

동시상호침입망목 에폭시 복합재료의 내전압 특성에 관한 연구

손 인환, 신 현택*, 가 출현**, 김 명호***, 박 창욱****, 김 경환****, 김 재환*,
 광운대학교*, 서울산업대학교**, 경원전문대학***, 안동상지전문대학****, 경원대학교*****

A Study on the Withstand Voltage Properties of Simultaneous Interpenetrating Polymer Networks EPOXY Composite Materials

Son In Hwan, Sin Hyoun Teak*, Ka Chool Hyun**, Kim Myung Ho***, Park Chang Ohk****, Kim Kyung Hwan*****, Kim Jae Hwan*,
 Kwangwoon Univ.*, Seoul National Polytech. Univ.**, Kyungwon Junior College***, Sangji Junior College****, Kyungwon Univ.*****

ABSTRACT

In order to obtain superior breakdown properties of Epoxy/SiO₂ composite materials at room and high temperature, the simultaneous interpenetrating polymer networks(SIN) is introduced into the Epoxy resin. As a result, it is observed that dielectric breakdown strength tends to increase according to the following order ; Epoxy/SiO₂ specimens, specimens treated with coupling agent and SIN introduced specimens which have stable temperature characteristics at room and high temperature. For introducing SIN into Epoxy/SiO₂ composite material, rise of glass transition temperature and suppression of defects in its internal structure is achieved. This in turn improves the dielectric breakdown strength and the heat proof property of Epoxy/SiO₂ composite materials.

1. 서론

근래의 전기·전자 기기의 소형화, 경량화 추세에 수반한 운전 온도의 상승 및 유효 절연 두께의 박막화에 대응하기 위해서는 절연재료의 온도 특성, 특히 고온에서의 절연 성능 향상이 필수적인 과제이며, 또한 전력 계통의 초고압화에 따른 송전 전압 상승에 대처할 수 있는 절연저항이 높은 절연재료의 개발이 당면한 과제라고 할 수 있다.¹⁾

현재까지 다양·다변한 환경에서 고전계 절연재료로 에폭시 수지가 주류를 이루어 왔으나, 이러한 에폭시 수지도 부서짐(brittleness)과 고온에서의 절연 파괴특성이 현저히 저하하는 결점을 가지고 있으며, 또한 충전제가 필수적으로 첨가되어야만 하는 복합재료계에서 충전제는 기계적 강도만을 강화시키고 충전제 첨가와 동시에 수반되는 계면 발생으로 인하여 전기적 특성의 저하를 초래하였다.

따라서 에폭시 수지 자체가 가지는 결점과 충전제 첨가에 의해 발생하는 문제점을 해결하기 위하여, 에폭시 수지에 첨가되는 경화제 변화, 충전제 변화, 계면 결합제의 처리 등에 관한 연구가 이루어져 왔지만,²⁾ 결점 보완에는 큰 실효를 거두지 못하였다.

그러므로 본 연구에서는 전술한 문제점 및 결점을 보완하기 위해서는 모체 수지의 기본 골격구조를 강화하는 것만이 충전제 첨가 효과의 개선은 물론, 상온 및 고온에서 우수한 절연특성을 얻을 수 있으리라 생각되어, 고분자의 강인화 방법 중의 하나인 동시상호침입망목(이하 SIN 이라 함)구조를 에폭시 수지에 도입하였다.³⁾

충진제를 0, 5, 50, 및 100[wt%] 첨가하여 제작된 Epoxy/SiO₂ 복합재료 시편과 Epoxy/SiO₂에 계면결합제(KBM-603)를 처리한 시편 그리고 Epoxy/SiO₂에 동시상호침입망목(SIN) 구조를 도입한 시편에 교류 및 교류 전압을 인가하여, 충전제 함량의 변화에 기인한 각각의 절연파괴특성을 연구,검토하였으며, SIN 도입으로 인하여 발생하는 미세구조 조직의 변화, 유리전이 온도의 변화가 상온 및 고온에서 절연재료의 절연파괴강도에 미치는 영향을 비교,검토하였다.

