

電氣設備用 에폭시-SiO₂ 複合材料의 絶縁被壞 特性에 관한 研究

**A study on the Dielectric Breakdown Strength Characteristics
of Epoxy-SiO₂ Compound Material for Electric Installation**

金 在 煥* · 朴 昌 玉**
(Jae-Hwan Kim · Chang-Ohk Park)

요 약

비스페놀 A형 에폭시 수지에 SiO₂를 충전한 에폭시 복합재료의 단시간 절연파괴 특성을 충전제 첨가 함량의 변화, 주위온도(상온~190[°C])의 변화 및 인가 전원의 종류별로 연구, 검토하였다. 연구결과, 절연파괴강도는 충전제 함량의 증가에 대해 일반적으로 감소하는 경향을 보였으며, 입자간 중심거리 d가 충전제함량이 증가함에 따라 감소하여 평균입자간격이 7.5[μm]이하가 되면 절연파괴강도가 거의 일정한 값이 됨을 확인하였다. 또한, 교류전압을 인가하는 경우는 고온영역(130[°C])이상에서 충전된 에폭시수지가 무충진 에폭시수지보다 절연파괴강도가 증가하였다.

Abstract

In this study the investigation were carried out on short-term breakdown characteristics of the compound material dependent on change of filler quantity, ambient temperature(room temperature~190[°C]) and kinds of voltage sources for the compound materials of Bisphenol-A epoxy resins filled with SiO₂ particles. As the results, obtained the dielectric breakdown strength generally decrease as increasing the quantity of filler and the distance, spacing of each's particles, decrease as increasing the quantity of filler, when the distance is less than 7.5[μm], dielectric breakdown strength is nearly constant.

In the case on AC voltage dielectric strength of filled epoxy resins is stronger than nonfilled epoxy resins on temperature region more than 130[°C].

1. 서 론

최근, 에폭시수지는 우수한 전기적 성질로 인해 매우 주목받고 있으며 이를 모체로한 복

*正會員 : 광운대학교 전기공학과 교수 · 공박

**正會員 : 광운대학교 전기공학과 강사 · 공박

接受日字 : 1991년 5월 28일

합재료가 여러 방면에 응용되고 있다.

이러한 요건에 대해, 복합재료로서 가장 큰 잇점은 모체에 알맞는 충전제와 적당량의 경화제를 선정하여 단독으로는 얻을 수 없는 우수한 전기적, 기계적 및 열적특성을 가진 절연재료를 얻을 수 있는 것에 착안하여^{1)~5)} 본 연구에서는, 에폭시-SiO₂ 복합재료의 전기적 특성을 결정하는 여러 인자(factor)와 그 상호관계가 경화과정을 발생하는 복잡한 분자구조로 인해 거의 규명되지 않고 있으므로, 전기적 특성의 하나인 절연파괴강도(이하 E_{BD}라함)를 1) 충전제 함량(중량비 및 체적비), 2) 주위온도, 3) 인가전압에 따라 에폭시 복합재료의 절연파괴강도에 미치는 충전제의 영향 및 절연파괴기구 등에 관하여 연구하였다.

2. 실험

2.1 사용시료

본 연구에서 사용한 고온경화용 에폭시수지는 YD-128 비스페놀 A(Diglycidly-ether-A)형이며 경화제로는 방향족 아민 계열의 D-DM(Diamino Diphenyle Metane)을 사용하였다. 경화조건은 전 경화(90[°C]×2hr), 후 경화(150[°C]×4hr)로 나누어 경화하였고, 충전제는 SiO₂를 사용하였으며, 배합량은 에폭시 중량에 대한 중량비로서 0, 5, 50, 100, 150[W%]로 충전하였다.

표 1은 SiO₂분말(순정 화학제)에 대한 물성이며, 표 2는 제작된 시료의 체적비이다.

