

친환경 GIS Spacer용, 에폭시-나노-마이크로실리카 혼합 컴포지트의 교류 전기적, 기계적 특성

AC Electrical and Mechanical Properties of Epoxy-Nano-Microsilica Mixed Composites for Eco-Friendly GIS Spacer

박 재 준*
(Jae-Jun Park)

Abstract - In order to develop new insulating materials for GIS Spacer using environmentally friendly insulating gas, three kinds of dispersed liquid nano composites of solid epoxy /nano layered silicate filled material were prepared. And the epoxy/nano/micro silica composite was prepared by mixing epoxy/nano 3 phr dispersion/4 kinds of filler contents(40,50 ,60, 70wt%). The electrical insulation breakdown strengths of the nano and nano/micro mixed composites were evaluated by using 8 kinds of samples including the original epoxy. The mechanical tensile strength of the epoxy / nano / micro silica composite were evaluated, also. The TEM was measured to evaluate the internal structure of nano/micro composites. As a result, it was confirmed that the layered silicate nano particles was exfoliated through the process of inserting epoxy resin between silicate layers and the layers. In addition, dispersion of nano / micro silica resulted in improvement of electrical insulation breakdown strength with increase of filling amount of dense tissue with nanoparticles inserted between microparticles. In addition, the tensile strength showed a similar tendency, and as the content of microsilica filler increased, the mechanical improvement was further increased

Key Words : GIS spacer, Epoxy nano composites, Epoxy/Nano/Micro mixed composites, Electrical breakdown strength, Mechanical tensile strength

1. 서 론

중전기기인 GIS Spacer, 몰드변압기등과 같은 전력기기의 절연이나 전자장치 중 PCB (Printed Circuit Board)와 같은 장치의 절연이 고밀도 집적을 요구되어지고 있기 때문이며, 중전기기 및 전자 장치의 모듈에서도 에폭시에 의한 마이크로 콤포지트 및 나노와 마이크로가 혼합된 콤포지트의 절연이 주목받은 이유이다.

세라믹은 충분히 높은 열 전도성과 내열성을 가지고 있지만 부서지기 쉽고 고가입니다. 그들은 기계적으로는 강하고 그리고 오히려 저가라고 여겨지는 에폭시 수지로 대체 되었고 그리고 대체되는 과정입니다.

에폭시 수지에 높은 열전도성 및 높은 내열성을 얻기 위해 적절한 마이크로 미터 크기의 필러가 혼합 되어야 하지만, 이러한 마이크로크기 필러의 충전은 오히려 에폭시 수지의 절연파괴강도를 낮게 합니다. 잘 알려진 바와 같이, IGBT의 절연은 우수한 전기적 침식 저항과 전기적 트리저항을 요구하고 있고[1], 따라서 두가지 저항에 대한 마이크로 필러의 역할은 무엇인지 연구할 필요가 있다. 에폭시 수지에 과량의 마이크로 필러의 혼입은 중전기기 및 전자장치의 절연뿐만 아니라 열적, 기계적, 침식저항 그

리고 트리저항에서도 영향을 주기 때문에 자체적인 연구도 더욱 더 필요하다. 그런 성능의 향상대책으로 마이크로 콤포지트에 나노 필러의 첨가 하는 것은 일단 저하된 파괴 강도를 높이는 데 유용하다[2-6]. 다시 말해 나노 구조화된 마이크로 콤포지트는 이전 논문에서 입증된 파괴 강도의 우수성에대한 특성을 고려할 필요가 있다[2].

그러나 중요한 것은 나노입자가 충전된 복합재료의 파괴 강도는 복합 재료에 나노 필러의 분산과 밀접한 관련이 있다. 이 논문에서는 중전기기 절연 및 전력 전자 장치의 전기 절연과 관련된 문제의 관점에 중점을 두고 연구하였다. 가령, 나노층상실리케이트와 같은 나노필러가 실리카에 첨가하는 것은 에폭시/마이크로 실리카보다 전계강도가 증가하는 것은 이미 알려져 있다[7]. EVA 그리고 PP 절연파괴 강도가 나노층상실리케이트의 함량이 증가함에 따라 증가하는 것은 이미 밝혀졌다[8].

일부 연구자들은 유전과 절연특성이 나노 필러의 낮은 함량을 첨가함으로도 향상되었다고 보고했다[9-10]. 부분 방전 (PD)으로 인한 표면 침식 또한 집중적으로 연구되어지고 있고, 소량의 나노 필러를 첨가하면 에폭시 및 폴리에틸렌과 같은 절연물질에서 PD저항성이 엄청나게 증가할 수 있다 [11-15]. 실험 결과와 이전의 연구에 기초하여, 복합 재료의 열전도도는 마이크로 필러의 함량에 따라 증가하는 것으로 밝혀졌다[17].

본 연구에서는 이와같은 수많은 연구결과를 가져왔지만, 향후 진행되고 있는 친환경 절연가스의 개발[18-19]과 이에 대한 대책

* Corresponding Author : Dept. of Electrical and Electronic Engineering, Joongbu University, Korea.
E-mail : jjpark@joongbu.ac.kr
Received : March 2, 2018; Accepted : June 27, 2018

으로 현행 및 기존방식으로 GIS Spacer용 절연물질이 마이크로알 루미나에 집중된 절연물질을 이용하였고 역시 고가의 물질로서 재 평가를 하여야할 필요가 있을 것으로 사료된다. 그런 이유로 마이 크로 실리카에 나노입자가 혼입된 에폭시/나노/마이크로 실리카 콤포지트의 전기적, 기계적 그리고 구조적 특성을 연구하였다.