2. 실험

2-1. 시편 제작

본 실험에 사용한 에폭시 수지는 비스페놀 A형 YD-128(國都化學)이며, 단일망목구조 시편(이하 B, C 계열)의 경우, 경화제로는 방향족 아민계 경화제인 DDM(純正化學)과 경화촉진제로 DMP-30(純正化學)을 사용하였으며, 동시상호침입망목(Simultaneous Interpenetrating Polymer Networks) 구조를 갖는 시편(A 계열)의 제작 과정은, 우선 에폭시 수지와 메타크릴산을 혼합시켜 예비 고분자(prepolymer)를 만들고, 제작된 예비 고분자에 산무수물계 경화제인 Phthalic Anhydride(PA)(東京化學)을 배합한 후, 라디칼 중합 개시 촉매로써 Dicumyl Peroxide(DICUP)(Aldrich Chemical Company, Inc)을, 이온중합 개시 촉매로써 N, N-benzyl dimethylamine(BDMA)(東京化學)를 첨가하여 라디칼 중합과 이온 중합이 동시에 진행되는 조건에서 경화 반응을 시켜 동시상호침입망목 구조체를 얻었다.⁴⁾

충진제로는 Silicon Dioxide(SiO₂)(純正化學)를 첨가하였다. B 계열 시편의 경우, 계면 결합제(KBM-603)(信越)로 충전제를 피복하여 첨가하였다.

표 2-1에 제작된 시편의 구성배합비 및 경화조건을 나타내었다.

표 2-1. 시편의 구성 배합비 및 경화 조건

단위 : [wt%]

시 편		A #	B	C	
대	모 체 수 지	YD-128	-	100	100
		YD-128 + MA	100	-	-
	경 화 제	DDM	-	27	27
		PA	8	-	-
비	충 진 제	SiO ₂	0, 5, 50, 100	0, 5, 50, 100	0, 5, 50, 100
	경 화 촉 진 제	DMP-30	-	0.5	0.5
	중 합 개 시 제	DICUP	0.9	-	-
		BDMA	0.11	-	-
계 면 결 합 제	KBM-603	-	1.5	-	
경 화 시 간		130[°C]/3[hr] +150[°C]/8[hr] +180[°C]/2[hr]	90[°C]/2[hr]+150[°C]/4[hr]		

(범례#) A 계열 : 동시 상호 침입 망목 + 충전제
 B 계열 : 단일 망목 + 계면 결합제 + 충전제
 C 계열 : 단일 망목 + 충전제

그림 2-1의 공정으로 제작된 시편은 3차원의 단일 망목 구조와 SIN 구조를 갖게 된다.

표 2-1의 배합비로 각각의 경화제 및 첨가제와 충전제를 배합하여, 일정 온도에서 가열 교반한 후 달기 처리하여, 미리 경화 온도로 예열한 주형에 주입하여 경화하였다.

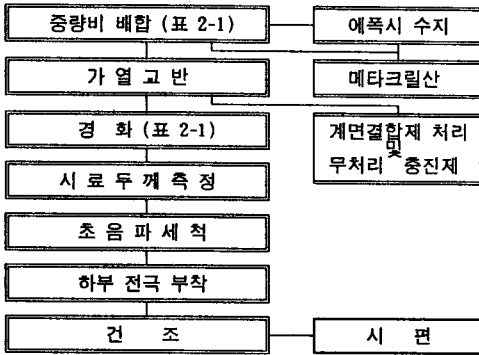


그림 2-1. 시편의 제작 공정도

2-2. 실험방법

2-2-1. 내부 구조 관측

제작된 시편의 파단면을 전자 주사 현미경(Scanning Electron Microscope : SEM, Philips Co. Ltd)을 사용하여 내부 구조를 관찰하였다.

2-2-2. 차동 열량 분석

제작된 시편의 유리 전이 온도 측정을 위하여 차동 열량 분석기(DSC : Differential Scanning Calorimeter, Dupont Co. Ltd, 1090B)를 사용하였다.

2-2-3. 절연 파괴 강도 측정

적류 및 교류 절연 파괴 강도는 본 연구실의 고전압 발생장치(AC/DC High Voltage Generator, Pulse Engineering Co.Ltd)를 사용하여 측정하였다.

3. 검토 및 고찰

3-1. 시편의 내부 구조 관찰

사진 3-1은 각 시편의 내부 구조를 전자 현미경으로 관측한 결과이다. 사진 3-1의 (a), (b)는 SIN구조가 형성된 에폭시 시편(A 계열)을 관찰한 결과이다. SIN 즉 이중 망목이 형성됨으로 인하여, 모체 수지가 더욱 강고해졌음을 관찰할 수 있다.

