ガラス繊維強化プラスチックの極低温における電気絶縁特性に及ぼす機械的応力の効果

正 員 園 田 克 己 (三菱電機)

非会員 兼 田 吉 治 (三菱電機)

正 員 金 相 賢 (大阪大)

正 員 吉 野 勝 美 (大阪大)

1. ま え が き

最近、エネルギー産業の新しい方向として超電導を中心にした極低温の応用が幅広く進められている。特に、超電導発電機、超電導エネルギー貯蔵コイル、核融合炉用超電導マグネットなどの超電導機器の開発がさかんに行われている。これら超電導機器を開発するうえで、重要な課題の一つとして電気絶縁があげられる。これら超電導機器のコンパクト化、高信頼性化をはかり、機器の最適設計を行うためには、超電導機器が実際にさらされる環境、特に、極低温環境に適合できるように、電気絶縁材料が、評価・選定され、また、実証されることが重要である。

このような極低温条件下で使用される電気絶縁材料においては機械的にも電気的にも多くの解決すべき問題が生じている⁽¹⁾。例えば、超電導発電機の場合には、動作中の超電導状態が常電導状態に転移するとき、頂上電圧は5kV程度にも達するため⁽²⁾、極低温における電気絶縁特性の研究は極めて重要なテーマとなっている。また、極低温下では、一般に固体絶縁材料の脆性が増すので室温と極低温間の温度差、熱収縮率の違いによる熱ひずみ、熱衝撃は大きな問題となり、更に大形核融合炉で使用される超電導マグネットコイルの電気絶縁材料には、定常状態の場合、最大400MPaの大きな電磁応力が使用されるので⁽³⁾、機械特性の把

握と改良も重要である。

また、電気絶縁材料としては極低温での気体、液体固体更にはこれらの界面が問題となるが、特に構造支持材料としても有効に使われる固体材料は、低温での機械的性質の劣化、すなわち低温脆性と種々の原因による機械的繰返し応力の影響が大きく、しかも電気的ストレスの複合劣化要因を備えているので極めて重要な問題である。

筆者らの一部はこれらの問題について研究を行って来ており、極低温液体の絶縁破壊⁽⁴⁾、極低温での気体・固体の絶縁破壊⁽⁵⁾、極低温での固体・液体表面での沿面放電⁽⁶⁾、極低温での固体の機械的破壊⁽⁷⁾などについて研究して、それらの破壊特性およびメカニズムを明らかにした。また、極低温ガスヘリウム中での沿面フラッシュオーバー特性などについて先に報告した⁽⁸⁾。更に0°方向材の各種複合材料および高分子材料の室温、液体窒素、液体ヘリウム温度での機械的特性についての研究結果を報告した⁽⁹⁾。

本報告では、ガラス繊維強化プラスチックの45°方向材の薄板状試験片に一軸延伸を与え、引張強度およびクロスヘッド変位量の温度依存性を調べ、極低温下(液体窒素、液体ヘリウム温度)での破壊挙動を検討した。また、45°方向材の薄板状試験片の機械ストレス下での電気絶縁特性を検討したので報告する。

2. 実験方法

〈2・1〉 試料 用いた試料は、ガスクロスエポキシ積層品である。この積層品に使用したガラスクロスはEガラスの平織り(公称166g/m²)である。このガラスクロスとアミン硬化形ビスフェノールAタイプエポキシ樹脂とを用いプリプレグシート(厚さ:

Effect of Mechanical Stress on Electrical Insulating Properties of Glass Fibre Reinforced Plastic at Cryogenic Temperatures. By Katsumi Sonoda, Member, Yoshiharu Kaneda, Non-member (Mitsubishi Electric Corporation) & San Hyon Kim, Member, Katsumi Yoshino, Member (Osaka University).

園田克己: 正 員, 三菱電機(株)生産技術研究所

兼田吉治: 非会員, 三菱電機(株)生産技術研究所

金 相賢: 正 員, 大阪大学工学部

吉野勝美: 正 員, 大阪大学工学部

図 1 供試試料の形状

Fig. 1. Dimension of the sample.