여기서 입자밀도 n은 충전제 입자의 평균반경을 2.5[μm]로 하고, 이것이 시료 전체에 고루 분포하고 있는 것으로 가정한 경우의 1[mm³]에 포함된 평균 입자의 수이다. 또한, 평균입자간격 d(입자의 중심간 거리)는, 전극간의 평균반경 2.5[μm]의 입자가 균일하게 늘어선 경우의 입자간 거리를 나타낸다. 실험에 사용한 시료는 그림 1과 같이 너비 2×2[cm²], 두께 2[mm]의 판상시료 중앙에 직경 3[mm]의 구 전극을 삽입하여 제작하였다. 전극은 구-평판으로 하였으며, 파괴되는 시료의 두께 d는 100[μm]

표 1. SiO₂ 분말의 물성

Table 1. Various properties of SiO₂ particles

비 중	2.3~2.6
비유전율 ε ₂	4.5
형 상	구 형
평균직경 D	≈5μm
입도분포	D=1~20μm

표 2. 충전제 함량에 따른 시료의 체적비, 입자 밀도 및 평균입자간격

Table 2. Ratio of volume of filler, filler density and average distance of filler

SiO ₂ 충진시료[W%]	0	5	50	100	150
체적비 V[%]	0	1.73	14.99	26.07	34.60
입자밀도 n[10 ⁶ /mm ³]	0	0.265	2.29	3.39	5.29
평균입자간격d[μm]		15.6	7.6	6.2	5.7

가 되도록 성형 제작하였다.

2.2 실험방법

직류전압과 상용주파 60[Hz] 교류전압을 승압속도 1[kV/sec]로 절연파괴가 일어날 때까지 승압하였다.

충격파전압은 (1.2/50[μsec])의 표준파형을 선택하였으며, 극성은 부극성을 사용하였다. 충격파전압의 절연파괴전압은 서어지스코프(Sur-

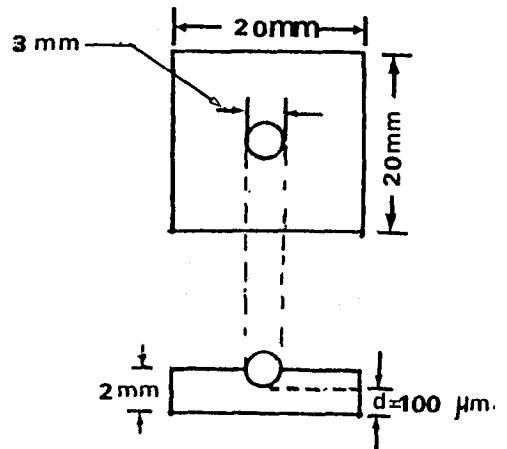


그림 1. 시료의 형상

Fig. 1. Shape of Specimen

ge scope)상의 파형을 플라로이드 카메라로 촬영하여 측정하였다.

실험은 실리콘 유(Silicon oil)를 주위 매질로 하였으며, 고전압장치는 High voltage Experimental Device(Pulse Electronic Engineering CO., KTD의 Model IV-600A)를 사용하였다. 절연파괴 강도 E_{BD}는, 파괴전압을 전극간 거리 d로 나누어 구하였다. 실험 시료의 갯수는 한 조건에서 10개이며 파괴전압은 그 평균치를 취하였다. 교류전압을 인가하는 경우는 파괴전압의 초대치를 취하였다. 절연파괴전압의 온도의존성 측정은 상온~190[°C]의 영역에서 구하였으며, 시료는 주위매질속에 약 5분간 함침시킨 뒤에 실험하였다.

3. 실험결과 및 고찰

3.1 충전제 함량에 따른 절연파괴 특성

그림 2는 충전제 함량에 따른 에폭시 복합재료의 전이온도를 측정한 결과이며, 표 3은 SiO₂ 입자의 입도분석 결과로서 충전제의 충전제의 평균입도의 크기는 약 5[μ m]임을 나타내고 있다. 또한, 그림 3은 충전제 함량에 따른 경도 측정 결과이다.

충전제 함량이 증가 할수록 경도는 증가하는

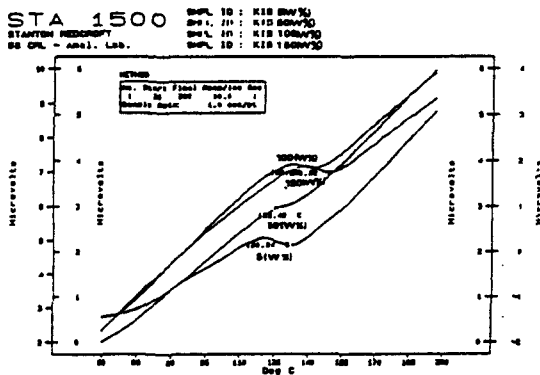


그림 2. SiO₂ 첨가함량에 따른 시료의 유리전이온도 측정[충전제(5, 50, 100, 150%)]
Fig. 2. STA scan of specimen with SiO₂ contents. [Filler(5, 50, 100, 150)]

것을 알 수 있다. 그러나, 충전량이 100[W%] 이상이 되면 시료의 경도가 거의 일정한 값을 갖게된다.

