

나노실리카 충전함량 변화에 따른 EMNC의 특성연구 (1) -열적특성 중심으로-

최운식¹, 박재준^{2,a}

¹ 세한대학교 기술교육학과

² 중부대학교 전기전자공학과

Properties of EMNC according to Addition Contents Variation for Nanosilica (1) For Thermal Properties

Woon-Shik Choi¹ and Jae-Jun Park^{2,a}

¹ Department of Technology Education, Sehan University, Youngam 526-702, Korea

² Department of Electrical Electronic Engineering, Joongbu University, Geumsan 312-702, Korea

(Received August 24, 2012; Revised September 24, 2012; Accepted September 24, 2012)

Abstract: This paper focuses on thermal properties of a newly prepared composite material by nano-silica and micro-silica mixture. Nano-silica and micro-silica mixture composites were made by dispersing surface treated nano-silica(average radius: 10 nm) and micro-size silica in epoxy resin. To investigate the effects of nano-silica and micro-size silica mixture(ENMC), the glass transition temperature (T_g), coefficients of thermal expansion(CTE) and elastic modulus of DMA properties by DSC, TMA and DMA devices were measured for the ENMC according to increase nano-silica addition contents and EMC. All properties of the neat epoxy were improved by the addition of micro-silica, which was improved much further by the addition of surface treated nano-silica to the EMC system.

Keywords: DSC, TGA, DMA, CTE (coefficient of thermal expansion), EMC, ENMC

1. 서 론

나노 크기 필로로서 사용된 재료는 층상실리케이트 [1], 세라믹 나노입자 [2] 가령 SiO₂ (silica), TiO₂ (titania) 그리고 나노입자의 형태인 탄소 (carbon) [3], 그래파이트 판 (graphite sheets) [4] 그리고 카본 나노튜브 (carbon nanotubes) [5] 등이 사용되어지고 있다. 고분자에 초미립자가 보강된 콤포지트는 자동차, 우주항공, 전기 그리고 낮은 비중과 높은 마모성

뿐만 아니라 독특한 기계적, 열적 특성을 가짐으로 인하여 다른 많은 산업에 혁신적인 산업재료로 개발되어지고 있다 [6,7].

에폭시 수지는 고체절연 스위치기어 (solid insulated switchgear, SIS), 가스절연 스위치기어 (gas insulated switchgear, GIS), 몰드변압기 등, 충전기기에 필수 불가결한 재료이다. 예로서 SIS는 주요한 회로를 몰드하기 위해 그리고 GIS는 GIS 탱크 내에 내부 도체의 지지를 위한 많은 절연스페이셔에 에폭시 주물을 요구하고 있다 [8-10].

에폭시수지는 일반적으로 알루미늄 또는 동도체와 같이 낮은 열팽창을 얻기 위하여 마이크로 크기의 충전제 (filler) 즉, SiO_2 , Al_2O_3 와 같이 많은 무기물의 양을 충전시켜 사용하여왔다. Tanaka [9,11], 우리의 연구 [12]도 에폭시수지에 전기적 절연성이 우수한 소량의 충상실리케이트 나노입자를 첨가하여 분산시키는 기법 [13]을 개발하였다. 그러므로 에폭시수지에 충상실리케이트 나노입자를 분산시켜 충전한 경우 낮은 열팽창과 우수한 절연성능을 갖는 에폭시 절연 소재를 개발이 불가능하였다.

또한 최근에 마이크로/나노입자를 혼합한 연구 가령 alumina nanoparticles [14], CNT (carbon nanotubes) [15], nanosilica [16], nanoclays [17], nanotitania [18] 이 에폭시메트릭스 내에 보강제로서 관심이 고조되고 있다.