2. 실험

2.1 재료

사용되는 에폭시 수지는 Araldite B 41로서, 계기용변압기 (instrument transformers), 스위칭기어(switchgear) 성분과 같은 높은 기계적 열적 그리고 화학적 스트레스에 지배된 장치의 구조 적부분과 같은 고전압 중전기의 육내용 절연물로 이용하는 수지 이다.

점도는 120°C에서 390~520(mPa s)[DIN 5319]이며, 에폭시 함량은 2.55~2.70(equiv./kg)[ISO 3001], 밀도 1.15~1.25g/cm³ [ISO 1675], 상태는 고체상태의 에폭시 수지를 이용하였다.

경화제는 HT 903-1로서, 녹은점 범위는 79~83°C이며, 밀도는 130°C에서 1.22~1.25g/cm³[ISO 1675], 형상은 백색파우더 형태 이다. 마이크로 실리카입자 (제품명:SS0090, 시벨코코리아)의 비 표면적(specific surface area)은 0.709m²/g, 표면가중평균(surface weighted mean)은 8.462μm, 체적가중평균(volume weighted mean)은 11.792μm 그리고 입자크기의 범위는 입도분석을 통하여 1~35μm 크기를 갖으며, 중앙부분의 평균 입자크기는 10.721μm 을 갖는 마이크로 실리카를 사용하였다.

본 연구에 이용한 나노입자는 Somasif(MPE), 일본 Co-OP Chemical (주) 산으로 합성 마이카의 제품을 이용하였다. 즉, 나 노 층상실리케이트(nano layered silicate이하 NLS라 한다.)

2.2 Epoxy/NLS/Micro Silica Mixture Composites의 샘플 제조

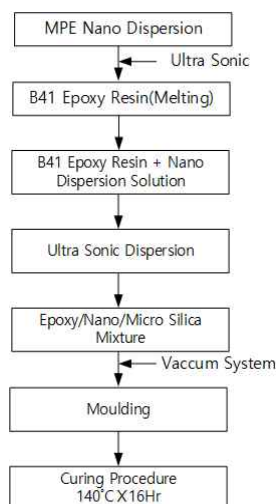


그림 1 에폭시/NLS/Micro Silica 혼합 콤포지트 제조
Fig. 1 Preparation of Epoxy/NLS/Micro Silica mixed composite

표 1 샘플목록

Table 1 Sample list

번호	원어
1	Epoxy Resin(B41)
2	Epoxy/NLS_1phr Composites
3	Epoxy/NLS_3phr Composites
4	Epoxy/NLS_5phr Composites
5	Epoxy Resin/NLS_3phr+Micro Silica_40wt% Composites
6	Epoxy Resin/NLS_3phr+Micro Silica_50wt% Composites
7	Epoxy Resin/NLS_3phr+Micro Silica_60wt% Composites
8	Epoxy Resin/NLS_3phr+Micro Silica_70wt% Composites

Epoxy Resin: Araldite(B41), Hardener:HT 903-1으로 B41(주제)와 경화제 혼합 비는 1:0.4로 함. NLS:Nano Layered Silicate, E: Epoxy Resin, MS: Micro Silica, ENM_40wt%: Epoxy/NLS_3phr+Micro Silica_40wt%으로 한다. phr: 수지 100g당 나노입자의 g 수

3. 결과 및 검토고찰

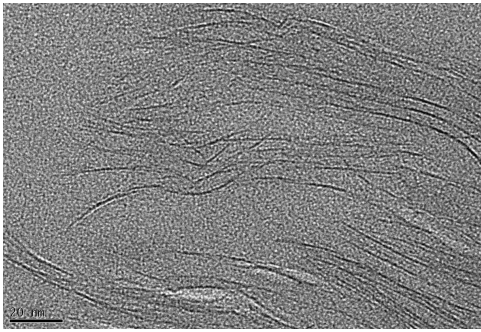
3.1 구조적인 특성 (TEM)

그림 2(a)에서는 무기물인 합성 마이카로서 나노층상실리케이 트(NLS)의 입자들이 다층구조된 무기물이다. 층과 층 사이로 에 폭시분자가 침투하여 층간사이를 부풀리게 하여 분산되는 분산초 기상태를 intercalation(삽입)이라, 층간사이가 100nm이상 또는 층과 층사이가 완전하게 떨어져 있는 상태를 박리(exfoliation) 라고 한다. 박리가 일어나게 되면, 층상실리케이트의 비표면적이 850m²/g으로서 대단히 큰 비표면적을 갖고 있기 때문에, 박 리의 발생은 입자의 수가 기하급수적으로 증식된 결과를 가져오 게 된다. 그러나 삽입정도로의 놀랄만한 나노특성은 나타내지 않 는다. 그리고 오히려 결합으로 작용되는 경우가 발생된다. 그러나 실리카와같이 뭉침현상이 나노층상실리케이트의 경우 층간사이가 약간 벌어지는 미분산 상태로 표현할 수 있을 것이다. 본 연구의 경우 그림 2(a)에서는 거의 박리되는 정도로 볼 수가 있다. 검게 약간 굵은 선들이 나노층상실리케이트로서 50~150nm의 길이를 갖으며, 두께가 1nm를 갖게 된다. 그리고 그림 2(b)의 경우는 마 이크로 입자인 마이크로실리카_60wt%와 NLS_3phr를 혼합한 결 과의 콤포지트로서, 마이크로입자와 나노층상실리케이트가 기계적 교반시 입자간 상호 전단력에 의하여 분산된 경우로 볼 수가 있 다. 마이크로 입자사이에 완전하게 박리된 상태의 나노입자가 분 산된 상태를 볼 수가 있다. 곧 마이크로입자사이에 나노입자가 촘촘하게 박혀있는 상태로서 전기적 절연내력과 기계적특성 향상 에 우수한 결과를 나타내었다[24].

