

電氣設備用 Epoxy複合材料의 誘電特性

(The Dielectric Characteristics Epoxy Composite Material for Electric Installation)

李 輔 鎭* · 朴 東 化** · 李 炳 基***
(Bo-Ho Lee · Dong-Wha Park · Byung-Ki Lee)

要 約

Epoxy 複合材料의 充填劑 및 수분함유의 유전특성에 대한 영향을 고찰한 결과를 요약하면 다음과 같다.

- 1) ϵ_r 의 주파수 의존성은 시편1과 시편2의 경우에서 140°C 이하에서 직선적인 특성을 나타내고 있으며 수분의 함유시에도 직선적인 변화를 하고 있으므로 주파수나 습도 센서소자로서 개발이 가능하다.
- 2) 100[Hz]~3[kHz]의 범위에서 $\tan\delta$ 의 주파수 의존성은 캐리어 이동에 의한 도전손실 보다 쌍극자완화에 의한 손실이 지배적이며 수분에 영향은 낮은 주파수에서 크게 받는다.

Abstract

In this paper the affect an inorganic filler and a filling up water absorption in epoxy composite material was represented. The results are summarized as follows ; 1. In the case of Sample 1, Sample 2 and a filling up water absorption, the frequency dependence of ϵ_r shows the straight characteristic under 140°C. 2. Between 100Hz and 3kHz, the frequency dependency of $\tan\delta$ is dominated by the loss of a dipole relaxation than the conductive loss for movement of a carrier. The effect of water absorption, is increased as the frequency is decreased.

1. 緒 論

산업사회의 고도화에 따라 보다 높은 신뢰도와 안전성의 요구는 전기전자설비에 있어서도 複合

材料 개발의 필요성이 높아지고 있다.

複合材料는 2종이상의 소재를 복합시켜 물리적 화학적으로 서로 다른 어떠한 유효한 기능을 나타내는 재료로서 최근 크게 주목되고 있는 재료중의 하나가 Epoxy 複合材料이다. Epoxy resin

*正會員：崇實大 工大 電氣工學科 · 工博

**正會員：仁川大 工大 電氣工學科 教授 · 工博

***正會員：產業人力 管理公團

接受日字：1993年 1月 13日

의 열적, 기계적 또는 전기적 특성을 개선시키기 위하여 무기재의 充填劑가 여러모로 이용되고 있다.

充填劑는 일반적으로 단시간 파괴적인 전기특성을 저하시키기도 하지만 Treeing의 진전을 막아 過電壽命을 연장시키기도 한다. 그러나 유기재의 Matrix와 무기재의 充填劑의界面間に基層의 존재로 전기적 기계적 강도의 저하요인이 되기도 한다. 川本¹⁾은 Epoxy resin에 充填劑를 혼합함에 따른 電導度에 미치는 界面效果 등을 최근에 발표하고 있으며, 小林²⁾, 谷野³⁾, 村本⁴⁾등은 각각 PVC, Epoxy, Polyamide複合材料의 誘電性質에 대하여 보고하고 있다.

본研究에서는 이미 연구되어진 Epoxy+BaTiO₃, Epoxy+Al₂O₃, Epoxy+Sb₂O₃⁵⁾의 특성을 바탕으로 순수 Epoxy resin을 Matrix로 하고 充填劑로서 BaTiO₃, Sb₂O₃, Al₂O₃를重量比로 혼합하여 充填劑의 혼합과 수분합유가 誘電特性의 변화에 미치는 영향을考察하였다.

2. 試料 및 實驗方法

1) 試片의 제작

본 실험에서 사용된 시료는 Epoxy resin(에피코드(주)828, Epoxy당량 189~194, 평균분자량 350)과 경화재 및 촉진재를 100:80:4의 중량비로 혼합시키고 充填劑로서 BaTiO₃, Al₂O₃, Sb₂O₃를 표1과 같은 조성비로 첨가하였다. 경화조건은 1차로 80°C에서 24[h]동안 경화시키고 항온조내에서 3[°C/h]로 서냉시킨 후 2차로 120°C에서 24[h]동안 경화시킨 후 1차 경화시와 같은 조건으로 서냉시켰다. 시편의 형상은 원반상이며 두께는 3.85[mm]이며 主電極의 직경은 10[mm], 補助電極의 직경은 20[mm]로 하였다.