우리의 연구에서는 나노실리카 입자의 엄청난 비표면적과 입자크기가 분자보다 작은 무기물로 인하여 고분자가 계면에 밀접하게 구성되어 콤포지트 특성에 큰 영향을 주어 유리전이 온도 및 열팽창계수 그리고 탄성계수에 영향을 줄 것으로 판단하여 에폭시 수지에 나노 크기 실리카입자와 마이크로 크기 실리카입자를 혼합하여 열적특성에 관한 연구를 실시하였다. Joonmyung Choi 외 연구자들은 [19], 에폭시 기반 SiC 나노콤포지트의 열탄성 특성, 유리전이 온도 그리고 열팽창 계수와의 관계를 필러 크기 의존성을 분자 동력학 시뮬레이션을 통하여 연구하였고, 그 결과 특성이 향상된 결과를 얻었다. 고분자 나노콤포지트에 관한 여러 연구자들 [20,21]는 고분자의 전체 체적의 이동도가 나노입자들의 존재로 인하여 제약을 받기 때문에 유리전이 온도 T_g 의 증가를 보고하였다. 그리고 나노입자 표면 근처 둘러싸인 고분자가 결정적으로 이동하지 못하고 그리고 나노입자의 표면에 강하게 흡착되어 있기 때문에 기계적 강도의 향상을 가져온다. 그리하여 여러 연구들이 나노콤포지트의 입자크기 의존성에 관한 특성연구 [19]와 Sun 등 [22]의 연구자들은 마이크로실리카와 나노실리카가 에폭시 수지에 충전시켜 제조된 콤포지트에서 유리전이 온도, 열팽창계수 (CTE) 그리고 점도 등에 관하여 연구하였다. 그 결과 나노실리카는 같은 적체조건에서 점도를 증가시키고 열팽창계수를 감소하는데 마이크로실리카 보다 우위에 있음을 증명하였다. Goyal et al. [23]의 경우도 PEEK (poly ethereetherketone)에 나노와 마이크로 Al_2O_3 입자를 혼합한 콤포지트가 마이크로만 충전한 경우에 비하여

열팽창계수가 감소되었다.

본 연구에서는 Fumed 실리카를 자체적으로 표면처리하여 제조된 나노실리카의 충전함량 별 나노콤포지트에 마이크로입자를 충전한 에폭시-나노-마이크로 혼합 콤포지트를 제조하여 열적 특성인 유리전이 온도 (DSC), 열팽창계수 (TMA) 그리고 온도 변화에 따른 탄성계수 (DMA)의 특성을 연구하였다.

2. 실험 방법

2.1 재료

상업적인 DGEBA (diglycidyl ether of bisphenol A) 타입 에폭시 수지, YD-128 (Kukdo Chem. Co.)이 사용되어졌다. 그 수지의 그램당량 (equivalent weight)은 184~190이고, 점도는 25°C에서 11,500~13,500 cps이다. 경화제는 상품명으로 HN-2200 (Hitachi Chem. Co.)인 Me-THPA (3-or 4-methyl-1,2,3,6-tetrahydrophthalic anhydride)이 사용되었다. 그것은 충전기 분야에 광범위하게 사용되어진 것이다. 경화 촉진제로서 BDMA (benzyl-dimethyl amine, Kukdo Chem. Co.)가 사용되었다. 실리카 입자는 두 가지가 사용되었다. 하나는 Nanostructure & Amorphous Materials 사의 평균 입자 크기가 10 nm인 Fumed Silica제품이고, 다른 하나는 Sibelco Asia 사의 상품명 CA0020으로 평균 입자 크기가 2 μm 인 제품이다. 이들은 사용하기 전에 80°C의 진공 오븐에서 24시간 건조 후에 사용하였다.

2.2 나노입자의 표면처리

그림 1에서 fumed 실리카 나노입자를 표면 처리하는 과정을 나타내었다. 알코올 (에탄올 또는 메탄올) 50 g에 증류수 (고순도) 50 g을 1:1로 혼합한 후, 교반기 (마그네틱바)에서 교반을 실시하였다. 교반 중 Ph 측정기 센서를 담근 상태에서 초산 (acetic acid)를 소량 떨어뜨려 pH= 4.5 정도로 맞추었다. silane coupling agent는 3종류를 적용하여 실험하였다.

