

小特集 磁場閉じ込め核融合炉に向けた超伝導マグネット材料工学

3. 電気絶縁材料

西嶋 茂宏, 西村 新¹⁾
 大阪大学工学部, ¹⁾核融合科学研究所
 (原稿受付: 2006年10月26日)

核融合炉用大型超伝導マグネットでは電気絶縁材料が必要であり, 高い耐電圧特性が要求される。極低温への冷却ならびに極低温下での荷重負荷によって電気絶縁材料の耐電圧特性は劣化することがある。特に, 電気絶縁材料に絶縁厚さを貫通するきれつが発生すると, 耐電圧特性は急激に劣化し, 機器として致命的な損傷を被る。本章では, 極低温におけるきれつ発生と機械的負荷の関係, 長期にわたる疲労によるきれつ生成などについて, これまでなされてきた研究成果を要約する。また, 近年注目されているシアネートエステル系の複合材料の照射による特性の変化についても紹介する。

Keywords:

dielectric breakdown strength, micro crack, interlaminar shear strength, glass fiber reinforced plastic (GFRP)

3.1 はじめに

核融合炉用大型超伝導マグネットシステムでは, 導体のターン間, 層間, 対地の電気絶縁が必要であり, 特に対地絶縁に関しては, 高い耐電圧特性が要求される。例えば ITER の場合, ポロイダルコイルは通常運転時に 14 kV の電圧が発生し, トロイダルコイルでは急速電流遮断時に 10 kV の電圧が発生する。同時に, 絶縁材料には電磁力や熱応力に起因する荷重が作用し, このような荷重作用下での絶縁特性が求められている。ITER-CS コイルでは, 45 MPa のせん断強度が要求されている [1]。

このような要求に対して, 近年の大型超伝導マグネットの電気絶縁システムでは, 図 1 に示すような構造が採用される場合が多い。ターン間あるいは層間では発生電圧は低いものの, せん断荷重が繰り返し負荷される (ITER では 6 万回) ため, きれつなどの損傷が生じても絶縁が保てるようにポリイミドなどの絶縁フィルムが挿入される。同じく対地絶縁については, まさに 10 kV 以上の耐圧を有していなければならないため, 1) ヘリウムガスあるいは液のない高真空雰囲気とし, 2) 厚さ数 mm から十数 mm 程度の繊維強化有機複合材料 (FRP) によってコイルとコイルケース間に距離を持たせ, 3) 絶縁フィルムを挿入することにより貫通の絶縁破壊を防ぐ構造が採られる。ITER や KSTAR 以前の設計では, 絶縁フィルムを挿入しないものもあったが, 10 kV を超える電圧, およびはじめにで紹介したように, 絶縁材料の占有率をできるだけ小さくするという要求のために, 絶縁フィルム挿入が必要となった。後述するように, FRP においては, 破壊に至らない条件であっても, 繊維と母材間に微小きれつが発生し, 材料を貫通する絶縁破壊が起こるためである。

それでもなお, FRP は大型超伝導マグネットの絶縁材料

として用いられる。これは, ガラス繊維強化によって, 1) 冷却時の熱収縮による寸法変化が小さいこと, 2) 弾性率が高いこと, そして 3) 繊維により急激なきれつ進展が防止される, ことなどによる。即ち, FRP で絶縁フィルムを挟み, フィルムを保護することで貫通の絶縁破壊を生じにくくしている。ここで, FRP の弾性率が絶縁フィルムに対して 1 桁大きいために, フィルムには大きな応力が作用することはない。

核融合炉用大型超伝導マグネットシステムでは, 中性子線や γ 線の照射を考慮しなければならない。これまでの実績では, ポリイミドフィルムは放射線環境下での伸びの低下が少なく, またガス放出も少ない。FRP のマトリックスには一般にエポキシ樹脂が用いられるが, 10 MGy の γ 線照射で機械的強度が大きく低下する。近年, 熱可塑性のシアネート系樹脂が提案され, 優れた耐放射線性が示されている。