2) 實驗方法

시편을 그림1과 같이 평행평판전극(ANDO Co.)에 장착하였으며 전극계는 昇降溫制御式 항온조내에 넣어 온도제어를 행하였다. 항온조의 온도를 0°C, 20°C, 60°C, 100°C, 140°C로 설정하여 각 온도내에서 20[min]를 유지시켜 시편 자

표 1. 充填劑의 조성비

Table 1. Component ratio of filling.

시 편	BaTiO ₃	Al ₂ O ₃	Sb ₂ O ₃
1	0.1%	0.2%	0.2%
2	0.5%	0.2%	0.1%
3	0.5%	0.2%	0.2%
4	1.0%	0.2%	0.2%

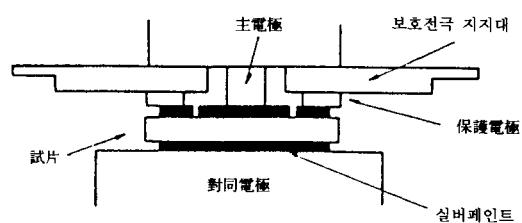


그림 1. 電極

Fig. 1. Electrode.

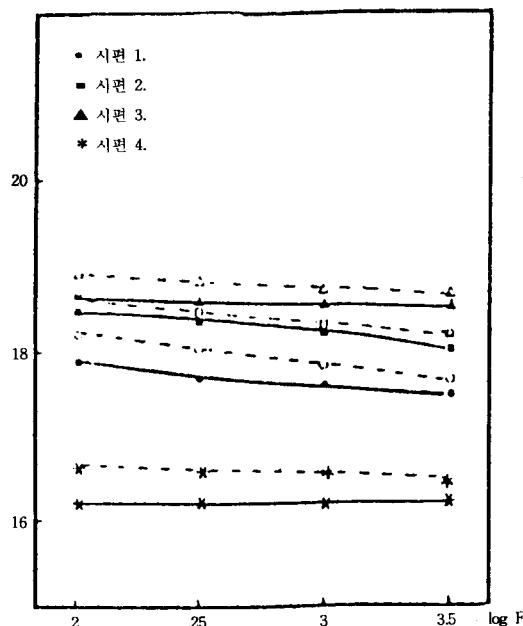


그림 2. 0°C에서의 ϵ_r' 의 주파수 의존성

Fig. 2. Frequency dependence of the specific inductive capacity 0°C

체의 온도가 안정되도록 한 후 110[Hz], 330[Hz], 1[MHz], 3[KHz]의 주파수에서 커페시턴스와 콘덕턴스를 측정하여 比誘電率(ϵ_r'), 교류손실($\tan\delta$)를 계산하였다.

