを示している。また、水素ガスの拡散係数は、水素ガスがゴム材料中に拡散する際の拡散のし易さを表す指標であり、その値が大きいほど、ゴム材料中に水素ガスが拡散し易いことを示している。

なお、本実施例では、特に水素ガスの拡散係数が、 $5 \times 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{s}$ 以上である場合を耐ブリスタ性が良好であると評価した。

[0051] [4] 加圧サイクル試験（シール耐久性）

上記ゴム組成物について、リング金型を用いて、180℃、10分間の加圧加硫（一次加硫）および150℃、24時間のオープン加硫（二次加硫）を行い、JIS B2401-1:2012 G25で規定するリングを得た。

得られたリングを用い圧力容器に、高圧水素ガスを充填し、90MPaまで昇圧して、一定時間保持し、その後0.6MPaに減圧して、さらに一

定時間保持し、この加圧と減圧の圧力サイクル（１サイクル６秒間）を５，５００回実施し（３０℃にて）、サイクル中に顕著なリークが発生しないことを確認した。リークが発生しなかったものは、シール耐久性に優れていることを意味する。

[0052] [表1]

	実施例 1	実施例 2	実施例 3	比較例 1	比較例 2
ポリマー	EBENB	EBENB	EBENB	EPDM	EPDM
ヨウ素価 [g/100g]	16	10	5	16	26
性能評価	TR10 [°C]	-53	-55	-47	-47
	低温シール性	TR70 [°C]	-35	-30	-30
	耐熱性	[TR10-TR70] [°C]	16	18	17
	ガスバリア性	圧縮永久ひずみ [%]	23	23	22
	耐ブリストタ性	水素ガス透過係数	2.4E-12	2.7E-12	2.3E-12
	シール耐久性	水素ガス拡散係数 [cm ² /s]	5.2E-06	6.9E-06	4.3E-06
		リークの発生	無	無	無

(注) 表中の斜体太字は、本発明の適正範囲外のもの、評価結果が本実施例における合格レベルに達していないもの、を示している。

[0053] 表 1 に示されるように、本発明に係る E B E N B を含むゴム組成物によれば、高圧水素機器用シール部品としての所望のシール特性を有しつつ、従来の E P D M を用いたゴム組成物（比較例 1 および 2）に比べて、特に低温シ

ール性および耐ブリスタ性の双方を向上できることが確認された（実施例 1 ～ 3）。

[0054] 特に、E B E N Bを含む実施例 1 ～ 3に係るゴム組成物を用いた成形品は、E B E N Bの代わりにE P D Mを用いた比較例 1 および 2に係るゴム組成物の成形品に比べて、T R 1 0がより低い温度であることから、低温シール性に優れていることが確認された。

[0055] また、E B E N Bを含む実施例 1 ～ 3に係るゴム組成物を用いた成形品は、E P D Mを用いた比較例 1 および 2に係るゴム組成物の成形品と、同等の圧縮永久ひずみであることから、十分な耐熱性（シール寿命）を有することが確認された。

[0056] また、E B E N Bを含む実施例 1 ～ 3に係るゴム組成物を用いた成形品は、E P D Mを用いた比較例 1 および 2に係るゴム組成物の成形品と、同等の水素ガスの透過係数であることから、同等のガスバリア性を有することが確認された。

[0057] また、E B E N Bを含む実施例 1 ～ 3に係るゴム組成物を用いた成形品は、E P D Mを用いた比較例 1 および 2に係るゴム組成物の成形品に比べて、水素ガスの透過係数が大きいことから、水素ガスの拡散が速いことが確認された。

[0058] さらに、E B E N Bを含む実施例 1 ～ 3に係るゴム組成物を用いた成形品は、E P D Mを用いた比較例 1 および 2に係るゴム組成物の成形品と同様に、いずれもリークは発生せず、同等のシール耐久性を有していることが確認された。

[0059] 以上から、本発明に係るE B E N Bを含むゴム組成物は、特に低温シール性および耐ブリスタ性に優れた高圧水素機器用シール部品を製造するために好適であることが確認された。

請求の範囲

- [請求項1] エチレン・ブテン・エチリデンノルボルネン3元共重合体（E B E N B）を含むゴム組成物であって、
 高圧水素機器用シール部品を製造するために用いられる、ゴム組成物。
- [請求項2] 前記エチレン・ブテン・エチリデンノルボルネン3元共重合体のヨウ素価が、3～20である、請求項1に記載のゴム組成物。
- [請求項3] 前記高圧水素機器用シール部品が、－50℃での低温シール性を有する、請求項1または2に記載のゴム組成物。
- [請求項4] 請求項1～3のいずれか1項に記載のゴム組成物を加硫成形した物である水素機器用シール部品であって、
 J I S K 6 2 6 1 : 2 0 0 6 に規定されている低温弾性回復試験で測定したT R 1 0の値が、－50℃以下であり、
 水素ガスの拡散係数が、 $5 \times 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{s}$ 以上である、高圧水素機器用シール部品。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/011919

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C09K3/10(2006.01)i, C08L23/08(2006.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C09K3/10, C08L23/08

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2017
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2017	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2017

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2015/122415 A1 (Mitsui Chemicals, Inc.), 20 August 2015 (20.08.2015), paragraphs [0355] to [0357], [0396] to [0397], [0404] to [0405]; examples; claims 1 to 34 & US 2016/0347894 A1 paragraphs [0524] to [0526], [0565] to [0566], [0573] to [0574]; examples; claims 1 to 34 & EP 3106480 A1 & KR 10-2016-0103042 A & CN 105980420 A & TW 201536817 A	1-4
A	JP 2000-72936 A (JSR Corp.), 07 March 2000 (07.03.2000), claims 1 to 6 (Family: none)	1-4

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
10 April 2017 (10.04.17)

Date of mailing of the international search report
18 April 2017 (18.04.17)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/011919

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2011-213822 A (Mitsui Chemicals, Inc.), 27 October 2011 (27.10.2011), claims 1 to 6 (Family: none)	1-4

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. C09K3/10(2006.01)i, C08L23/08(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. C09K3/10, C08L23/08

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2017年
日本国実用新案登録公報	1996-2017年
日本国登録実用新案公報	1994-2017年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	WO 2015/122415 A1 (三井化学株式会社) 2015.08.20, 段落 0355-0357、0396-0397、0404-0405、実施例、請求項 1-34 & US 2016/0347894 A1、段落 0524-0526、0565-0566、0573-0574、 実施例、請求項 1-34 & EP 3106480 A1 & KR 10-2016-0103042 A & CN 105980420 A & TW 201536817 A	1-4
A	JP 2000-72936 A (ジェイエスアール株式会社) 2000.03.07, 請求項 1-6 (ファミリーなし)	1-4

C欄の続きにも文献が列挙されている。

パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

10.04.2017

国際調査報告の発送日

18.04.2017

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

中野 孝一

4 V

9153

電話番号 03-3581-1101 内線 3483

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 2011-213822 A (三井化学株式会社) 2011. 10. 27, 請求項 1-6 (ファミリーなし)	1-4