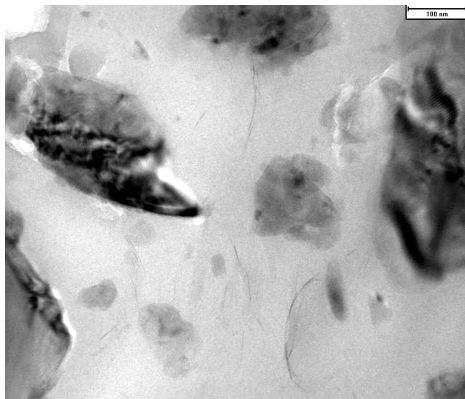
3.2 전기적 교류절연과피 특성

3.2.1 에폭시/NLS 나노콤포지트의 교류절연과피

그림 3(a), (b) 그리고 와 표 2에서는 에폭시(Araldite B41) 기 반 하에서, 나노층상실리케이트(MPE)를 충전함량 1, 3, 5phr를



(a) 에폭시/NLS_3phr 나노복합재료 TEM 영상



(b) 에폭시/NLS_3phr/Micro Silica_60wt% 복합재료 TEM 영상

그림 2 나노복합재료 및 나노-마이크로 혼합 복합재료의 TEM 영상

Fig. 2 TEM image of Nanocomposite and Nano-Micro mixed Composites

혼합하여 에폭시수지가 층상실리케이트 간에 삽입되어져, 층과 층사이(inter gallery)로 층간 삽입을 유도하여 분산시켰다. 층과 층사이 간격이 좁은 상태에서는 나노분산이 잘 이루어지지 못한 경우로서 절연능력이 양호하게 평가되지 못한다. 그러나 충분한 에폭시수지가 층간사이로 삽입되어져 100nm 이상일 때, 완전한 분산이 이루어져 나노로서의 특성을 발휘할 수가 있다. 이처럼 층간삽입과 박리의 경우 소량의 나노입자의 중량에도 불구하고 절연의 성능이 우수한 결과를 가져왔다[25]. 나노입자 충전함량 1, 3, 5phr 각각에 12개의 측정샘플을 제조하였고 그리고 교류고 전압을 1kV/s 승압속도로 일정하게 파괴 시까지 인가하였다. 측정결과는 와이בל 플롯을 이용하여 평가하였다. 표 2의 경우처럼 와이בל플롯의 경우 3개의 특성 파라미터로 표현하였다. 첫째 형상파라미터(shape parameter), 둘째 스케일파라미터(scale parameter), 셋째 B10 수명으로 특성을 평가할 수 있다. 형상파라미터는 12개 샘플의 절연파괴강도 값의 분포도로 나타낸 기울기를 의미한 것이다. 기울기가 작으면 측정자료의 분포가 넓게 된 것임을 의미한 것이며, 기울기가 크면 분포도가 매우 좁은 결과로 나타난 경우이다. 산업에서 평가시 형상파라미터가 낮으면 그 만큼 절연물의 리스크가 크다 라고 표현할 수가 있다.

또한 스케일 파라미터는 누적확률퍼센트 63.2%의 교점에서 X

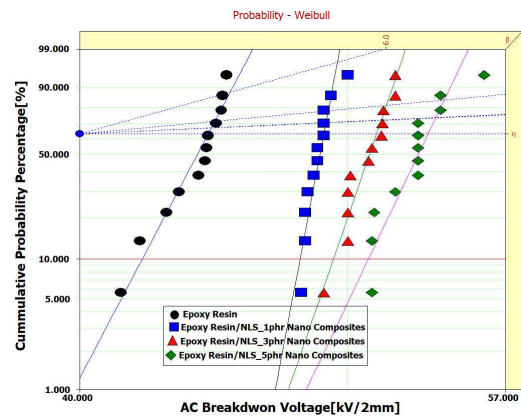
축에서 나타난 결과 값을 스케일파라미터라 한다.

그리고 B10 수명은 누적확률 퍼센트 10%지점의 교점에서 X 축의 값을 나타낸 것이다. 이 파라미터는 중전기 산업에서 매우 중요한 파라미터로서 12개 샘플 중 다수의 개수는 양호한 절연 값을 갖고 있지만, 2~3개 정도가 매우 낮은 결과를 얻을 때에는 중전기기의 절연에 치명적인 결과를 가져와 결국 중전기기 전체가 불능화 되는 결과를 가져오기 때문에 중요한 것이다. 결

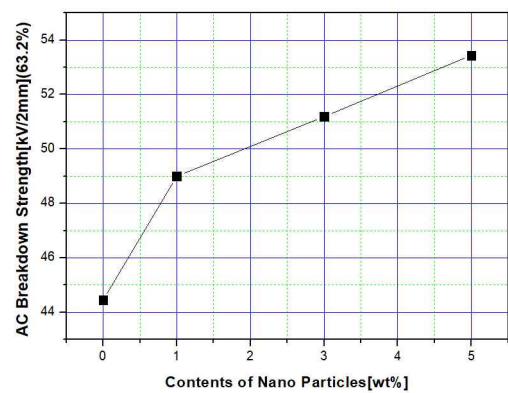
표 2 그림 3(a)에 대한 와이בל플롯의 특성값

Table 2 Properties value of weibull plot for Fig. 3(a)