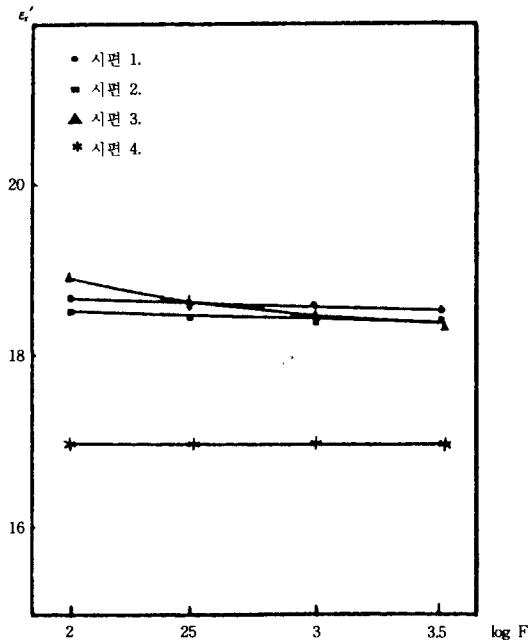


그림 3. 60°C에서의 ϵ_r' 의 주파수 의존성

Fig. 3. Frequency dependence of the specific inductive capacity 60°C

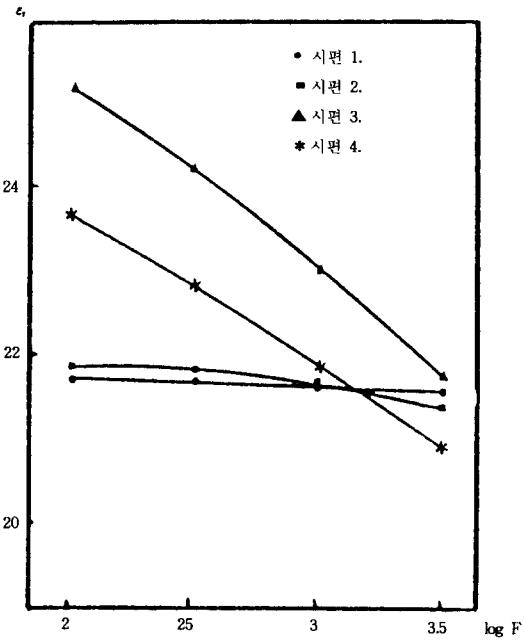


그림 5. 140°C에서의 ϵ_r' 의 주파수 의존성

Fig. 5. Frequency dependence of the specific inductive capacity 140°C

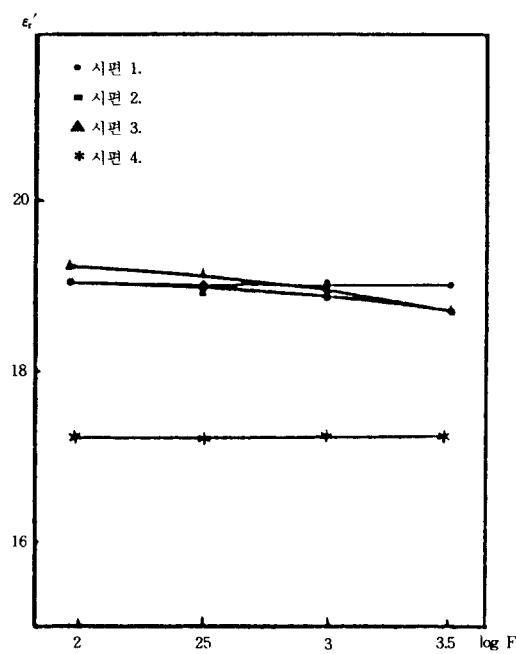


그림 4. 100°C에서의 ϵ_r' 의 주파수 의존성

Fig. 4. Frequency dependence of the specific inductive capacity 100°C

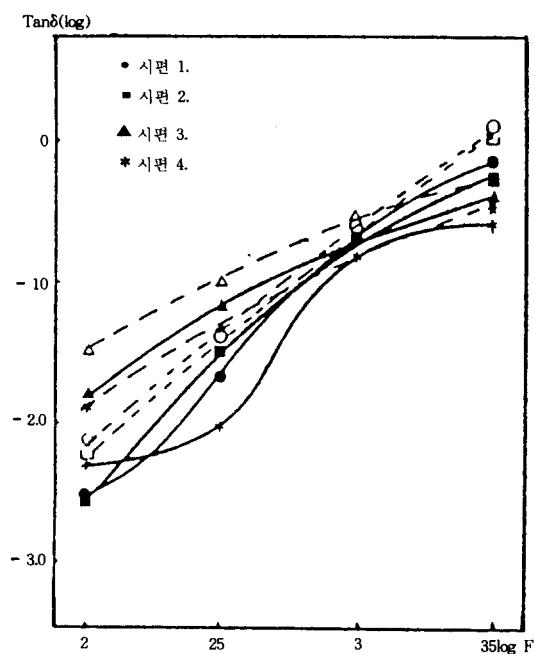


그림 6. 0°C에서의 $\tan \delta$ 의 주파수 의존성

Fig. 6. Frequency dependence of the $\tan \delta$ 0°C

수분함유에 대한 특성은 위의 시편을 일정시간(0~1000[h])동안 0.1[%]인 NH₄Cl수용액과 증유수에서 담가 놓은후 시편중량의 0.1[%_w]를 함수한 경우의 시편을 기준으로 하여 0°C에서만誘電特性을 측정하였다.

3. 實驗結果 및 검토

1) 比誘電率

그림 2는 0°C에서의 각 시편의 수분함유율이 0[%_w]인 경우와 0.1[%_w]인 경우의 주파수변화에 따른 ϵ' 의 변화이다.