本章で議論するコイル内の電気絶縁材料以外にも, 冷却配管の電気絶縁継手, トロイダルコイルのシアキー (トロ

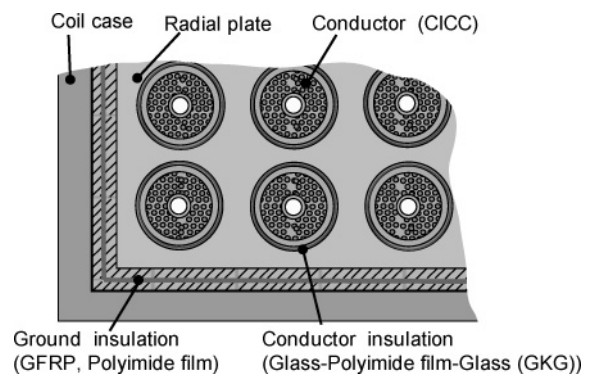


図 1 核融合用マグネットの絶縁システムの概観図。

3. Electric Insulation Materials

NISHIJIMA Shigehiro and Nishimura Arata

corresponding author's e-mail: nishijim@nucl.eng.osaka-u.ac.jp

イダル方向の1ターンカット), トロイダルコイルを中心に
 に向けて固定するコンプレッション・リングなどに多数の
 絶縁材料が使われる[1]. 強度, 耐電圧, 耐放射線性につい
 て, 類似した議論が必要である.

3.2 電気絶縁材料の機械的特性ときれつ発生

液体ヘリウム中 (4.2 K, LHeT), 液体窒素中 (77 K, LNT) および室温 (300 K, RT) で得られた GFRP (G-11) の応力-歪み曲線を図2に示す[2]. 試験片は強化繊維方向から45°の角度で切り出されたものである. 通常 GFRP はガラス繊維を積層して製作され, 強度は繊維方向が0°と90°の方向で高くなる. 45°方向の機械的特性は, マトリックスおよびマトリックスと強化繊維の界面の現象を反映している. この結果から, 45°方向ではLHeTにおいても降伏現象が現れることがわかる. LNTとLHeTでは, RTと比較して降伏応力は増加しているが, 変形量は小さくなる. これは, エポキシ樹脂の低温脆化に起因している.

図3に GFRP 二重切欠試験片 (2つの切欠を反対面から挿入し, 切欠先端を結ぶ面上でせん断変形させ, 積層繊維とマトリックス界面 (層間) でのせん断強度を評価する試験片) を用いて, RT および LNT での層間せん断試験を行い, その時の試験片内部の音響信号 (Acoustic Emission, AE) の発生回数 (積算値) とその透過率を測定した結果を示す. きれつが発生, 伝播する際には, AE が引き起こされることが知られており[3], AE 計測の結果, 微視的きれつの発生は, 破壊応力のおよそ20%程度の応力レベルから, また, ガラスクロスとマトリックスの界面破壊は, 40%程度の応力レベルから生じ始めることがわかった[4].

一度荷重を負荷, 除荷し, 再負荷時の応力が前回の応力レベルを上回るまで AE は発生しない. この現象をカイザー効果とよぶ. AE の累積回数が右上がりになるのはこのためである. この図では, AE の透過率は除荷直前の変位に対して表されている. 透過率の低下は AE 数の増加と一致しており, 層間の微小きれつによって AE の伝播が妨げられ, AE の透過率が減少することがわかる. AE 透過率が突然減少するのは, 目視で観察されるほどのきれつ成長が起こるためである (RT). LNT では, RT における場合より小さい変位で大きなきれつ伝播が観察されている.

微小きれつは, 通常, マトリックスである樹脂中に形成される. GFRP の強度は, ガラス繊維などの強化材に強く依存する. このことは微小きれつの発生は, 応力によって決定されるのではなく, ひずみによって規定されることを意味している. マトリックスの材質が異なれば, 微小きれつが形成されるひずみは異なる[5]. エポキシ樹脂のマトリックスでは, 極低温での破壊ひずみは2%から5%まで変動する[6]. これより大きなひずみはマトリックスにきれつを生じさせる.

前述したように, 高い耐電圧を確保するために, GFRP /絶縁フィルム/GFRP の構造が採用される. 絶縁フィルムとして使用されるポリイミドフィルムの応力-ひずみ曲線を図4に示す[7]. フィルムは温度が低下するにつれて伸びが小さくなり, LHeT ではほとんど降伏現象を示さない.