즉, 아민계 gamma-aminopropyltri-ethoxysilane과 gamma-aminopropyltri-methoxysilane 그리고 에폭시계 gamma-glycidoxypropyltri-methoxysilane을 사용하였다. 실란을 첨가하여 용해시킨 용액에 fumed silica 10 g을 혼합 후 초음파 (ultrasonic processor: 20 kHz)와 homogenizer (IKA)와 함께 강력한 교반을 실시하였다. 흡입장치 (suction device)에 의해 실란처

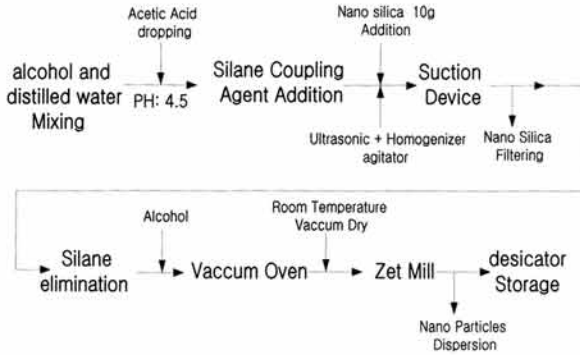


Fig. 1. Surface treatment process of fumed nanosilica.

리된 나노실리카를 필터용지로 여과하였다. 알코올로 3회 정도 수세하여 미반응 실란을 제거하였다. 진공 오븐에 넣고 실온에서 진공 건조하였다. 건식분산을 위하여 Zet Mill을 이용하여 나노입자를 분산시켰다. 그 후 데시케이터에서 진공 보관하여 사용하였다.

2.3 에폭시-나노실리카-마이크로 실리카 혼합 콤포지트 제조

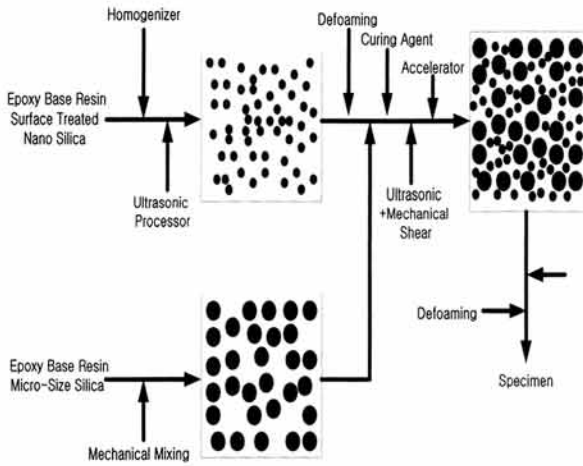


Fig. 2. Preparation Procedure of ENMC.

그림 2에서 에폭시수지에 나노실리카와 마이크로 실리카 혼합된 콤포지트의 제조과정 과정을 나타내었다. 에폭시수지에 마이크로실리카를 혼합하여 제조된 시편을 마이크로콤포지트라 (EMC) 명명하였고, 에폭시수지에 나노실리카-마이크로실리카를 혼합한 콤포지트를 ENMC라 부른다. EMC의 경우 충전함량을 25,55,60,65 wt%를 충전하여 제조하였고, ENMC의 경

우 마이크로실리카의 충전함량 65 wt%와 표면 처리된 나노실리카 첨가량 0.5, 1, 2, 3, 4, 5 phr (part per one hundred epoxy resin: 에폭시 100 g 당 함량)를 첨가하여 제조하였다. 에폭시수지에 나노입자를 넣고 homogenizer (T 25 digital ULTRA-TURRAX, ICA)를 사용하여 5,000 rpm으로 10분 간 혼합 후, 마이크로 실리카를 65 wt% 충전 시 초음파 분쇄기 초음파 분쇄기 (VC 505, Sonics & Materials Inc.)와 2마력 기계식 교반기와 조합하여 혼합하였다. 그 후 경화제 80 phr과 촉매 0.9 phr을 넣고 10분 간 유지하였다. 이 혼합물을 몰드에 주입하고, 진공 오븐에서 기포를 제거한 후 120℃×2시간 1차 경화, 2차 경화 150℃×24시간 후경화 후시편으로 사용하였다.

2.4 측정

DSC (dynamic differential scanning calorimetry) 분석은 다음과 같이 수행되어졌다. 경화된 샘플 대략 2-3 mg이 알루미늄 펜 (pan) 위에서 정확하게 무게가 측정되어지고 그리고 DSC furnace (instrument specialists incorporated, DSC infinity series, TA Instrument Ltd, USA) 안으로 적재된다. 그 때 DSC 분석이 40 ml/min 질소환경 하에서 10℃/min의 승온율로서 수행되었다. Dynamic mechanical analysis (DMA2980, TA Instrument Ltd.)는 주파수 1.0 Hz 와 10℃/min 승온율로서 전단방식으로 수행하였다. 샘플의 치수는 12.5×7.0×3.0 mm이고 공기의 제거율은 110 ml/min이었다.