본 실험의 측정 주파수범위에서의 ϵ' 는 직선에 근사하게 변하고 있으며 주파수가 증가함에 따라 약간 감소하고 있다.

시편 4를 제외한 BaTiO₃의 充填量이 증가할수록 ϵ' 는 증가하고 있으며 Sb₂O₃의 充填量이 많은 경우가 주파수 의존도가 낮은것으로 나타났다.

수분함유율에 따른 ϵ' 는 비함유의 경우보다 높게 나타나고 있으며 주파수가 증가함에 따른 증가율은 약간 낮아지고 있다.

이러한 현상은 D.D.Denton⁶⁾이 지적한 바와 같이 수분함유율이 증가하면 전극간의 시편내에 가동성의 이온이 증가하여 充電電流가 증가하기 때문인 것으로 생각된다.

그림 3과 그림 4는 60°C와 100°C에서의 각 시편의 주파수변화에 따른 ϵ' 의 특성이다. 수분함유율에 의한 특성은 시편내의 특성변화로 측정오차가 크며 재현성이 곤란하여 추후에 고찰하기로 하였다.

그림에서 나타나는 바와같이 100°C이하에서는 주파수변화에 대하여 직선에 근사한 특성을 보이고 있다. 谷野등은 BaTiO₃를 82~94[%_w]범위에서 充填劑로 사용하여 1[kHz], 23°C에서 ϵ' 를 고찰한 결과 充填量이 증가할수록 ϵ' 의 값이 증가하는 것으로 보고하였으나 tanδ의 값은 온도변화에 대하여 充填量에 따라 큰 변화를 나타나므로 요소에 따른 최적값을 고찰함이 필요하다.

그림 5는 140°C에서의 각 시편의 주파수변화에 대한 ϵ' 의 특성이다. 시편 1과 시편 2의 경우에는 Epoxy의 Tg(유리 전이온도)이상에서도 주