Types of Samples	Shape Parameter	Scale Parameter [kV]	B10 Life [kV]	Note
Epoxy/NLS_0phr	41.07	44.45	42.13	Reference
Epoxy/NLS_1phr	113.93	49.00	48.04	10.11% ↑
Epoxy/NLS_3phr	62.84	51.19	49.39	15.16% ↑
Epoxy/NLS_5phr	45.35	53.44	50.85	20.08% ↑



(a) Weibull plot for AC insulation breakdown



(b) AC dielectric breakdown scale parameter for nano particle filling content

그림 3 에폭시/나노(NLS) 복합재료의 교류절연파괴 강도, 와이בל 플롯

Fig. 3 AC insulation breakdown strength of epoxy / nano (NLS) composite, weibull plot

표 3 그림 4(a)에 대한 와이블플롯의 특성값

Table 3 Properties value of weibull plot for Fig. 4(a)

Types of Samples	Shape Parameter	Scale Parameter [kV]	B10 Life [kV]
Epoxy Resin	41.07	44.45	42.13
Epoxy/NLS_3phr+MS_40wt%	41.18	51.49	48.77
Epoxy/NLS_3phr+MS_50wt%	36.21	53.07	49.88
Epoxy/NLS_3phr+MS_60wt%	29.56	54.41	50.45
Epoxy/NLS_3phr+MS_70wt%	50.45	55.93	53.50

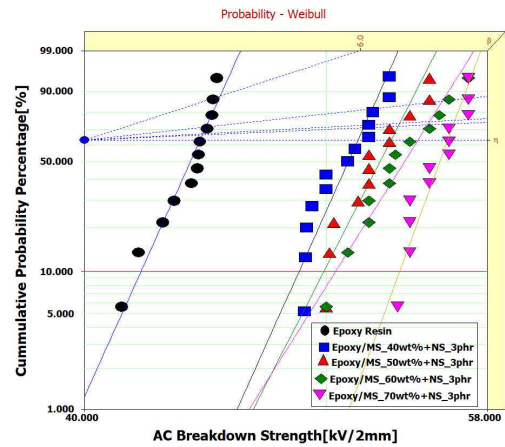
과적으로 에폭시/나노 복합체의 실험결과인 그림 3와 표 2에서, NLS 충전함량 증가에 따라 교류절연과도 결과가 증가하는 경향을 나타내었다. 또한 원형에폭시 절연과도값을 기준으로 할 때, 1 phr 충전함량의 나노복합체 경우 10.11% 성능이 향상되었고, 3phr의 충전함량인 경우 15.16% 그리고 5phr의 경우 20.08%의 향상을 나타내었다. 이유는 다음과 같다.

나노입자의 비표면적은 마이크로입자에 비하여 상대적으로 크다. 그러나 나노입자의 가장 큰 장점은 이러한 비표면적이 큰 경우 입자의 분산정도에 따라 큰 장점이 될 수 있고 상대적으로 분산이 되어지지 못할 때는 큰 단점으로 작용하게 된다. 본 연구에서는 그림 2(a)에서 보여준 바처럼 나노충상실리케이트의 분산은 다른 실리카 및 알루미늄과 같은 분산된 결과와는 다르다. 나노충상실리케이트는 유기화된 다층구조로된 형상으로 존재하지만 다층구조로된 층간사이로 에폭시 분자가 삽입되어져 층간 간격이 넓혀지게 될 때, 나노입자로서 효과를 나타내게 된다. 그러나 층간사이의 에폭시 삽입이 잘 이루어지지 못한 경우 나노입자의 뭉침의 현상을 나타내게 된다. 실험 결과 층간삽입된 에폭시 분자가 층간 사이간격을 매우 크게 하거나 또는 층과 층 사이간격을 벗어나 서로 떨어져나가는 박리의 현상을 완전한 분산이라 말할 수 있다. 이러한 나노충상실리케이트가 박리된 경우와 에폭시의 삽입의 정도가 크게 되어져 양호한 삽입과 박리가 이루어진 결과로 사료된다. 그런 이유로 나노입자의 1phr, 3phr, 5phr의 함량을 에폭시에 충전시켜 분산된 결과에 의하여 과량의 나노입자수가 증가되어져 한정된 에폭시수지 내에서 균질하게 층과 층사이 간격이 크게 부풀려져 배열을 이루게 되어졌다. 충전 함량이 증가할수록 입자 수는 기하급수적으로 증가하게 된다. 그 결과 교류절연과도 시 하전입자의 주입과 내제된 전하들의 이동이 제약을 받게되므로서 전하의 이동경로가 원형인 에폭시의 경우 이동의 제약이 약하고 점차로 나노충상실리케이트수가 많아지면 계면을 따라 이동되는 전하의 어려움이 더욱더 가중되어 진다. 즉, 절연의 저항성이 더욱더 크게 되어지는 결과로 사료된다[22-23].