그림 4는 충격파전압 인가에 따른 충전제의

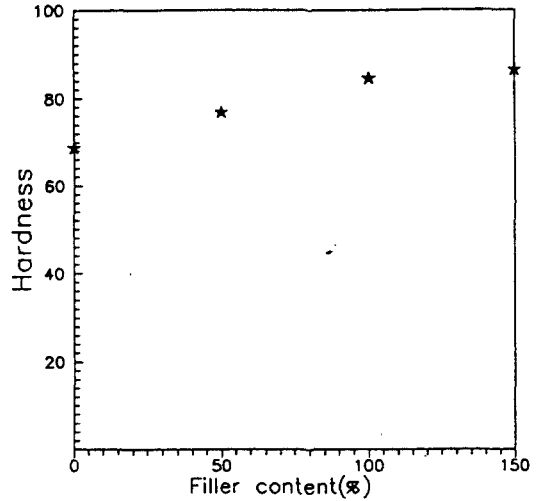


그림 3. 충전제 함량에 따른 경도 변화
Fig. 3. Variation of Hardness to filler quantity.

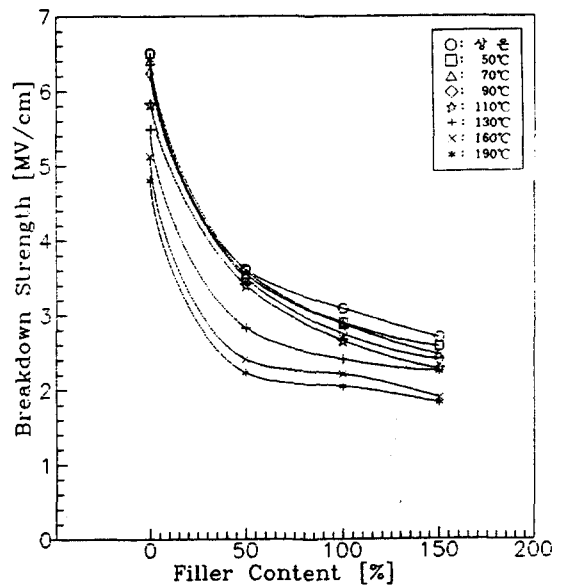


그림 4. 충격파전압 인가시 절연파괴 강도의 충전제 첨가 함량의존성
Fig. 4. Filler contents dependency of breakdown strength due to upon IMP voltage.

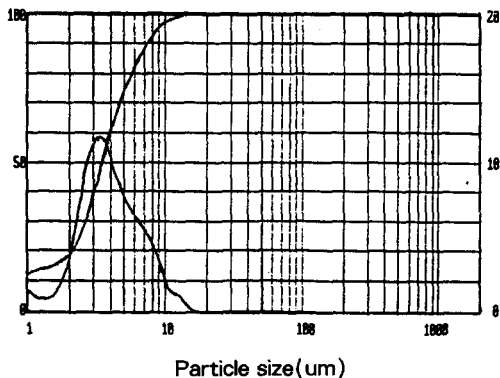
함량(0, 50, 100, 150[W%])에 따른 E_{BD} 의 온도의존성에 대한 결과이다. 무충진시료의 경우에

표 3. 충전제의 입도분석

Table 3. Particle distribution of filler.

Size		%		Size		%	
microns	under	in band	microns	under	in band	microns	under
118.4	100.0	0.0	11.1	98.1	1.5		
102.1	100.0	0.0	9.6	96.6	3.2		
89.1	100.0	0.0	8.3	93.4	4.7		
76.0	100.0	0.0	7.2	88.6	5.7		
65.6	100.0	0.0	6.2	82.9	6.5		
56.6	100.0	0.0	5.3	76.4	7.5		
48.8	100.0	0.0	4.6	68.9	9.0		
42.1	100.0	0.0	4.0	59.8	11.0		
36.3	100.0	0.0	3.4	48.8	11.4		
31.3	100.0	0.0	3.0	37.4	9.6		
27.0	100.0	0.0	2.6	27.8	6.6		
23.3	100.0	0.0	2.2	21.3	3.6		
20.1	100.0	0.0	1.9	17.7	1.9		
17.4	100.0	0.1	1.6	15.7	1.0		
15.0	59.9	0.6	1.4	14.7	0.8		
12.9	99.3	1.2	1.2	13.9			