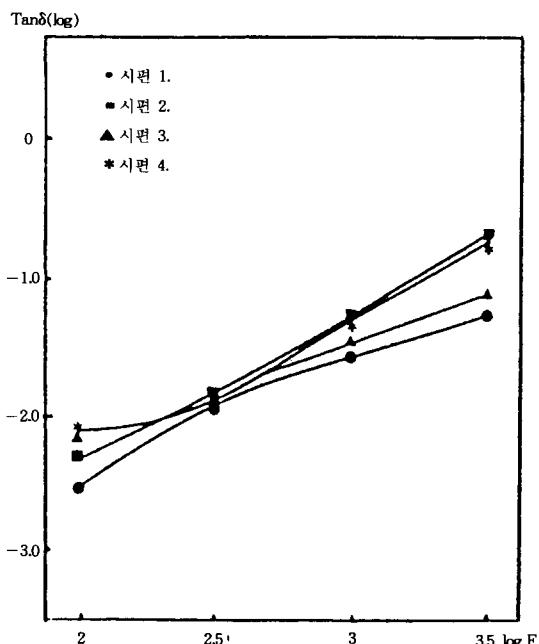


그림 7. 60°C에서의 $\tan\delta$ 의 주파수 의존성

Fig. 7. Frequency dependence of the $\tan\delta$ 60°C

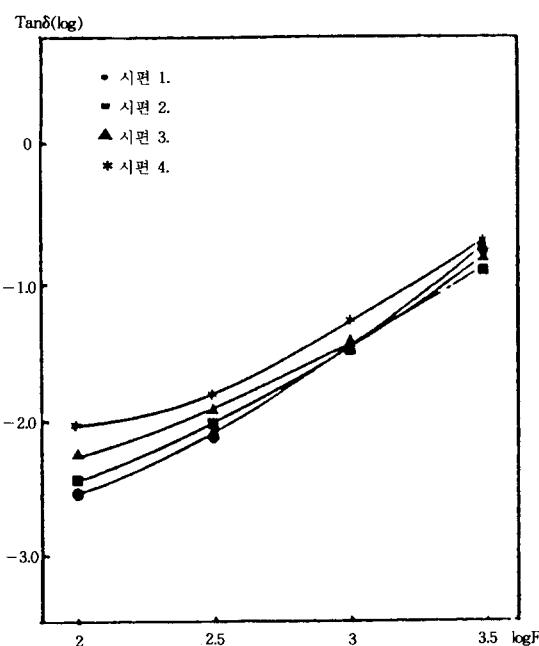
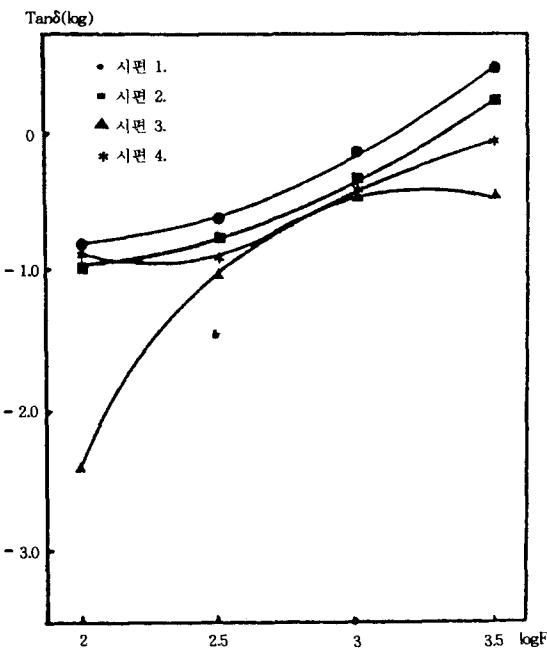


그림 8. 100°C에서의 $\tan\delta$ 의 주파수 의존성

Fig. 8. Frequency dependence of the $\tan\delta$ 100°C

그림 9. 140°C에서의 $\tan\delta$ 의 주파수 의존성Fig. 9. Frequency dependence of the $\tan\delta$ 140°C

파수변화에 대하여 거의 직선적인 변화를 보이고 있으나 시편 3과 시편 4는 負의 의존성을 보이고 있다.

이와같이 充填量에 따른 ϵ' 의 변화는 Epoxy 입자 상호간 또는 充填剤 입자간의 滞結力에 따라 큰 영향을 받고 있는 것으로 보고되고 있다. 따라서 온도변화에 대한 입자간의 滞結力의 신장은 내열복합재료 개발에 중요한 요소로서 관심이 집중되고 있다.

2) 교류손실

그림 6은 0°C에서 각 시편의 수분함유율이 0[%_w]인 경우와 0.1[%_w]인 경우의 주파수변화에 따른 $\tan\delta$ 의 특성이다. 주파수가 증가함에 따라 正의 특성을 나타내며 그 증가율은 充填量이 증가함에 따라 감소되고 있다. 또 1[kHz]일때 각 시편에 있어서 근소한 차이의 값으로 나타났다.