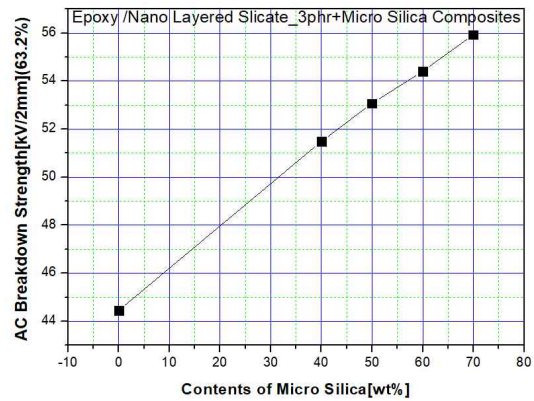
3.2.2 에폭시/NLS+MS 혼합 복합체의 교류절연과도

그림 4와 표 3에서는 4종류의 에폭시기반 NLS_3phr을 에폭시 수지에 충전시켜 완전한 박리를 유도하였다. 분산된 NLS_3phr 액상 복합체에 마이크로 실리카를 40, 50, 60, 70wt% 충전하여 혼합하였고 그리고 경화조건 140°C×16hr동안 경화 후 데시케이터에 보관하였고 필요시 샘플로 사용하였다. NLS_3phr에 마이

크로 실리카입자를 혼합하여 기계적고반시 과량의 충전된 마이크로 입자와 나노입자의 전단력에 의하여 미 박리된 부분의 입자들도 완전한 박리를 가져오는 원인이 되어 그림 2(b)의 경우처럼 완전하게 입자가 분산되는 나노/마이크로 혼합 복합체의 제조가 가능하게된 것이다. 4종류 샘플에 교류전압을 절연이 파괴될 때 까지 인가하였고 그리고 그 결과 와이블 플롯의 결과는 그림 3(a)에서 나타내었고 그리고 와이블 플롯의 특성파라미터인 스케일파라미터(63.2%) 결과를 그림 4(b)에 나타내었다. 또한 와이블 플롯된 결과의 3가지 특성 파라미터 즉, 형상파라미터, 스케일파라미터(63.2%) 그리고 B10 수명의 특성파라미터의 결과를 표 3에서 나타내었다. 이상의 그림 4(a)(b)와 표 3의 결과를 종합하여 볼 때, 나노입자 NLS의 함량을 3phr로 일정하게하고 그리고 마이크로 실리카의 충전함량을 40, 50, 60, 70wt% 증가된 복합체의 교류절연과도 강도는 충전함량 증가에 따라 증가된 경향을 나타내었고 그리고 형상파라미터의 결과도 대단히 높은 기율기를



(a) Weibull plot for AC insulation breakdown



(b) Scale parameter of AC insulation breakdown strength for micro silica filling content

그림 4 에폭시/나노(NLS)+MS 복합체의 교류절연과도 강도, 와이블 플롯

Fig. 4 AC insulation breakdown strength of epoxy / nano (NLS)+MS composite, weibull plot

나타내었기에 B10 수명의 결과도 스케일파라미터의 결과와 큰 차이가 없음을 확인하였다. 이 결과의 성능향상은 원형에폭시수지를 기준으로 할 때 40wt%의 경우 15.9%의 향상, 50wt%의 경우 19.39%의 향상, 60wt%의 경우 22.4% 향상 그리고 70wt%의 경우 25.82%의 높은 절연파괴 강도의 특성 향상을 보여주었다. 이처럼 마이크로 실리카 충전함량 증가에 대한 절연파괴 강도의 향상이 거의 비례성을 갖는 이유는 다음과 같다.

에폭시/나노층상실리케이트/마이크로실리카 복합체의 내부 구조는 그림 2(b)에서 보여준 바처럼 마이크로 실리카사이로 나노입자가 존재하는 구조이다. 마이크로실리카 사이나노층상실리케이트의 경우 입자와 입자사이가 완전히 떨어져 나가는 분산의 상태 즉, 박리된 상태로 볼 수 있다. 조직의 치밀성이 더욱더 강하게 된 구조가 된 것이다. 또한 나노층상실리케이트가 박리가 되면 입자의 두께가 1nm로서 길이가 50~150nm를 갖는 형상으로 에폭시 수지와 나노입자간 계면의 결합력 즉, Tanaka[16] 3층 모델에 의하여 한층 강화가 이루어지고 또한 에폭시 OH와 마이크로 실리카의 OH기가 수소결합을 갖게 된다. 그런 이유로 상호 결합력이 우수한 결과를 가져오게 된다. 그 결과 부분방전 저항성의 경우 침식이 어려워지고, 유리전이온도의 향상을 가져오게 된다. 더불어 기계적인 특성의 향상을 가져오게 된다[26],[20-23].

교류 절연파괴의 경우 마이크로 실리카와 에폭시사이 계면 결합력이 증가되어져 전하의 이동이 어렵게 되어지고 더불어 나노 입자와 에폭시사이 역시 3층 모델에 의해서 또한 계면의 강화로 전하의 이동이 에폭시/나노층상실리케이트 복합체 보다 더욱더 강화된 저항성을 갖게 되는 결과를 가져온 결과로 사료된다.

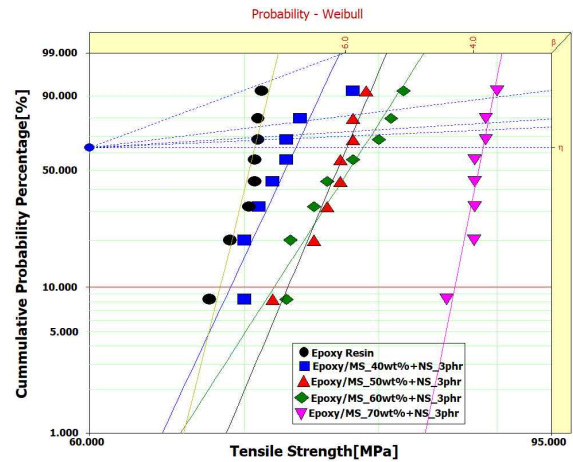
3.3 기계적 인장강도 특성

그림 5와 표 4에서는 에폭시/나노(NLS)/마이크로실리카 복합체의 기계적 인장강도를 평가하기 위하여 4종류의 샘플을 제조하였다. 나노입자의 충전함량은 3phr로 일정하게 분산시킨 액상 복합체에 마이크로실리카 충전함량 40,50,60,