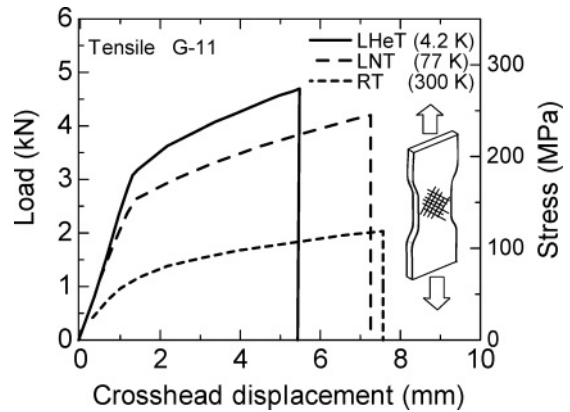


図2 GFRP の応力-ひずみ曲線の温度依存性[2]. 試料角度は, 繊維方向から45°の角度である.

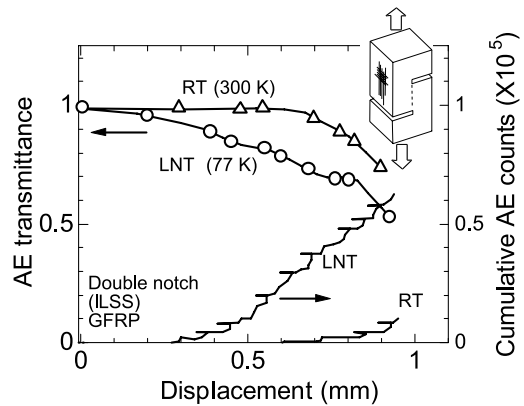


図3 RT と LNT のカイザー効果と AE 透過率.

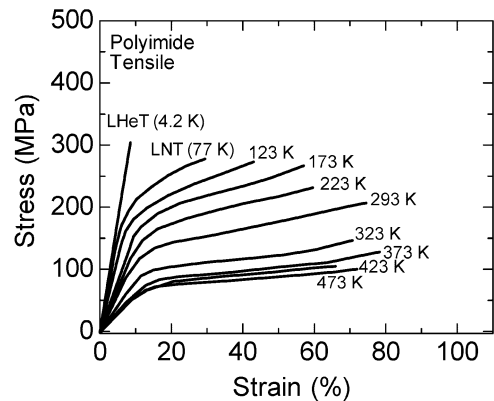


図4 いろいろな温度でのポリイミド膜の応力-ひずみ曲線.

LHeT と LNT での破壊ひずみは, 約10%, 30%であり, これらのひずみはエポキシ樹脂の破壊ひずみより大きい. また, 弾性係数を求めると, 4.2 K においても 2GPa 程度で, この値は GFRP の約 1/10 である. このような破壊ひずみや弾性係数の違いは電気絶縁性能の維持にとって重要であり, エポキシ樹脂にきれつが形成されるような変形が加わっても, 絶縁フィルムは破壊されず, 電気絶縁性能が失われにくいことを示している. 次節で述べるように, ポリイミドフィルムで覆われた絶縁層は, フィルムがない場合に比べ高い応力レベルまでその絶縁性能が維持される.

3.3 電気絶縁材料の機械的欠陥と耐電圧特性

上述したように、きれつ、界面剥離、空隙などの機械的な欠陥が電磁力や熱応力による変形によって絶縁材料内部に形成される。このような欠陥は絶縁体の耐電圧特性に影響を及ぼし、長期使用の際には特に注意が必要である。マグネットの動作温度は極低温であるため、絶縁材料の化学的変質は誘発されず、力学的応力によってのみ欠陥が形成される。

GFRP での欠陥の形成過程は、通常、有機材料であるマトリックスから始まり、マトリックスと強化材の界面、その後強化材へと至る。絶縁特性の劣化はマトリックスの損傷（微小きれつの形成）によって始まると考えられる。界面破壊は絶縁特性の著しい低下をもたらすため、実用的にはこれらの損傷や破壊が、絶縁材料としての GFRP の寿命を規定することになる。

RT と LNT における GFRP (G-10) とポリエチレンテレフタレート (PET) の耐電圧 (DBS) に及ぼす引張応力の影響を図 5 に示す。いずれの材料ともに引張応力により DBS は低下する。LNT では PET の DBS は徐々に低下し降伏応力の近くで鋭く低下する。一方、GFRP の DBS は破壊までだだらかに低下する。DBS の応力依存性は引張と圧縮で異なっており、これは引張と圧縮できれつの発生や伝播過程が異なっているためである。引張応力下ではきれつは容易に開口するが、圧縮応力下では開口しない。そのため、引張応力下の DBS は低い応力レベルから低下するが、圧縮応力下では低下の開始が遅れる。LNT で DBS が低下し始める応力は、RT のそれより高くなる。これは試験温度の低下によって材料の降伏応力が高くなるためである。なお、高応力側で DBS は低下するが、これは空隙や微小きれつの発生によるものと考えられ、GFRP の DBS が PET のそれより低くなる理由は、エポキシ樹脂とガラス繊維界面での放電電圧が低いためである [8]。