0.185 mm) を製作した。このプリプレグシートを三枚積層し、ホットプレスにより、厚さが 0.5 mm になるように成型した。試料形状は幅 32 mm, 厚さ 0.5 mm, 長さ 150 mm である。供試試料の繊維方向は複合材料の各構成要素の性質が顕著に反映されと考えられる 45° 方向材 (荷重方向に対してガラスクロス繊維を 45° 方向に配置したもの) とした。図 1 に供試試料の形状および寸法を示す。

〈2・2〉 実験方法 測定は室温、液体窒素温度、液体ヘリウム温度で行い、インストロン万能試験機 1125 型を使用して引張試験および引張ストレス下での破断に至るまでの誘電損失、静電容量並びにその周波数特性の変化を測定した。また、引張ストレス下での絶縁破壊電圧の測定は、機械応力負荷絶縁破壊測定用装置を製作し、液体窒素温度における絶縁破壊電圧 (以下、BDV と略す。) を測定した。液体窒素温度、液体ヘリウム温度での測定は、各種液体中に浸漬して実施した。

引張り速度は、1 mm/min, スパン間隔は、90 mm とした。引張ストレス下の実験では、試料のつかみ部で破断することが懸念されるので、試料の切出し端面の加工をバフ研磨により行い、つかみ部での破断が生じないようにした。また、電気特性測定後、試料を観察し、試片中央部で破断したデータのみを採用した。

また、電気特性の測定は、引張ストレスを負荷した後、その状態で各種測定を行った。

インストロン万能試験機を用いた試験装置の外観を図 2 に示す。また、機械特性と電気特性を同時に測定するために平行平板電極で試料を挟んで引張試験を行ったが、電極と試料の密着性が電気測定を行ううえで十分でかつ引張試験に影響を与えないようにする必要がある。図 3 に応力負荷治具、電極系の外観を示す。

機械応力負荷下絶縁破壊測定用装置の外観を図 4 に

図 2 インストロン万能試験機を用いた試験装置

Fig. 2. Testing apparatus used with Instron universal testing instrument.

図 3 図 2 の装置の応力負荷治具、電極系

Fig. 3. Jig of the tensile stress loading and electrode system of the apparatus in Fig. 2.

図 4 機械応力負荷下絶縁破壊測定用装置の外観

Fig. 4. Outward of the electrical breakdown measurement apparatus with the equipment of the tensile stress loading.

図 5 図 4 の装置の応力負荷装置の試料装着部と電極系

Fig. 5. Parts of the sample installing and the electrode system on the equipment of the tensile stress loading of the apparatus in Fig. 4.

示す。この応力負荷装置では最大 1,200 kg まで負荷することができる。また、試料は一度に 3 個装着することができ、外部駆動により、チャックに順次新しい試料を装着し機械ストレスを負荷した状態で、極低温下の絶縁破壊試験をすることができる。応力負荷装置の試料装着部と電極系を図 5 に示す。なお、図 2、図 3 に示す装置は、高電圧端子がないので、絶縁破壊電圧測定には図 4、図 5 に示す装置を用いて行った。

誘電損失、静電容量およびその周波数特性の測定は、1621 Precision Capacitance Measurement System (General Radio Co. LED) および HP-4274 A (Multi-Frequency LCR Meter. YHP 製) を用い、高圧電極、低圧電極、ガード電極からなる電極構成をもった三端子法により実施した。絶縁破壊電圧 (BDV) 測定は、球対平板電極構成とし、絶縁破壊自動測定装置 (三菱電機製) により交流 (60 Hz) BDV の実効値を測定した。電圧上昇速度は 1 kV/s とした。

また、絶縁破壊後の試料の顕微鏡観察は、光学顕微鏡を用いて行った。

3. 実験結果および考察

(3.1) 荷重-クロスヘッド変位特性 図 6 に荷重-クロスヘッド変位量曲線の代表的な例を示す。前報で示した 0° 方向材試料の場合には大きな降伏は見られなかったのに対し⁽⁷⁾、 45° 方向材試料の場合は図 6 から明らかなように、液体窒素温度では 184 MPa 液体ヘリウム温度では 200 MPa 程度から大きな降伏が見られる。また、室温と液体窒素、液体ヘリウム温度では降伏の始まる荷重と共に降伏の様子が異なる事がわかる。

図 7 に 77 K での荷重-クロスヘッド変位量曲線を示す。図中 (b)~(e) に示す部分は、荷重-クロスヘッド変位量曲線の荷重を示す縦軸が、0~1 kN, 1 kN~2 kN, 2 kN~3 kN, 3 kN~4 kN となるようにフルスケールを拡大する方法で記録した曲線である。図

図 6 荷重-クロスヘッド変位量曲線

Fig. 6. Curve of the tensile stress loading-crosshead displacement.