Result source = testdata	$D(v, 0.5) = 3.5\mu m$
Record No. = 103	$D(v, 0.9) = 7.4\mu m$
Focal length = 63 μm	$D(v, 0.1) = 0.8\mu m$
Experiment type pil	$D(4,3) = 3.9\mu m$
Volume distribution	$D(3,2) = 2.3\mu m$
Bean length = 14.3 μm	Span = 1.9
Obscuration = 0.1541	Spec. surf. area
Volume Conc. = 0.0009%	0.9268 sq. s./g
Log. Diff. = 2.14	
Model indp	



비하여 충전 함량 증가에 따라 E_{BD} 는 감소함을 알 수 있다.

이것은 에폭시-SiO₂입자 계면의 결합(물리적, 화학적 결합)이 약점파괴의 원인으로 작용하므로 충전제 함량이 증가할수록 계면의 결합에 의한 약점파괴의 확률이 증가하는 것으로 사료된다. 그러나, 충전제의 첨가함량이 50[W%] 이상에서는 E_{BD} 의 감소율이 거의 일정한 것을 알 수 있다. 이 결과는 충전제의 평균입자간격과(표 2참조) 밀접한 관계가 있는 것으로 생각된다. 입자간격이 작아질수록 평등전계에서의 충전제는 하나의 고립체로서 볼 수 없고, 입자간에 영상전하를 고려해야 하므로, 에폭시모체와 충전제사이의 계면의 전계강도가 증가하게 된다. 평균입자간격이 $d < 7.5[\mu m]$ 인 50[%] 이하의 충전시료에서는 충전제 함량에 따라 입자간격이 급격하게 감소하며, 이에 따라서 E_{BD} 가 감소하고 있으나, $d < 7.5[\mu m]$ 이상의 충전시료에서는 입자간격이 5~6 $[\mu m]$ 정도로 거의 차이가 나지 않는다. 따라서 입자계면에서의 전계강도가 거의 증가하지 않으므로 절

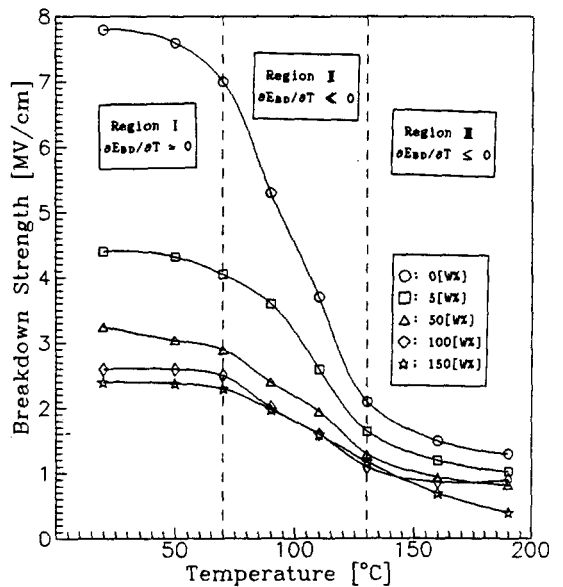


그림 5. 직류전압 인가시 충전제 첨가 함량에 따른 절연파괴 강도의 온도의존성

Fig. 5. Temperature dependency of breakdown strength due to filler contents upon DC voltage.

연파괴강도는 일정한 값을 갖게 된다고 사료된다.

3.2 절연파괴강도의 온도의존성

그림 5는 직류전압 인가시 충전제 함량(0, 5, 50, 100, 150[W%])에 따른 E_{BD}의 온도의존성을 나타내고 있다.

E_{BD}의 직류전압에 대한 온도의존성은 상온~70[°C]에서는 $\partial E_{BD}/\partial T \cong 0$ (제1영역), 130[°C]에서는 $\partial E_{BD}/\partial T < 0$ (제2영역), 130[°C]~에서는 $\partial E_{BD}/\partial T \leq 0$ (제3영역)의 특성을 보이는 3개의 영역으로 나누어 생각할 수 있다.⁶⁾⁻⁸⁾ 제1영역에서는 온도상승에 따라 E_{BD}의 값이 일정한 영역으로 이 영역에서의 절연파괴기구를 정성적(定性的)으로 고찰하면, 열적파괴 보다는 전자적 파괴이론을 생각할 수 있다.