引張応力下での GFRP の DBS の変化を図 6 に示す [9]。一定の電場を印加した状態で、絶縁破壊が起こるまで引張応力を増加させ、その限界応力を評価したものである。ポリイミドフィルムがない場合 (●印) には耐電圧の低下が著しく、ポリイミドフィルムを用いることによってその低下は明らかに改善される。核融合炉用大型超伝導マグネット

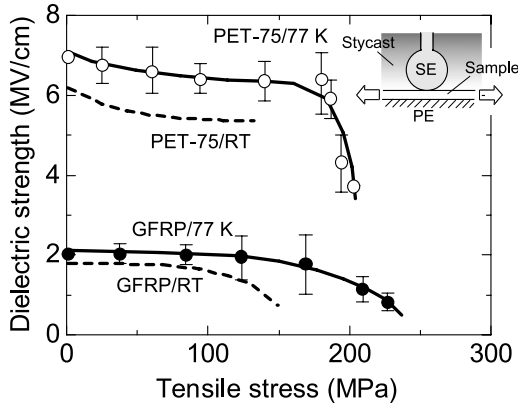


図 5 室温と 77 K での耐電圧 (AC) に対する引張応力の影響。

トの対地絶縁の FRP/絶縁フィルム/FRP 積層構造の根拠はここにある。

大型超伝導マグネットでは、電気絶縁材料に圧縮荷重が作用すると同時にターン間、層間のせん断変形が起こる。このせん断変形に起因した層間せん断応力は積層ガラスクロスと平行なせん断応力であり、その応力はマトリックスまたはガラスクロスの界面で支えられなければならない。言い換えると、強化材は層間せん断応力を支えない。そのために、層間せん断強度 (ILSS) は引張強度や圧縮強度より低くなる。例えば、極低温下での GFRP の ILSS が 60~100 MPa [10] であるのに対して、引張強さは 500~800 MPa である。

3.4 経時変化

LNT での GFRP の電気絶縁寿命線図を図 7 に示す [11]。白丸と黒丸は負荷なしの状態ですでに十分な時間絶縁を保ったかを示しており、そのほかの実験点は図中に記されている応力まで一度負荷をかけた後に除荷し、絶縁特性を測定したものである。100 MPa を超える荷重で GFRP に微小きれつが発生することが確認され、微小きれつが形成されると GFRP の絶縁寿命が低下することが明らかになった。

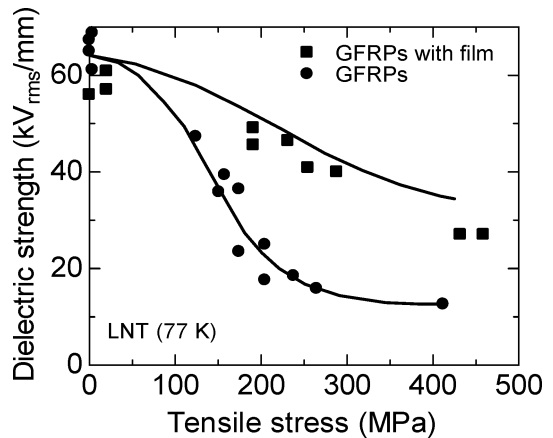


図 6 液体窒素中の絶縁耐圧と引張応力の関係。四角印は絶縁フィルムがある場合の結果。

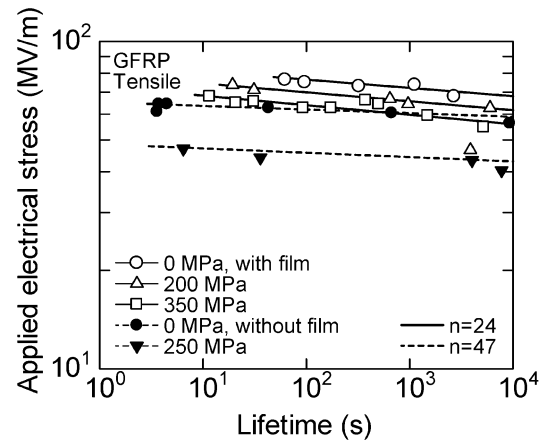


図 7 液体窒素中での GFRP の電気絶縁寿命。白印はポリイミドフィルム有り。黒印はなし。n は線図の傾きである。

GFRPの引張強度は、約450 MPaであり、引張強さのおよそ20%の応力でマトリックス中に微小きれつが発生することがわかる。350 MPaまで負荷をかけても絶縁寿命は顕著に低下せず、ポリイミドフィルムを用いることによって著しく絶縁寿命が改善される。これは、前述したように、ポリイミドフィルムの破壊ひずみがGFRPのエポキシマトリックスより大きいことに起因している。