사진 3-1의 (b), (d), (e)를 비교하여 보면 충전제가 첨가된 SIN구조체의 내부 결합이 충전제가 첨가된 단일 망목 구조 에폭시 시편의 내부 결합보다 상당히 감소한 형상을 볼 수 있다. 즉 에폭시 복합재료에 있어서 SIN 구조의 도입으로 인하여 충전제와 모체수지간의 계면 발생을 감소 시키며, 시료 제작시 발생하는 내부 결합을 감소시킨다고 생각된다.

사진 (d)에 나타난 바와 같이 B 계열에서는, 무기질인 충전제 SiO₂와 유기질인 에폭시 수지를 결합시켜 주는 초상물의 형성을 관찰할 수 있다.

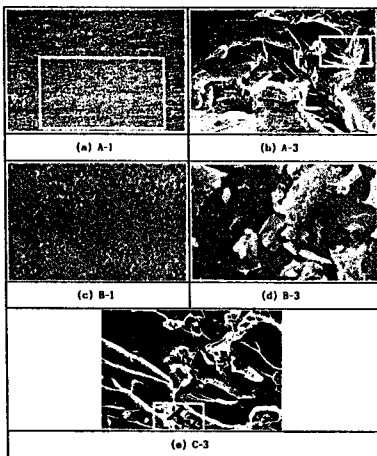


사진 3-1. 시편의 전자현미경 사진

3-2. 시편의 유리 전이 온도

표 3-1은 충전제가 50[wt%] 첨가된 각 시편의 유리전이 온도를 나타내고 있다.

실험 결과로부터, SIN구조를 갖는 시편의 유리전이 온도가 다른 시편의 유리 전이 온도보다 가장 높음을 알 수 있다. 유리전이 온도가 내부조직의 계절경 온도이고, E_B가 유리전이 온도 전후에서 변화된다는 보고²⁾가 있다.

본 실험의 유리전이 온도 측정 결과 및 E_B 측정 결과로부터 추론하여 볼때, E_B는 유리전이 온도 직전에서 변화하기 시작한다. 그러므로 어떤 절연재료의 E_B를 증가시키고자 한다면, 그 재료의 유리전이 온도 상승이 우선되어야 한다고 생각된다.

표 3-1. 각 시편의 유리 전이 온도

시편	A-3	B-3	C-3
유리전이온도			
T _g [°C]	139.1	129.7	111.7

3-3. 절연 파괴 특성

3-3-1. 망목 구조 변화에 따른 절연파괴강도의 온도 의존성

그림 3-1은 망목 구조가 다른 A-4 시편과 C-4 시편의 절연파괴강도의 온도 의존성을 나타내고 있다.

실험 결과에서와 같이 SIN 구조인 A-4 시편이 상온에서 고온까지 안정한 반면 단일망목 구조 시편인 C-4는 고온영역에서 절연파괴강도의 저하를 보이고 있다. 즉 에폭시 복합재료는 SIN 구조 도입으로 안정한 온도특성을 갖게된다.

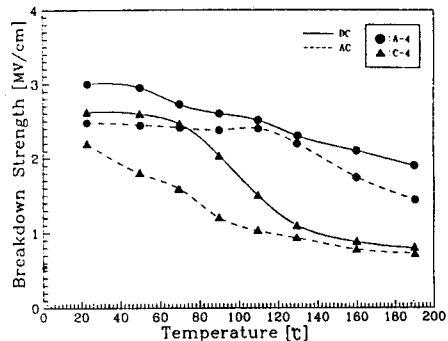


그림 3-1. A-4, C-4 시편의 절연파괴강도의 온도 의존성

그 원인은 이중 망목으로 인하여, 구조 자체가 강고하고 조밀하게 됨에 따라 전로의 형성이 억제될 뿐만 아니라 에폭시 수지 내부의 자유 체적이 감소하게 되며, 부시점이 억제되고 또한 모체수지와 충전제 사이의 접착력 강화로 계면이 축소되기 때문이라 생각된다. 따라서 에폭시 수지가 가지는 단일망목 구조 보다 SIN의 절연파괴강도가 상온은 물론 고온에서도 현저하게 증가되며, 더욱 안정한 온도 특성을 갖는 것으로 생각된다.