또한, 이 영역에 있어서 직류전압과 충격파전압에 의한 E_{BD}의 값을 그림 6과 비교하면 (E_{BD})_{DC} > (E_{BD})_{IMP}이므로 (homo) 공간전하 효과가 절연파괴강도에 영향을 미친다고 사료된다.

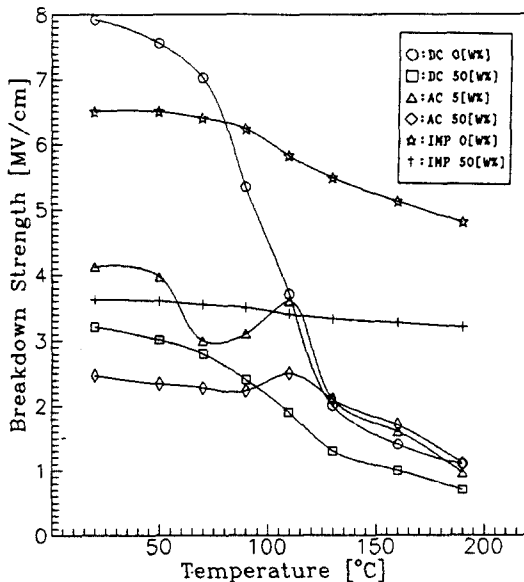


그림 6. 직류, 교류 및 충격파전압 인가시 충전제 첨가 함량에 따른 절연파괴 강도의 온도의존성
Fig. 6. Temperature dependency of breakdown strength due to filler contents upon DC AC and IMP voltage.

제2, 3영역에서는 순열적 파괴가 절연파괴의 주 요인이란 사료된다.⁶⁾⁻⁸⁾

그림 7은 교류전압 인가시 E_{BD}의 온도의존성을 나타낸 결과로서 제1영역(상온~90[°C])은 직류와 동일한 온도특성($\partial E_{BD}/\partial T \cong 0$), 제2영역(90[°C]~130[°C])은 직류와 반대의 온도특성($\partial E_{BD}/\partial T > 0$), 제3영역은 직류와 동일한 온도특성($\partial E_{BD}/\partial T \leq 0$)이 나타난다.

교류전압 인가에 의한 절연파괴기구로서는 일반적으로 유전체손에 의한 열적파괴가 유력하지만 에폭시수지의 절연파괴는 유전정접(誘電正接) tanδ에 의존하지 않는다는 보고가 있다.⁷⁾ 또한, $\partial E_{BD}/\partial T \cong 0$ 의 결과에 의해 생각할 수 있는 절연파괴기구로서는 전자적과정에 기인된다고 사료된다. 한편, 그림 6에서 교류전압 인가에 의한 절연파괴강도 E_{BD}는 직류전압 및 충격전압에 비하여 최저 (E_{BD})_{DC} > (E_{BD})_{IMP} > (E_{BD})_{AC}의 관계를 나타내고 있다. 이 요인으로서 역극성(hetro) 공간전하효과 E_{BD}에 영향을 미친다고 사료된다. 즉, 교류전압을 인가할 때 부극성(負極性) 반(半) 사이클(cycle)에서 동극

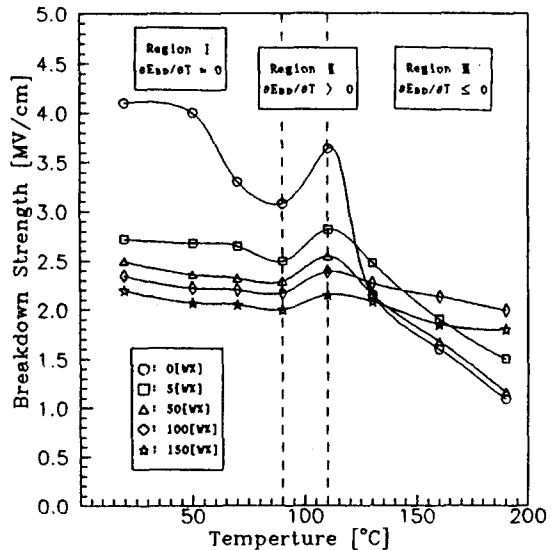


그림 7. 교류전압 인가시 충전제 첨가 함량에 따른 절연파괴 강도의 온도의존성
Fig. 7. Temperature dependency of breakdown strength due to filler contents upon AC voltage.