これらのことから、電気絶縁寿命はきれつなどの機械的欠陥によって決定され、目視できるほどの大きさのきれつだけでなく微小きれつも絶縁寿命を著しく低下させることがわかる。負荷荷重が一定の条件下で、徐々に永久ひずみが増加する現象を「クリープ」とよぶが、通常、熱活性化過程がクリープを引き起すため、極低温では問題とならない。しかし、極低温での複合材料のクリープ変形は、極低温で微小きれつの発生、伝播と密接な関係がある[12]。したがって、極低温下でのGFRPの永久変形はきれつなどの欠陥によって引き起こされるものと考えられ、電気絶縁性能が低下している危険性がある。

長期間にわたる荷重繰り返しによって、耐電圧特性がどのように劣化するかわかることは実用上重要である。しかしながら疲労過程での電気絶縁特性の変化を明確にした研究は見当たらない。そこで、疲労過程でのきれつ密度の変化に注目した研究成果を述べる。

0度/90度に交角積層した炭素繊維強化プラスチック(CFRP)について、LNTでの繰り返し応力-破断回数(S-N)線図を図8(a)に示す[13]。マトリックス樹脂の異なった2種類のCFRPについて疲労試験が実施されている。一つはエポキシで、もう一つはPEEKである。疲労試験は、応力比0.1、周波数30 Hzで実施された。異なるS-Nカーブが異なるマトリックスで得られた[14]。図8(b)は、繰り返しに伴うきれつ密度の変化を示したものである。

ポリエーテルエーテルケトン(PEEK)マトリックスの場合には、破壊の直前までCFRPのきれつ密度は増加しなかったが、エポキシマトリックスの場合には、繰り返しの初期からきれつ密度の増加が認められた。

PEEKマトリックスによる複合材料のDBSは、750 MPaの最大応力、 10^5 サイクル後に大きな変化を示さなかった。しかし、エポキシマトリックスの絶縁体のDBSは、750 MPaの最初の負荷で著しく低下した。DBSの低下はきれつ密度で決定されるので、絶縁材料の絶縁寿命はきれつ密度が急激に増加し始める繰り返し回数と定義される。繰り返し荷重の下での絶縁寿命は弾性率の変化としても測定される[15]。実用的には、ヤング率の低下または変形量の増加で絶縁寿命を決定することができる。

3.5 有機電気絶縁材料の中性子照射効果

有機電気絶縁材料の γ 線照射による特性劣化、特にきれつの発生、伝播現象に注目した研究が進められてきた。ガラスクロスガラス繊維には、当初はB(酸化ボロンの形で含まれる)を含むE-glass繊維が用いられていた。しかし、Bは中性子を取り込んでアルファ粒子(ヘリウムの原子核)を放出し、E-glassとエポキシ樹脂界面の界面強度を低下さ

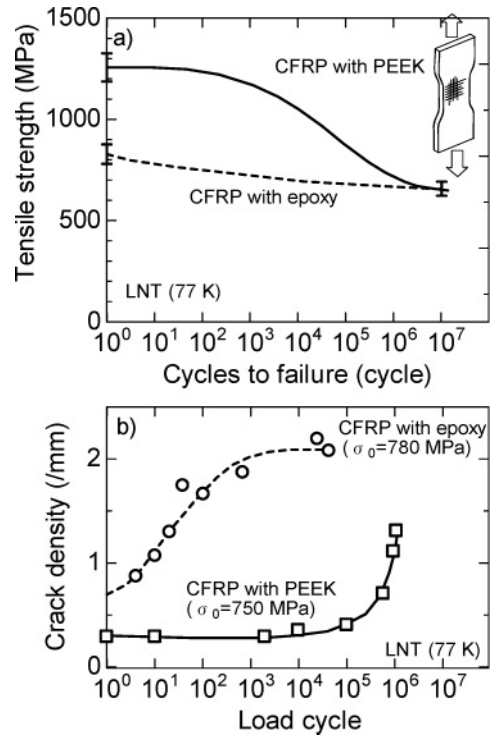


図8 熱可塑性マトリックスとエポキシマトリックスを有する[0/90]交角積層材料の(a)応力-寿命線図、および(b)77 Kで得られた熱可塑性マトリックス($\sigma_0 = 750$ MPa)とエポキシマトリックス($\sigma_0 = 780$ MPa)を有するクラック密度と荷重サイクル。