3-3-2. 망목 구조 변화 및 계면 결합제 처리에 따른 절연파괴강도의 충전제 함량 의존성

그림 3-2는 50[°C]에서의 각 시편의 충전제 함량 의존성을 각 전압에 있어서 나타낸다. 직류 및 교류를 인가한 경우, 충전제 함량의 증가에 따라 A, B, C 계열의 E_B가 동일하게 감소되는 경향을 가짐을 알 수 있다. 그 원인은 비교적 실은 부근에서의 절연파괴 기구는 열이 개입되지 않는 전자상태 파괴이기 때문이다.

그림 3-3은 비교적 고온 영역인 160[°C]에서 각 전압에 있어서의 절연파괴강도의 충전제 함량 의존성을 나타낸 결과이다. 직류 및 교류를 인가한 경우, A 계열 시편은 충전제 함량이 증가할수록 그 E_B도 상승하는 경향을 가진다. 그러나 B, C 계열 시편은 충전제 함량이 증가할수록 그 E_B는 오히려 감소하는 경향을 가진다.

이와 같은 결과로부터 추론되는 원인은 다음과 같다.

고온 부근(160[°C])에서의 파괴기구는 주로 열파괴이다. 이러한 기구가 지배하는 고온영역에서, 에폭시 수지내에서 발생한 열을 열전도도가 우수한 충전제가 시편 외부로 열을 비교적 쉽게 방산시키는 충전제 효과가 SIN구조 도입으로 인하여 증대되어 A 계열 시편은 충전제 함량의 증가에 따라 그 E_B도 상승하게 된다.

그러나, SIN구조가 아닌 B, C 계열 시편은 충전제 함량이 증가함에 따라 내열특성은 개선되나, E_g 는 감소한다. 즉 완전한 충전제 효과를 거두지 못하는 것이다.

그러므로 금속과 필봉재료의 열전도도의 일치를 위하여 반드시 충전제가 첨가되어야만 하는 복합재료계에서, 충전제 첨가 효과를 얻기 위해서는 SIN구조가 도입되어야 한다고 생각된다.

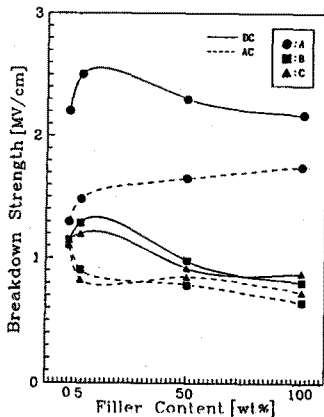


그림 3-2. A,B,C계열 시편의 절연파괴강도의 충전제 함량 의존성(50°C)

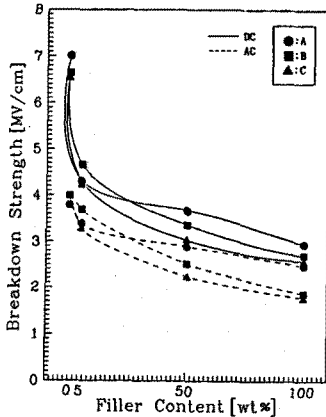


그림 3-3. A,B,C계열 시편의 절연파괴강도의 충전제 함량 의존성(160°C)

3-3-3. 망목 구조 변화 및 계면 결합제 처리에 따른 절연파괴 특성

그림 3-4는 무충진 시편의 망목 구조 변화에 따른 절연 파괴 특성을 나타내고 있다. A-1 시편의 절연파괴강도가 각 전압에 있어서 B-1 시편보다 높다. 이와 같은 결과는 SIN 구조 도입으로 모체수지의 망목 구조가 강고, 조밀해져 절연파괴강도의 증가를 나타내는 것으로 생각된다.

그림 3-5는 충전제가 50[wt%] 첨가된 각 계열 시편의 절연파괴 특성을 나타내고 있다. 상온은 물론 고온에서 SIN구조의 절연파괴강도의 개선 효과가 확인되고 있다.

B-3 시편의 경우, 고온영역에서는 계면 결합제가 열에 의하여 해리되어 전기적 불순물로 작용하기 때문에 C-3 시편의 절연파괴 강도보다 낮은 값을 갖는다.

A-3 시편의 경우, 에폭시 수지 단독으로는 얻을 수 없는 무기물과의 강한 결합력을 SIN구조 형성에 의하여 얻기 때문에 고온영역에서도 다른 계열의 시편들보다 높은 절연파괴강도를 갖는다고 생각된다.