図 7 77 K の場合の荷重-クロスヘッド変位量曲線

Fig. 7. Curve of the tensile stress loading-crosshead displacement at the liquid nitrogen temperature.

からわかるように荷重が 125 MPa 付近では弾性的性質を示す (図 7 (b) の領域) が、荷重が降伏点 (184 MPa) を越すとセレーションが観測される。また、降伏点を示す直前 [図 7 (c) の領域, 181 MPa に相当] にも微小なセレーションが見られる。これらのセレーションは、荷重の増加とともに大きくなることがわかる [図 7 (d), (e) の領域, 188 MPa, 200 MPa に相当]。

(3.2) BDV-荷重依存性 図 8 に BDV-荷重依存性を示す。図中、○印は試験後試片の顕微鏡観察でボイド、クラックの発生が認められなかったものであり、荷重-クロスヘッド変位量曲線で降伏点が観測されなかったものを示している。一方、●印はボイド、クラックの発生が確認されたものである。図からわかるように、ボイド、クラックの発生が認められなかったものについては、荷重が大きくなると BDV の低下が認められるが、18 kV 以上の値を保持している。

図 8 絶縁破壊電圧-荷重依存性

Fig. 8. Dependence of the electrical breakdown voltage on the tensile stress loading.

図 9 液体窒素温度での絶縁破壊後の試料の顕微鏡写真

Fig. 9. Microscopic photograph of the sample after the electrical breakdown at liquid nitrogen temperature.

一方、ボイド、クラックの発生が確認されたものについては、BDV の低下が大きく、10 kV 以下の値を示すものもあることがわかった。また、降伏点が観測されなかったものの、ボイド、クラックの発生が確認されたものもみられ、その BDV は、10 数 kV の値を示すことがわかった。

荷重と BDV との関係を検討するため、絶縁破壊後の試料の外観について、顕微鏡観察を行った。その結果を、図 9 (a)～(f)に示す。(a)は荷重なし、(b)は 125 MPa 荷重印加、(c)は 181 MPa 荷重印加、

(d)は 188 MPa 荷重印加、(e)は 200 MPa 荷重印加、(f)は 188 MPa 荷重印加試料のボイド、クラック部の拡大写真である。図 9 (b)～(e)は、図 7 中の (b)～(e)に対応する。図 9 (a)、(b)では、引張荷重によるボイド、クラックの発生は認められなかった。そして、図 8 での BDV の低下が若干認められるものの、18 kV 以上の値を保持していることがわかった。しかし、図 9 (c)では引張荷重による微小なボイド、クラックの発生が観測された。絶縁破壊は、このようなボイド、クラック部でおこることが認められた。このことから、図 8 の高荷重側で 10 数 kV まで BDV が低下したものと考えられる。

一方、図 9 (d)ではボイド、クラックの発生が多くなり、更に荷重の増加した図 9 (e)ではボイド、クラックが無数に発生していることがわかる。このことから、降伏点を越える荷重領域では、荷重の増加とともに BDV は大きく低下し、10 kV 以下の値を示したものと考えられる。

以上の内容から、極低温での引張ストレスによるボイド、クラックの発生と BDV の低下の関係は、次のように考察することができる。

引張ストレスが小さい領域では試料は弾性的性質を示し、BDV の低下が若干認められるものの、18 kV 以上の値を保持している。極低温下では、マトリックス樹脂の引張破断ひずみは、強化材であるガラスクロス破断ひずみよりも小さいと報告されている⁽⁹⁾。また、極低温に試料をさらすことによる熱収縮は、ガラスクロスよりもマトリックス樹脂の方が大きい。このためマトリックス樹脂中に引張残留ひずみが生じていると考えられている⁽⁹⁾。これらのことから、極低温においては引張破断が生ずる前には、マトリックス樹脂中に、ボイド、クラックの発生がみられ、その後の荷重増加により、破断が生じると推定される。引張ストレスが小さい領域では、試料は弾性的性質を示し、BDV も若干の低下はあるものの、ボイド、クラックの発生はみられない。