せるとともに界面剥離を引き起こすことが明らかにされた[16]。それ以降、Bを含まないS-glass繊維が用いられるようになった。

中性子照射効果は原子炉照射で検討されており、原子炉照射では、高速中性子とともに熱中性子、 γ 線も同時に照射される。どの放射線が、どのような効果を強く有しているかを個別に議論しようとする試みがなされているが[17]、明確にそれらの効果を区別するところまで至っていない。大雑把に言えば、0.1 MeV以上の中性子 10^{22} n/m²の照射は10 MGyの γ 線照射とほぼ等価であるとの認識がある。しかし、詳細な数字については、試験材料、照射する原子炉に依存するものと考えられ、確定していない。

図9にカプトンテープを挟んだガラスクロスエポキシ複合材の原子炉照射前後の疲労強度結果を示す[18]。疲労試験は液体窒素中で行われており、疲労試験条件は応力比0.1の引張-引張である。高応力側で照射の影響が顕著に見られ、強度が明らかに低下している。エポキシ樹脂は熱硬化性であるが、熱可塑性のシアネートエステル樹脂が放射線環境に強いことが報告されている。図10はシアネートエステルとエポキシ樹脂を混合した、S-glassを繊維とする複合材の疲労試験結果で[19]、図9と同じ原子炉、同じ試験装置を用いて実験された結果である。 10^{22} n/m²の中性子照射でほとんど強度が落ちないことがわかる。どの程度の照射によって強度が落ち始めるのか、また、なぜ顕著な強度低下を示さないのか、現在のところ十分な解説を行うことはできない。しかし、高フルーエンス中性子照射に耐えるこ

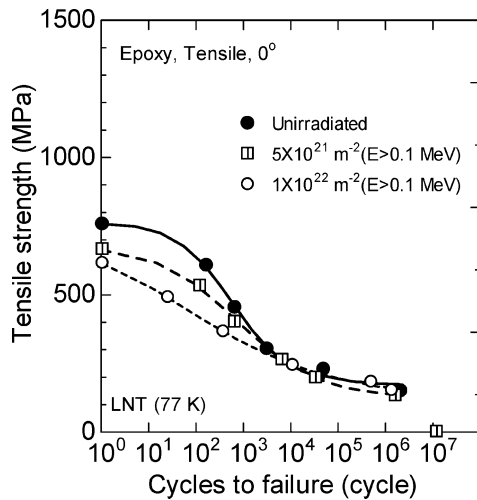


図9 Kapton-H foil/R-glass/Epoxy DGEBA resin (MY 745) の疲労強度。

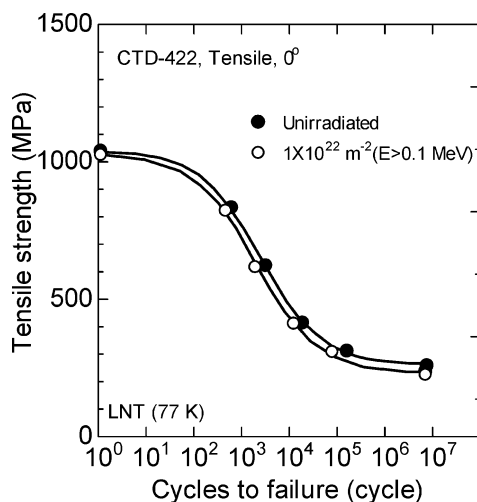


図10 Cyanate ester/epoxy blend resin, S-2 glass (Vf=50%) の疲労強度。

とのできる候補材料が存在することは確かである。今後の精力的な研究が期待される。

3.6 まとめ

極低温における絶縁材料の電気絶縁性能について、微小きれつの発生、伝播に注目してその劣化の機構を解説した。電気絶縁性能は絶縁材料内部のきれつや空隙など機械的欠陥に大きく依存する。エポキシ樹脂をマトリックスとする絶縁材料では、きれつの発生は永久ひずみの増加や剛性の低下という形になって表れ、これらのパラメータに明確な変化が現れたときにはすでに絶縁抵抗は大きく低下している。疲労やクリープなどの応力負荷形態においても、永久ひずみの増加と微小きれつの増加は定性的に対応しており、絶縁耐電圧の低下と強い相関関係がある。