성의 공간전하(homo전하)가 형성되며, 그것이 극성반전시 전계를 강하게 작용시킨다고 사료된다.

그림 7의 제2영역에서의 절연파괴기구로서는 열적파괴는 고려하기 어렵고, 역극성공간전하 효과가 해리된 전자적 파괴과정을 생각할 수 있다. 이것은 온도상승에 따른 열분자운동(micro brown motion)에 의해 역극성(hetero)공간전하 효과가 감소하여 $\partial E_{BD}/\partial T > 0$ 의 경향을 나타낸다고 사료된다.

제3영역에서 생각할 수 있는 절연파괴기구로는 온도가 상승하면 E_{BD} 가 감소하므로 순열적 파괴 기구를 생각할 수 있다. 또한, 충전제 첨가함량의 증가에 따라 E_{BD} 가 서서히 증가하는 것을 알 수 있다. 이것은 고온영역에서 도전을 σ 가 급격히 증가하면서 주열을 발생하는 σE^2 이 증가하게 된다. 이때 상대적으로 무충진에 폭시 수지에 비해 충전에폭시 수지의 열방산이 쉬워지므로 온도에 따른 절연파괴강도의 감소율이 적어지게 된다.

그림 8은 충격파전압을 인가하였을 때의 면

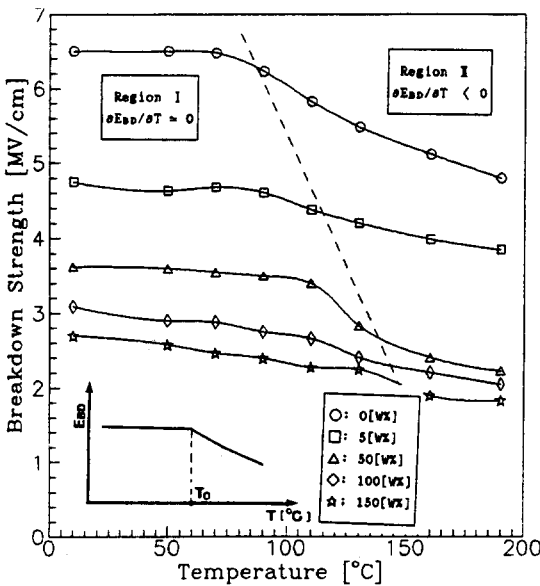


그림 8. 충격파전압 인가시 충전제 첨가 함량에 따른 절연파괴 강도의 온도의존성

Fig. 8. Temperature dependency of breakdown strength due to filler contents upon IMP voltage.

제1온도영역에서는 절연파괴시간이 수 μs 인 것을 고려하고, 온도특성이 $\partial E_{BD}/\partial T \cong 0$ 이며, 절연파괴강도에 대한 두께의존성이 그림 9와 같이 두께가 증가하면 E_{BD} 가 저하하므로 이영역에서의 생각할 수 있는 절연파괴기구로서는 정성적(定性的)으로는 전자사태에 의한 파괴기구를 생각할 수 있다. 또한, 충전제 첨가함량에 따른 모체수지와 충전제 입자의 계면이 전기적 약점으로 되어 트리(Tree)가 계면을 타고 진전할 수도 있으며⁹⁾, 계면 부근에서 급격한 전자사태 성장은 충분한 가능성이 있다고 사료된다.

제2영역($T_0 \sim$ 충진함량 변화에 따른 체적비에 의해 T_0 [°C]변화)에서는 제1영역과 같이 전압 인가로부터 파괴에 이룰때 까지의 시간이 μs 로 극히 짧기 때문에 생각할 수 있는 절연파괴기구로서는 전자적 파괴과정을 생각할 수 있다. 또한, 전자적 파괴과정중에서 이온도 영역에 가장 가능한 절연파괴기구로서는 자유체적 파괴과정을 생각할 수 있다. 자유체적 파괴는 고분자에 적용된 것이며, 분자 운동에 의해 자