一方、引張ストレスが大きくなってくると、マトリックス樹脂とガラスクロス破断ひずみ、熱収縮率の違いによりマトリックス樹脂の表面に荷重方向に対し垂直方向に局所的な微小クラックが発生する〔図 9 (c)〕。このことが図 7 (c)でみられる微小なセレーションに反映されたものと考えられる。しかしながら、この時点では荷重-クロスヘッド変位量曲線上には降伏点は観測されない。また、ガラスクロス破断も生じていないものと推定される。

更に、荷重が大きくなるとクラックは繊維方向 (荷

重方向に対し 45° 方向) に進展し、ガラス繊維とマトリックス樹脂の界面せん断剥離へと発展する。また図 7 (d) にみられるようにセレーションの数も多くなることがわかる (図 9 (d), (f))。この時点で荷重-クロスヘッド変位量曲線上には降伏点が観測され、BDV は大きく低下する。しかし、この時点でも試料全域に対するボイド、クラックの発生は局部的である。

更に荷重が大きくなるとボイド、クラックの発生が試料全域に広がり (図 9 (e)) ガラス繊維の局部的な破断が発生し大きなセレーションが観測される [図 7 (e) 部]。この状態では BDV は初期に対し約 40% に低下する。

以上のことから、絶縁破壊電圧の低下とボイド、クラックの発生はよく対応していることがわかる。また、ボイド、クラックの発生は、荷重-クロスヘッド変位量曲線で観測されるセレーションともよく対応していることがわかった。また、逆に極低温での機械的劣化が電気絶縁を著しく低下させることが明らかとなり、その解決法の探求が重要なことがわかる。今後の検討に期待したい。

〈3・3〉 誘電損失、静電容量の温度、周波数-荷重依存性 図 10 は室温、液体窒素、液体ヘリウム温度における引張ストレス下での誘電損失の周波数-荷重依存性である。引張荷重下での誘電損失の周波数特性は、室温では周波数の増加と共に上昇するが、液体窒素温度では周波数を変化させてもほとんど変わらない。液体ヘリウム温度になると低周波側で誘電損失が増加するという特徴が見られる。

図 11 は、室温、液体窒素、液体ヘリウム温度における引張ストレス下での静電容量の周波数-荷重依存

図 10 室温、液体窒素、液体ヘリウム温度での引張ストレス下での誘電損失の周波数-荷重依存性

Fig. 10. Dependence of the dielectric loss frequency properties on the tensile stress loading at room temperature, liquid nitrogen and liquid helium temperatures.

図 11 室温、液体窒素、液体ヘリウム温度での引張りストレス下での静電容量の周波数-荷重依存性

Fig. 11. Dependence of the capacitance frequency properties on the tensile stress loading at room temperature, liquid nitrogen and liquid helium temperatures.

性である。静電容量は各温度において周波数を変えてもほとんど変化しない。荷重依存性も室温、液体窒素温度ではほとんど変化なく、液体ヘリウム温度の破断近傍において若干小さくなっている。

図 6 に示した荷重-クロスヘッド変位量曲線からわかるように、室温ではストレスと共に伸びが大きくなることから、45° 方向材の場合はマトリックス樹脂とガラス繊維の界面状態の変化、特にボイド、クラックの影響が顕著に現れると考えられる。極低温においても誘電損失の変化が見られるが、室温の場合と異なり試料の弾性限界内ではほとんど変化せず、降伏が観測されると増加するという特徴がある。

破断までのストレスによる誘電損失、静電容量の変化、およびその周波数依存性の詳細な機構については現在検討中であり、今後の課題としたい。しかし、破断近傍でこれらの値が変化することから、誘電損失、静電容量測定による複合材料の低温での劣化の予知、検知の可能性が得られることがわかった。

4. まとめ

本報告ではガラス繊維強化プラスチックの繊維方向 45° 方向材の極低温での機械的性質およびこれらの試料の機械ストレス下での電気特性を検討した。その結果、以下のことがわかった。