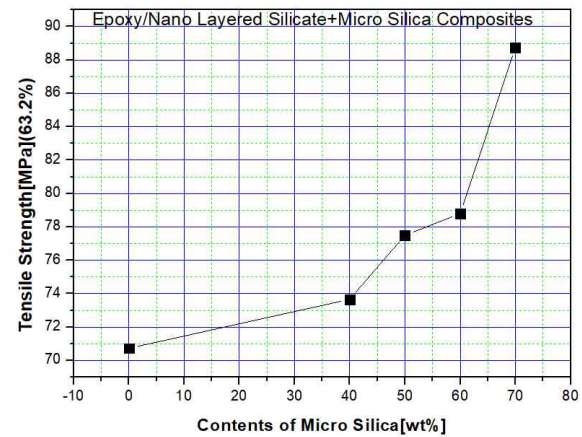
70wt%을 혼합하여 제조된 에폭시/나노/마이크로 복합체의 기계적 인장강도를 측정하였다. 측정결과 복합체 내부의 조직을 확인하기 위하여 TEM의 촬영을 실시하였고 그결과 마이크로 입자 사이로 층상실리케이트 나노입자가 박리된 상태로 균질 분산되어진 복합체임을 알 수 있었다.

기계적 인장강도의 측정은 측정시편의 양단을 붙잡고 cross-head speed가 10 mm/min의 일정한 속도로 인장하중을 가하는 만능시험기를 이용하여 수행하였다. 결과에서 마이크로실리카 충전함량 증가에따라 기계적 인장강도는 증가하였고 그리고 형상파라미터도 대단히 높은 결과로서 측정된 결과의 자료가 균질도가 매우 높은 상태임을 알 수 있었다. 성능향상으로서, 원형에폭시수지를 기준으로 할 때 ENM_40wt%의 경우 기계적인인장강도 성능이 4.15% 향상을 가져왔고, ENM_50wt%의 경우 9.57% 성능향상, ENM_60wt%의 경우 11.4% 성능향상 그리고 ENM_70wt%의 경우 25.47% 기계적 인장강도의 성능이 향상되었다. 그 결과에 대한 이유로서 다음과 같이 몇 가지로 설명할 수 있다.

첫째, 나노/마이크로 실리카의 분산능력
전기적 절연파괴의 결과에서처럼 마이크로실리카의 충전함량 증가에 따라 절연파괴강도가 증가되는 결과를 나타내었고 그리고



(a) Weibull plot for Mechanical Tensile Strength



(b) Scale parameter of Tensile Strength for micro silica filling content

그림 5 에폭시/나노(NLS)+MS 복합체의 기계적 인장강도, 와이블 플롯

Fig. 5 Mechanical Tensile Strength of epoxy /nano(NLS) +MS composite, weibull plot

표 4 그림 5(a)에 대한 와이이블플롯의 특성값

Table 4 Properties value of weibull plot for Fig. 5(a)

Types of Samples	Shape Parameter	Scale Parameter [MPa]	B10 Life [MPa]
Epoxy Resin	65.09	70.73	68.31
Epoxy/NLS_3phr+40wt%	34.64	73.67	69.04
Epoxy/NLS_3phr+50wt%	38.41	77.50	73.11
Epoxy/NLS_3phr+60wt%	25.32	78.80	72.09
Epoxy/NLS_3phr+70wt%	80.45	88.75	86.29

그와 유사한 경향으로 기계적 인장강도의 결과를 얻게 되었다. 이처럼 나노충상실리케이트의 함량은 3phr로서 에폭시수지에 분산된 상태에 마이크로 실리카 충전재를 40~70wt% 충전 분산된 콤포지트이다. 기계적인장강도의 특성은 결합의 존재 마이크로 보이드 및 나노 보이드 그리고 이물질 등에 의해 큰 영향을 주어지게 된다. 더불어 나노입자의 분산능력에 따라 결과를 예측할 수 있다. 즉, 나노입자의 뭉침 현상은 보이드와 같은 큰 영향을 주게 되어 인장강도의 특성 저하를 가져오게 되고 그리고 유리전이온도의 저하 또는 열팽창계수의 증가 등 여러 가지 현상이 복합적으로 발생하는 결과를 가져온다. 그러나 본 연구의 나노/마이크로 실리카의 분산 상태를 볼 때 균질한 분산과 나노충상실리케이트의 삽입이 매우커서 층간거리가 크게 벌어지는 결과 또는 충상실리케이트들의 박리의 결과를 가져왔다. 이와 같은 나노입자와 마이크로실리카사이 균질한 분산의 결과에 의하여 마이크로 실리카의 충전함량 증가에 증가되는 결과를 얻게 된 것으로 사료된다. 더욱이 70wt%의 과대한 충전함량으로 더욱더 인장강도가 수직적인 증가결과는 입자들 간의 균질성에 큰 영향을 주는 것이다.

둘째, 에폭시/나노충상실리케이트와의 계면과 에폭시/마이크로 실리카의 수소결합에 의한 계면강화의 결과로 사료된다[20][24]. 앞서 서술된 절연파괴강도에서도 충전함량 증가에따라 증가되는 절연파괴 강도의 원인도 기계적 인장강도와 유사한 경향으로 마이크로 실리카와 에폭시 사이 계면은 상호간 결합력이 증가되는 원인으로 수소결합에 의한 결과로 사료되며, 나노충상실리케이트와 에폭시 사이 계면도 무한장 넓은 계면의 효과의결과로 귀결되는 결과로 사료된다.