0.1[%_w]의 수분함유의 경우에도 위의 경우와 유사한 특성을 나타내고 있으며 저주파수에서 $\tan\delta$ 에 미치는 수분의 영향은 크게 나타났다. 이

와같은 현상은 Epoxy내부에 수분이 함유되면 캐리아의 이동에 의한 도전손실보다 고주파부분에서 쌍극자완화에 의한 손실이 수분의 영향을 크게 받기 때문으로 생각된다.

그림 7과 그림 8은 60°C와 100°C에서의 각 시편의 주파수변화에 따른 $\tan\delta$ 의 특성이다.

Polyamide에서는 주파수가 증가함에 따라 $\tan\delta$ 의 값은 점차 일정한 값에 접근되지만⁴⁾ Epoxy에서의 이 값은 온도가 변함에 따라 일정하지 않은 것으로 나타났다. 이와같은 현상은 Epoxy複合材料의 充填性分에 따라 $\tan\delta$ 에 지배적인 영향을 미치는 것이 0°C에서와 마찬가지로 캐리어이동에 의한 도전손실성분보다 쌍극자완화에 의한 손실성분임을 알 수 있다.

그림 9는 140°C에서의 각 시편의 주파수변화에 따른 $\tan\delta$ 의 특성이다. 시편 3에서만 1[KHz]와 3(kHz)사이에서 피크점이 나타나며 Tg이상의 온도에서도 높은 주파수에 대해 안정되고 있음을 알 수 있다.

4. 結論

본 논문에서는 Epoxy複合材料의 充填剤와 수분이 誘電特性에 미치는 영향을 고찰하였으며 그 결과를 요약하면 다음과 같다.

① ϵ' 의 주파수 의존성은 100°C이하에서는 온도가 증가하여도 거의 직선적인 변화를 나타내고 있다. 또한 시편 1과 시편 2의 경우에는 140°C이하에서도 직선적인 변화를 나타내는 것으로 보아 주파수 또는 습도센서 소자로서 개발이 가능하다.

② Epoxy에 수분이 함유되면 ϵ' 의 값은 미함유시보다 증가되며 낮은 주파수에서 그 증가율은 높게 나타났다.

③ $\tan\delta$ 의 주파수 의존성은 100°C이하에서는 온도가 증가함에 따라 캐리아 이동에 의한 도전손실보다 쌍극자완화에 의한 손실이 지배적이다.

④ 수분함유에 대한 $\tan\delta$ 의 값은 1[kHz]를 기점으로 하여 주파수가 낮아 질수록 영향을 크게 받는다.

참 고 문 헌

- 1) 川本 昂 외 4인, “エポキシ複合系の電導に及ぼす界面の効果” 日本 電氣學會, 誘電・絕緣材料研究會, DEI-92-5, 1992.
- 2) 張恩來 외 3인, “有機マリックス複合材料の誘電特性に及ぼす線熙査の影響” 日本 電氣學會, 誘電・絶縁材料研究會, DEI-91-90, 1991.
- 3) 谷野克己 외 3인, “エポキツ樹脂・BaTiO₃複合材の誘電特性”, 日本 電氣學會, 誘電・絶縁材料研究會, DEI-90-91, 1991.
- 4) 村本谷二 외 3인, “ポリイミト薄膜の交流損失に及ぼす水分の影響” 日本 電氣學會, 誘電・絶縁材料研究會, DEI-91-110, 1991.
- 5) 朴東化 외 3명, “전기설비용 Sb₂O₃充填에폭시 경화제의 열팽창 및 전기적 특성” 照明·電氣設備學會誌 Vol. 5.No.2. 1991.
- 6) D.D.Denton et al, “Effects of Moisture Uptake on Dielectric Permittivity of Polyamide Films”. Proceedings of the 1985 International Symposium on Moisture and Humidity. pp510-512. 1985.