CTE는 TMA (thermomechanical analyzer) 2940 analyzer (TA Instrument Co. Ltd.)을 이용하여 ASTM D696에 따라 측정하였다. 직사각형 시편을 몰드금형으로 제조하였으며 (길이: 3.13 mm), TMA 2940 분석기에서, 모든 시편은 5분 동안 -30℃에서 유지하였고 승온율 5℃/min에서 110℃까지 가열하였다. 그리고 30분 동안 그 온도를 유지하였으며, 그때 실온에서 냉각시켰다. 측정은 질소분위기에서 이루어졌다.

TMA는 열이 가해질 때 재료가 팽창하는 비율이 모든 방향으로 같다, 즉 재료가 열에 대해 등방성을 갖는다는 가정 하에 선팽창 계수를 측정하는 장치이다. 밀봉된 용기 내에서 재료를 넣고 일정 속도로 온도를 올릴 경우 재료의 부피 팽창으로 인한 압력의 변화를 측정함으로써 그 재료의 선팽창 계수를 계산한 것이다

3. 결과 및 고찰

3.1 유리전이 온도

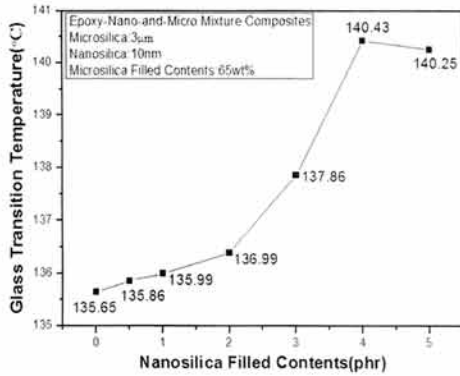


Fig. 3. DSC (T_g) analysis for EMNC.

그림 3에서는 에폭시 수지에 fumed 나노실리카 (평균입도 10 nm) 0.5, 1, 2, 3, 4, 5 phr과 평균입도 2 μm 마이크로 실리카 65 wt% 충전하여 혼합한 콤포지트에 대한 유리전이 온도를 측정된 결과이다. 본 논문에서 나타내지 못하였지만, 원형 에폭시수지의 유리전이 온도는 126.83°C이었고, 마이크로콤포지트 (EMC)의 경우 유리전이온도는 135.6°C로 측정되었다. 나노입자의 충전량을 0.5~5 phr로 증가할수록 ENMC에 대한 유리전이 온도의 증가를 가져왔다. 그리고 4 phr (140.43°C) 보다 5 phr (140.25°C) 경우 약간의 유리전이 온도 감소를 가져왔다. 원형의 에폭시 수지에 비하여 ENMC의 나노입자 4 phr 유리전이 온도는 13.42°C 향상을 가져왔다.

본 연구자는 유리전이 온도가 증가되는 이유를 볼 때, 마이크로 입자 또는 나노 입자가 단독으로 영향을 미치지 보다는 큰 입자와 작은 입자의 시너지 작용에 의한 것으로 판단된다. 즉, 나노입자가 마이크로 입자사이로 조밀하게 충전되어 들어감으로써 입자 사이의 유통성을 방해하고, 고분자 사슬의 anchoring 효과를 크게 하기 때문으로 사료된다 [19]. Victor M. F. Evora, Arun Shukla [24]는 유리전이 온도의 증가는 나노입자와 매트릭스 상호간의 작용의 결과로 인하여 TiO₂ segmental 운동에 제한적인 영향에 관계되어진다. 또 다른 연구자는 이동도가 제한되어진 것은 필러 표면의 상호작용에 기인하여 고분자/필러 계면에 근접한 고분자 체인이 할당된 완화를 더욱더 느

리게 하기 때문으로 보고하고 있다 [25]. 고분자 나노 콤포지트의 연구에서 여러 연구자들이 유리전이 온도 증가는 고분자의 전체 체적이 나노입자의 존재로 인하여 제약받기 때문으로 보고하고 있다 [20,21].