(1) 繊維方向 45° 複合材料の荷重-クロスヘッド変位量曲線には、液体窒素温度で 184 MPa、液体ヘリウム温度で 200 MPa 程度で降伏点が観測された。液体窒素温度では、荷重が降伏点を越すとセレーションが観測される。また、降伏点を示す直前にも微少なセレーションがみられた。これらのセレーションは、荷重の増加と共に大きくなることがわかった。

(2) 液体窒素温度において引張ストレス下での絶縁破壊電圧を測定した。荷重-クロスヘッド変位曲線に降伏点が観測されない荷重領域では、荷重が大きくなると BDV の低下が認められるが、18 kV 以上の値を保持している。一方、降伏点を越える荷重領域では、BDV の低下が大きく、10 kV 以下の値を示すものもあることがわかった。

(3) 荷重と破壊電圧の関係を検討するため、絶縁破壊後の試料の顕微鏡観察を行った。その結果降伏点が観測されない荷重領域で、弾性的性質を示す 125 MPa 付近ではボイド、クラックの発生は認められない。しかし、降伏点を越える荷重領域ではボイド、クラックの発生が認められ、絶縁破壊はこのボイド、クラック部で生じていることが認められた。

(4) 降伏点が認められない荷重領域の降伏点近傍では一部に微小なボイド、クラックの発生が認められる。これはマトリックス樹脂の微小クラックであり、その部分では破壊電圧が若干低下することがわかった。

(5) 荷重-クロスヘッド変位量曲線でのセレーシヨンの発生と顕微鏡観察によるボイド、クラックの発生および絶縁破壊電圧の低下とは、よく対応していることがわかった。

(6) 引張荷重下での誘電損失の周波数特性は、室温では周波数の増加と共に上昇するが、液体窒素温度では周波数を変化させてもほとんど変わらない。液体ヘリウム温度になると低周波側で誘電損失が増加するという特徴が見られた。また、静電容量は、各温度において周波数を変えてもほとんど変化しないことがわか

った。しかし、液体ヘリウム温度の破断近傍において若干小さくなっていることがわかった。

(7) 液体ヘリウム温度の破断近傍での静電容量の値が変化することから誘電損失、静電容量測定による複合材料の低温での劣化検知の可能性が得られた。しかし、これらの特性の詳細な機構については、今後の課題であろう。

本研究の一部は大阪大学低温センター脆性試験室のインストロン試験機を用いて行われたものであり同センター関係各位に謝辞を表します。

(昭和 62 年 6 月 27 日受付, 同 62 年 11 月 2 日再受付)

文 献

- (1) 金・吉野:「極低温における高分子絶縁材料の絶縁破壊」電学論 A, 105, 183 (昭 60-4)
- (2) 森山・三井・牛腸・渡辺:「超電導交流発電機巻線絶縁における諸問題」絶縁材料研究会 EIM-86-116
- (3) Division of Thermonuclear Fusion Research, Tokai: "Design Study of Superconducting Toroidal Field Magnet for Tokamak Fusion Power Reactor" *Technical Report of Japan Atomic Energy Research Institute* M 6921 (1977)
- (4) S.H Kim, M. Terauchi, K. Yoshino & Y. Inuishi: "Conditioning Effect of Dielectric Breakdown in Liquid Helium" *Japan. J. Appl. Phys.* 22, p. 952 (1983)
- (5) K. Yoshino, M. Terauchi, S.H. Kim, S. Hayashi & Y. Inuishi: "Dielectric Breakdown of Polyacethylene" *Japan. J. Appl. Phys.* 22, p. 1736 (1983)
- (6) 金・吉野・犬石:「超流動ヘリウムの絶縁破壊」第 6 回電気絶縁材料シンポジウム予稿集 p. 79 (昭 58)
- (7) 園田・越中・田中・平林・寺内・吉野・犬石:「極低温における絶縁材料の機械的・電気的性質」絶縁材料研究会 EIM-82-72
- (8) 兼田・園田・野島・前田:「極低温ガスヘリウム中での沿面フラッシュオーバー電圧特性」昭 60 電気学会全大 No. 257
- (9) 電気学会技術報告:「極低温絶縁技術」(印刷中)