4. 결 론

본 논문에서 에폭시/나노(NLS)/마이크로 실리카 혼합된 콤포지트 와 에폭시/나노(NLS)입자가 분산된 나노콤포지트 를 제조하였다. 전체 8종류 샘플에 대한 전기적 절연파괴 강도와 기계적 인장강도를 평가하였다.

그리고 충상실리케이트 나노콤포지트의 분산정도의 평가와 나노/마이크로실리카 혼합 콤포지트 내의 나노와 마이크로 실리카의 내부조직을 확인하기 위하여 TEM의 영상을 관찰하였다. 그 결과 다음과 같은 결론을 얻게 되었다.

4.1 구조적 특성(TEM)

에폭시/나노충상실리케이트 콤포지트 내에 충상실리케이트의 분산정도를 평가하기 위하여 TEM 측정 결과 완전한 박리보다는 부분적인 박리와 삽입이 혼재된 상태로 분산되었으며 양호한 분산이 이루어짐을 알 수 있었다. 그리고 나노/마이크로 실리카의 혼합에 의한 콤포지트의 경우, 마이크로실리카와 나노충상실리케이트의 혼합으로 인하여 교반될 때 기계적 전단응력이 부분적인 박리된 경우까지 완전히 박리된 경우의 콤포지트를 개발하였다.

4.2 전기적 교류 절연파괴 특성

에폭시/나노 충상실리케이트 입자가 분산된 나노콤포지트의 충전 함량변화에 따른 교류전기적 절연파괴 특성에서, 나노입자의 충전함량이 증가할수록 전기적 절연파괴 강도가 증가하였고 그리고 에폭시/나노/마이크로실리카의 혼합에 의한 콤포지트의 경우 마이크로입자의 충전함량 증가에 따라 절연파괴강도 역시 충전함량 증가에 따라 증가하는 결과를 얻었다. 이는 나노특성상 입자의 분산정도 즉, 충상실리케이트의 경우 박리가 이루어지지 못하면 절연파괴 및 여러 특성이 오히려 저하되거나 미미한 상승을 가져오게 된다. 그러나 나노입자의 층과 층사이의 간격이 크게 벌어지는 경우(100nm이상인 경우 박리된 경우로 본다) 또는 완전한 박리가 이루어지면 분산된 입자들이 전하의 이동을 억제하는 효과로서 절연파괴강도가 향상된 것으로 사료된다.

4.3 기계적 인장강도 특성

에폭시/나노/마이크로 실리카 혼합 콤포지트의 기계적인장강도의 경우, 마이크로 실리카의 충전함량 증가에 따라 증가하는 결과를 나타내었고 그리고 충전함량이 더욱더 증가될수록(70wt%) 인장강도 가장 높은 기계적 특성을 얻었다. 나노/마이크로 실리카의 혼합에 의한 콤포지트에서 나노입자의 완전히 박리된 입자의 크기가 1×50~150nm의 크기로서 비표면적이 매우 크고 분산된 입자와 에폭시수지 계면의 결합력이 크게 증가되어 결국 기계적 인장강도의 특성이 향상된 결과로 사료된다.

감사의 글

본 연구는 2018년도 중부대학교 교내연구비 지원에 의하여 이루어진 연구로서, 관계부처에 감사드립니다.

References

- [1] J.-H. Fabian, S. Hartmann and A. Hamidi, "Analysis of insulation failure modes in high power IGBT modules", *Industry Applications Conf., Fourtieth IAS Annual Meeting*, Vol. 2, pp. 799-805, 2005.
- [2] Z. Li, K. Okamoto, Y. Ohki, T. Tanaka, "Effects of Nano-Filler Addition on Partial Discharge Resistance and Dielectric Breakdown Strength of MicroAl₂O₃/Epoxy Composite", *IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.*, Vol. 17, pp. 654-663, 2010.
- [3] T. Kikuchi, T. Shikano, H. Kawafuji, T. Ueda, K. Tada and H. Shiota, "Insulation resin sheet for power modules of transfer-molded type package", *Mitsubishi Electric Technical Rev.*, Vol. 81, No. 5, pp. 365-368, 2007 (in Japanese).