3.2 열팽창계수 특성 (coefficient of thermal expansion, CTE)

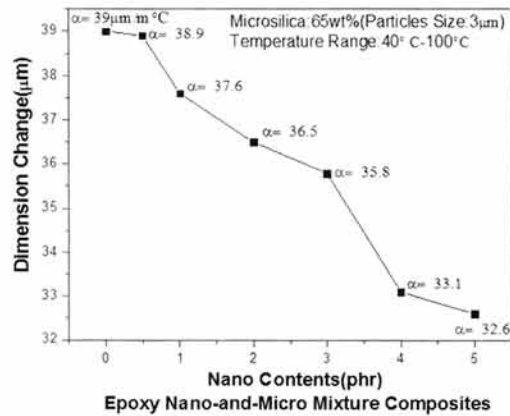


Fig 4. The coefficient of thermal expansion analysis for ENMC.

그림 4에서는 에폭시 수지에 fumed 나노실리카 (평균입도 10 nm) 0.5, 1, 2, 3, 4, 5 phr과 평균입도 2 μm 마이크로 실리카 65 wt% 충전하여 혼합한 콤포지트에 대한 CTE의 측정 결과를 나타내었다.

EMC의 경우 에폭시 수지에 마이크로 입자를 65 wt% 충전한 경우 CTE의 결과 39 μm/m°C이었다. 그러나 마이크로 충전량 65 wt%에 나노입자 0.5~5 phr로 첨가량을 증가시켜 제조된 ENMC의 CTE (32.6 μm/m°C)로서 EMC보다 ENMC의 경우 6.4 μm/m°C 감소되는 결과를 얻었다. 일반적으로 고압충전기기의 경우 에폭시 수지에 과도하게 무기물을 충전 (65~80 wt%)하는 이유는 알루미늄이나 동도체와 같은 금속물질이 충전기기 제조 시 에폭시-무기물로 충전된 상태이면서, 전류에 의해 도체의 내부에서 발생하는 열과 외부환경에 의한 열 때문에 여러 가지 열사이클에 노출되어 있는 상태이다. 이런 열 변화에 따라 팽창과 수축이 반복되면서 피로가 누적되어진다. 그 결과 나노실리카 및 마이크로실리카의 계면에 응력이 집중되어 이 영역에서부터 크랙이 발생하고 또는 금속과 고분자 간 계면에 크랙이 발생되면 전계

에 영향을 받아 크랙 부분에 부분방전에 의한 열화 원인이 되어, 결국은 절연의 파괴를 가져오게 된다. 그런 이유로 열팽창계수는 충전기기를 상용화하는데 있어 매우 중요한 요소로 되어있다 [11,26]. 이는 Huntsman 사의 충전기기용 몰드변압기 열팽창계수 Spec. ($34\sim 40\ \mu\text{m}/\text{m}^\circ\text{C}$) 범위 밖에 존재하는 열특성을 갖고 있다. 즉, 상용화에 필요한 조건을 말한다. 그리고 나노입자가 균질한 분산이 잘 이루어질 때, 더욱더 열팽창계수는 낮아지게 되며, 나노입자의 응집현상이 크게 되면 응집된 부분에 열적팽창과 수축이 반복되어져 열적 결합으로 작용하게 된다. 이러한 특성은 기계적 특성뿐만 아니라, 전기적 특성 또는 유리전이 온도에도 영향을 주게 되어 전반적으로 물성에 큰 악영향을 끼치게 된다.

CTE에 관한 연구에서 SiC 나노복합체가 에폭시 매트릭스 내로 주입되어져 순수 에폭시 매트릭스의 CTE는 유리 상태에서 20% 이상 감소되어졌고 그리고 더욱이 나노복합체의 CTE는 나노입자 반경의 크기가 작을수록 CTE가 감소되어졌다. 나노입자가 작으면 작을수록 순수에폭시 매트릭스의 CTE보다 감소율이 더욱 크고 그리고 마이크로 입자의 경우보다 오히려 감소율이 낮다 [19]. 이와 같은 원인은 나노입자가 더욱 더 작아짐으로써 마이크로입자에 비하여 표면적이 훨씬 크게 된다. 그리고 고분자 매트릭스에 에워싸고 있는 수많은 원자들이 깊게 뿌리내리고 있기 때문이다. 이런 구조는 거시적으로 CTE의 결과에서 감소된 결과로 나타난다. 또한 다른 연구자들은 고분자기반 입자크기에 대한 CTE 효과는 유리상태에서 cyanate ester의 CTE가 40 nm fumed silica의 경우 27% 더욱 낮아졌으며, 더욱 더 놀랄 만한 감소는 12 nm fumed silica에서 관찰되어졌다 [27].