이와 같은 결과들로 미루어 볼때, 모체수지인 에폭시 수지의 특성 개선과 망목 구조의 변화 즉 물리적 구조의 변화를 통하여, 무기물인 이산화 규소와 유기물인 에폭시 사이에 발생하는 계면을 감소시켜, 더 우수한 절연 성능과 내열 특성을 갖는 고온용 절연 재료의 개발이 가능하다고 생각되며, 절연재료가 동시상호침입망목 구조를 갖게 되면, 안정한 온도 특성 및 우수한 내압성을 보유하게 되어 전기·전자 기기의 운전 온도 상승에 보다 적절하게 대처할 수 있으리라 기대된다⁷⁾.

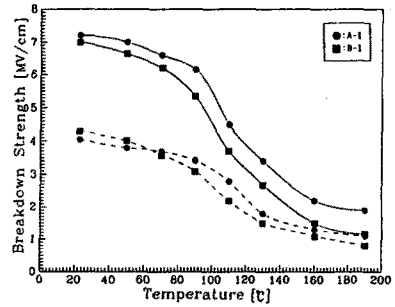


그림 3-4. 무충진 A-1, B-1 시편의 절연파괴강도

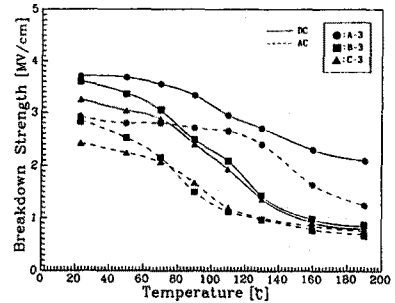


그림 3-5. 충전제 함량 50[wt%] A-3, B-3, C-3 시편의 절연파괴강도

4. 결 론

동시상호침입망목 Epoxy/SiO₂ 복합재료와 단일망목 구조 Epoxy/SiO₂ 복합재료, 그리고 계면 결합제로 처리된 Epoxy/SiO₂ 복합재료의 절연파괴특성을 비교, 검토하여 다음과 같은 결론을 얻었다.

- 1 망목 구조 변화에 따른 절연파괴강도의 온도 의존성
단일 망목 구조에 비하여 이중 망목 구조가 유리전이는 온도 상승과 내부 결합 감소로 인하여 안정한 온도 특성을 나타내었다.
- 2 망목 구조 변화 및 계면 결합제 처리에 따른 절연파괴강도의 충전제 함량 의존성
충전제 함량이 증가함에 따라, 단일망목 구조 시편과 계면 결합제 처리 시편의 절연파괴강도는 고온으로 증가하면서 저하하였다. 동시상호침입망목 구조 시편의 경우에는 충전제 첨가 효과로 인하여 고온으로 이동하면서 그 절연파괴강도는 증가하였다.
- 3 망목 구조 변화 및 계면결합제 처리에 따른 절연파괴특성
동시상호침입망목 에폭시 복합재료의 절연파괴특성이 기타 다른 시편들에 비하여 안정한 특성을 갖는다.
즉 망목 구조 변화를 통하여 복합재료의 절연파괴강도 및 내열특성을 개선할 수 있다고 생각된다.

참 고 문 헌

- 1 水谷昭吉, "高分子絶縁材料の高電界電氣傳導と絶縁破壊研究の現状と課題," 日本電氣學會論文集, A 112 卷, 3 號, pp. 167~172, 1992.
- 2 김재관, 박정욱, 김정관, 김명호, "전기설비용 Epoxy/SiO₂ 복합재료의 계면 처리 효과에 따른 직류 절연 파괴 강도의 개선에 관한 연구," "조명 설비 학회지 제 6 권 제 2 호 PP. 51~55, 1992
- 3 L. H. Sperling, "Introduction To Physical Polymer Science," p. 280, 1985.
- 4 角田誠 外1人, "メタクリル酸 變性エポキシ樹脂 同時相互 侵入網目(SIN)の動的粘弾性および誘電緩和挙動," 高分子論文集, Vol. 40, No. 8, pp. 505~512, 1983.
- 5 "固體絶縁材料の添加劑, 充てん劑 效果," 日本電氣學會技術報告(II部) 第342號, pp. 3~21, 1989.
- 6 R. Sobry, Y. Rassel, F. Fontaine, J. Appl. Cry, pp. 692~701, 1991.