- [4] S. Singha and M. J. Thomas, "Dielectric Properties of Epoxy Nanocomposites", *IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.*, Vol. 15, pp. 12-23, 2008.
- [5] S. Singha and M. J. Thomas, "Influence of Filler Loading on Dielectric Properties of Epoxy-ZnO Nanocomposites", *IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.*, Vol. 16, pp. 531-542, 2009.
- [6] Y. Yin, X. Dong, Z. Li and X. Li, "The Effect of Electrically Prestressing on DC Breakdown Strength in the Nanocomposite of Low-density Polyethylene / nano-SiO_x", *IEEE Intern. Conf. Solid Dielectr.*, pp. 372-376, 2007.
- [7] M. Kozako, N. Fuse, Y. Ohki, T. Okamoto and T. Tanaka, "Surface Degradation of Polyamide Nanocomposites Caused by Partial Discharges Using IEC (b) Electrodes", *IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.*, Vol. 11, pp. 833-839, 2004.
- [8] G. C. Montanari, D. Fabiani, F. Palmieri, D. Kaempfer, R. Thomann and R. Mulhaupt, "Modification of electrical properties and performance of EVA and PP insulation through nanocomposite by organophilic silicates", *IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.*, Vol. 11, pp. 754-762, 2004.
- [9] T. Tanaka, G. C. Montanari and R. Mulhaupt, "Polymer Nanocomposites as Dielectrics and Electrical Insulation - perspectives for Processing Technologies, Material Characterization and Future Applications", *IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.*, Vol. 11, pp. 763-784, 2004.
- [10] M. Roy, J. K. Nelson, R. K. Maccrone, L. S. Schandler, C.W. Reed, R. Keefe and W. Zenger, "Polymer Nanocomposite Dielectrics- The Role of the interface", *IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.*, Vol. 12, pp. 629-643, 2005.
- [11] N. Fuse, Y. Ohki, M. Kozako and T. Tanaka, "Possible Mechanisms of Superior Resistance of Polyamide Nanocomposites to Partial Discharges and Plasma", *IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.*, Vol. 15, pp.161-169, 2008.
- [12] M. Kozako, S. Yamano, R. Kido, Y. Ohki, M. Kohtoh, S. Okabe and T. Tanaka, "Preparation and Preliminary Characteristic Evaluation of Epoxy/Alumina Nanocomposites", *Intern. Sympos. Electr. Insulating Materials (ISEIM)*, pp. 231-234, 2005.
- [13] T. Imai, F. Sawa, T. Nakano, T. Ozaki, T. Shimizu, M. Kozako and T. Tanaka, "Insulation Properties of Nano- and Micro-Filler Mixture Composite", *IEEE Conf. Electr. Insul. Dielectr. Phenomena (CEIDP)*, pp.171-174, 2005.
- [14] T. Tanaka, T. Yazawa, Y. Ohki, M. Ochi, M. Hara and T. Imai, "Frequency Accelerated Partial Discharge Resistance of Epoxy/Clay Nanocomposite Prepared by Newly Developed Organic Modification and Solubilization Methods", *IEEE Intern. Conf. Solid Dielectr. (ICSD)*, pp. 337-340, 2007.
- [15] T. Tanaka, Y. Ohki, M. Ochi, M. Hara and T. Imai, "Enhanced Partial Discharge Resistance of Epoxy/Clay Nanocomposite Prepared by Newly Developed Organic Modification and Solubilization Methods", *IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.*, Vol. 15, pp. 81-89, 2008.
- [16] T. Tanaka, "Interpretation of Several Key Phenomena Peculiar to Nano Dielectrics in terms of a Multi-core Model", *IEEE Conf. Electr. Insul. Dielectr. Phenomena (CEIDP)*, pp. 298-301, 2006.
- [17] H. Ishida and S. Rimdusit, "Very high thermal conductivity obtained by boron nitride-filled poly-benzoxazine Thermochim", *ACTA*, Vol. 320, pp. 177-186, 1998.
- [18] H. E. Nechmi, A. Beroual, A. Girodet and P. Vinson, "Fluoronitriles/CO₂ Gas Mixture as Promising Substitute to SF₆ for Insulation in High Voltage Applications", *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, Vol. 23, No. 5, pp. 2587-2593, October 2016.
- [19] D.H. Jeong, S.Y. Woo, K.B. Seo, J.H. Kim, "A study of the insulation property for development of eco-friendly GIS under SF₆/N₂ mixtures", *2011 1st International Conference on Electric Power Equipment-Switching Technology-Xi'an-China*, pp.168-171, 2011
- [20] Jae-Jun Park and Jae-Young Lee, "Effect of Epoxy-modified Silicone-treated Micro-/NanoSilicas on the Electrical Breakdown Strength of Epoxy/Silica Composites", *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, Vol. 24, No. 6, pp. 3794-3800, December 2017
- [21] Jae-Jun Park and Jae-Young Lee, "Surface Modification of Nanosilica with Epoxy-Terminated Silicone and Its Effect on the Electrical Breakdown Strength in Epoxy/Nanosilica Nanocomposite", *Journal of Nanoscience and Nanotechnology*, Vol. 17, No. 10, pp. 7598-7602, 2017
- [22] Jae-Jun Park and Jae-Young Lee, "Effect of nano-sized layered silicate on AC electrical treeing behavior of epoxy/layered silicate nanocomposite in needle-plate electrodes", *Materials Chemistry and Physics*, Vol. 141 pp. 776-780, 2013.
- [23] Jae-Jun Park and Jae-Young Lee, "AC Electrical Breakdown Phenomena of Epoxy/Layered Silicate Nanocomposite in Needle-Plate Electrodes", *Journal of Nanoscience and Nanotechnology*, Vol. 13 pp. 3377-3382, 2013.5
- [24] Jae-Jun Park et al 3, "Preparation of Epoxy/Micro-and-Nano-Composites by Electric Field Dispersion Process and Its Mechanical and Electrical Properties", *IEEE*

Transaction on Dielectrics and Electrical Insulation, Vol. 18. No. 3, pp. 667-674, 2011

- [25] Jae-Jun Park and Jae-Young Lee, "A New Dispersion Method for the Preparation of Polymer/Organoclay Nanocomposite in the Electric Fields", *IEEE TRANSACTIONS ON DIELECTRICS and Electrical Insulation*, Vol. 17. No. 5, pp. 1516-1522, 2010
- [26] Jae-jun Park, "A Study on the Partial Discharge Resistance Properties of Epoxy/Micro/Nano Alumina Composites", *The Transactions of the Korean Institute of Electrical Engineers*, Vol. 65, No. 6, pp. 1026-1031, 2016.

저 자 소 개



박재준 (Park Jae-Jun)

1985년 광운대학교 전기공학과 학사
1987년 광운대학교 전기공학과 석사
1993년 광운대학교 전기공학과 박사
1997년~현재 중부대학교 전기전자공학과 교수
E-mail: jjpark@joongbu.ac.kr