マトリックス樹脂の性質によってきれつの発生、伝播状況は異なり、樹脂の選択によってきれつの発生を抑制し、絶縁耐電圧の低下を防止する方法も考えられる。また、ポ

リイミドフィルムを絶縁物間に挟む方法は有効であり、絶縁強度だけでなく長期の耐電圧特性も向上する。フィルムと複合材料を上手に選択し、併用することが、大型超伝導マグネットの絶縁の基本になる。

中性子照射による強度劣化は、シアネートエステルとエポキシ樹脂を混合した、S-glassを繊維とする複合材で、エポキシ母材のものよりも優れた特性が得られており、今後の研究の進展が期待される。

また、微小きれつの発生しにくい材料の開発だけでなく、きれつが発生しても耐電圧の低下しない絶縁構造の高度化も必要である。

参考文献

- [1] ITER Design Description Document (DDD) N11 DDD 177 04-05-12 W 0.2.
- [2] M.B. Kasen, G.R. MacDonald, D.H. Beckman and R.E. Schramm, *Adv. Cryog. Eng.* **26**, 235 (1980).
- [3] T. Nishiura, K. Katagiri, S. Owaki and T. Okada, *Cryogenics* **24**, 329 (1984).
- [4] S. Nishijima, T. Okada and S. Namba, *Adv. Cryog. Eng.* **30**, 25 (1980).
- [5] G. Hartwig and K. Ahlborn, *Adv. Cryog. Eng.* **36B**, 909 (1990).
- [6] K. Pannkoke, *Adv. Cryog. Eng.* **40**, 1025 (1994).
- [7] T. Tanaka, K. Hosoyama, K. Hara, T. Saito, S. Takabayashi, Y. Okamoto, Y. Toda, K. Nojima and H. Sunaga, *Adv. Cryog. Eng.* **42**, 21 (1996).
- [8] C.H. Park, T. Kaneko, M. Hara and M. Akazaki, *IEEE Trans. Elec. Insul.* **EI-17**(3), 234 (1982); C.H. Park, M. Hara and M. Akazaki, *IEEE Trans. Elec. Insul.* **EI-17**(6), 546 (1982).
- [9] K. Fukushi, M. Nagai and Y. Kamata, *IEEE 1989 Annual Report. Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena* (1989) p.471.
- [10] M.B. Kasen, G.R. MacDonald, D.H. Beckman and R.E. Schramm, *Adv. Cryog. Eng.* **26**, 235 (1980).
- [11] K. Fukushi, M. Nagai and Y. Kamata, *低温工学研究発表会予稿集* (1987) Autumn, p.164 (*in Japanese*).
- [12] C.S. Hazelton, J.B. Darr and R.P. Reed, *Adv. Cryog. Eng.* **40B**, 1067 (1994).
- [13] R. Hubner and G. Hartwig, *Adv. Cryog. Eng.* **42A**, 233 (1997).
- [14] G. Hartwig, R. Hubner and S. Knaak, *Adv. Cryog. Eng.* **42A**, 155 (1997).
- [15] G. Hartwig and K. Ahlborn, *Adv. Cryog. Eng.* **36B**, 909 (1990).
- [16] S. Nishijima and T. Okada, *Fusion Eng. Des.* **20**, 463 (1993).
- [17] A. Nishimura, Y. Hishinuma, K. Seo, T. Tanaka, T. Muroga, S. Nishijima, K. Katagiri, T. Takeuchi, Y. Shindo, K. Ochiai, T. Nishitani and K. Okuno, *Adv. Cryog. Eng.* **52**, 241 (2006).
- [18] K. Bittner-Rohrhofer, K. Humer, H. Fillunger, R.K. Maix and H.W. Weber, *Cryogenics* **42**, 697 (2002).
- [19] K. Bittner-Rohrhofer, K. Humer, Z.D. Wang, H.W. Weber, P.E. Fabian and N.A. Munshi, *Fusion Eng. Des.* **66-68**, 1209 (2003).