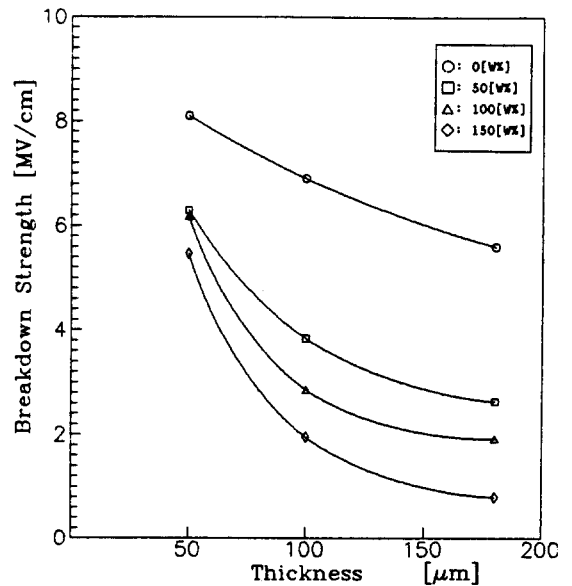


그림 9. 충격파전압 인가시 충전제 첨가 함량에 따른 절연파괴 강도의 두께의존성

Fig. 9. Thickness dependence of breakdown strength due to filler contents upon IMP voltage.

유 체적이 증가되어, 공공(空孔)이 형성되므로 이것이 약점부로 작용하여 공공에서의 전자의 가속에 의한 절연파괴가 일어난다고 사료된다.

4. 결 론

무기물인 SiO₂를 첨가한 에폭시 복합재료에 대한 절연파괴강도에 미치는 충전제, 온도, 인가전압에 따른 절연파괴 특성에 관한 연구결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

4.1 충전제 함량에 따른 절연파괴 특성

충전제 함량의 증가에 따라 절연파괴강도는 감소하였다. 그러나 절연파괴강도의 감소율의 충전제의 평균입자간격이 $d > 7.5[\mu\text{m}]$ 인 영역에서는 절연파괴 강도는 일정한 값을 유지하였다.

4.2 절연파괴 강도의 온도의존성

제1영역에서의 절연파괴강도의 온도의존성은 직류 및 교류인가시의 절연파괴기구로서 제2영역에서의 절연파괴강도의 온도의존성은 직류의 경우는 순열적파괴, 교류는 공간전하가 개재된 전자적 파괴과정이며, 충격파전압은 자유체적 파괴에 기인한다. 제3영역에서의 절연파괴강도의 온도의존성은 직류, 교류를 인가하였을 경우에는 순열적 파괴가 기인한다.

4.3 절연파괴전압의 인가전압에 따른 특성

저온영역에서 직류, 교류 또는 충격파전압을 인가하였을 경우의 절연파괴 강도를 비교하면 직류전압의 경우에는 동극성의 공간전하가, 교류에서는 역극성의 공간전하에 의해 $(E_{BD})_{DC} > (E_{BD})_{IMP} > (E_{BD})_{AC}$ 경향을 보였으며, 고온 영역

에서는 $(E_{BD})_{IMP} > (E_{BD})_{AC} > (E_{BD})_{DC}$ 의 경향을 확인하였다.

참 고 문 헌

- 1) R. Lovell, "The Effect of specimen Size on the Electric Breakdown of Unfilled and filled Epoxy polymer", IEEE Trans. Electr. Ins., EI-11, 110, 1976, 1976.
- 2) 新保正樹, "エポキシ樹脂 ハンドブック", 日刊工業新聞社, pp.1~686, 1987.
- 3) Thomas W. Dakin, "Application of Epoxy Resin in Electrical Apparatus", IEEE Trans. Eleo. Insul., Vol. EI-9, No. 4, 1974.
- 4) 福士 外, "各種の無機質粉を充填したガラス纖維強化エポキシ樹脂の沿層破壊電界", 昭 57 電學全大, No.317, 1982.
- 5) 井上外, "機器絶縁の電氣傳導と絶縁破壊", 電氣學會絶縁材料研究會資料 EIM-86-89, 1986.
- 6) 能童文敏外, "エポキシ樹脂の直流破壊電壓に及ぼすてん濟の效果", 電學論 A, Vol. 102, No.102, pp.109~116, 1981.
- 7) 吉村昇・能童文敏外, "アルミナ充てんえかエポキシ樹脂の交流短時間破壊特性", 電學論 A, No.101, pp.45~49, 1981.
- 8) 吉村 外四人, "衝擊電壓によるアルミナ充てんエポキシ樹脂の絶縁破壊特性", 電學論 A, 101, 576, 1981.
- 9) 福士・石村・外, "無機質粉充てんエポキシ材料中のトリーと V-t特性", 電氣學會絶縁材料研資 IM-73-36, 1974.
- 10) J. Artbauer, K. Zeit & Zeit. Polym., 202, 15, 1965.