3.3 동적 기계적 (DMA) 특성

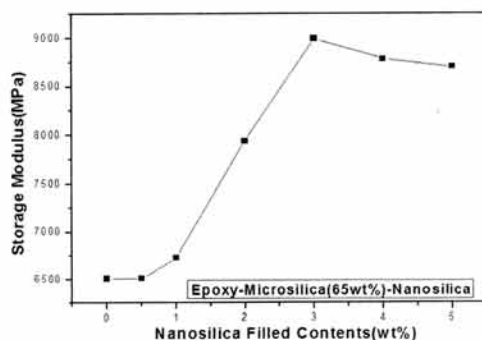


Fig. 5. DMA elastic modulus analysis for ENMC.

그림 5에서는 측정 온도범위 상온 $\sim 180^\circ\text{C}$ 에서 측정된 DMA 측정 결과 유리 상태에서 탄성계수 (storage modulus)를 나타낸 결과이다. 측정샘플은 에폭시 매트릭스에 마이크로실리카 65 wt%에 나노실리카 0.5, 1, 2, 3, 4, 5 phr를 첨가한 콤포지트로서 ENMC의 DMA 특성을 나타내었다. 나노실리카의 충전 함량이 증가할수록 탄성계수는 증가하였다. 그러나 나노실리카 3 phr를 경계로 감소되는 결과를 나타내었다.

에폭시수지에 65 wt% 도입된 계의 유리상에서 저장 탄성율은 6,000~6,500 MPa 정도이고, 120°C 에서 유리상으로부터 고무상으로 전이가 일어나면서 그 값이 급격하게 감소하였으며, 140°C 이후로는 고무상에서의 탄성계수는 거의 zero에 가까운 값을 나타내었다. 본 그림에서 나타내지는 않았지만 유리상에서 고무상으로 전이가 일어날 때 손실 탄성율은 급격하게 증가하다가 감소하였다. 나노 입자가 도입된 계의 유리상에서 저장 탄성율은 마이크로 입자만 도입된 계의 값보다 증가하였고, $\tan \delta$ 피크의 온도는 약간 고온에서 나타났다. 또한, 나노 입자가 3 phr 투입되었을 때가 저장 탄성율이 최대값을 나타내었다. Evon Foo 등 [28] 여러 연구자들은 마이크로실리카와 나노실리카를 이용한 박막필름의 기계적 열적특성에서 나노실리카 박막필름 콤포지트에서 2 wt%가 CTE가 가장 낮은 결과를 얻었다. 더욱 더 높은 표면적을 가지므로 나노실리카는 마이크로실리카와 비교하여 더욱 낮은 중량비로서 실제적인 퍼포먼스를 얻을 수 있다고 보고하였다. SiC나노 콤포지트에서 고무상태에서부터 유리상태까지 유리전이 영역에서 나노복합체의 탄성계수는 극적으로 증가되어졌다. 그렇지만 나노복합체의 입자크기의 효과는 고무상태에서 감소되어지는 경향을 얻었다. 이유는 에폭시 분자들이 계면에서 덜 국한되어지기 때문이며, 그래서 다른 영역에서의 분자들은 높은 온도에서 개개 원자의 운동 에너지가 증가되는 결과로 보고되었다 [19].

본 연구자는 마이크로 실리카만 투입한 계에 비해 나노 실리카를 같이 투입한 계의 저장 탄성율이 크게 높아진 것은 그림 3의 유리전이 온도 결과에서 설명하였듯이 나노 입자가 마이크로 입자 사이에 침투해 들어감으로써 충전율이 증가하였고, 이로 인해서 에폭시 고분자 사슬의 유동성이 크게 제약을 받기 때문인 것으로 판단된다.

4. 결론

표면 처리된 Fumed 나노실리카 (평균입도 10 nm) 첨가량을 0.5, 1, 2, 3, 4, 5로 증가하여 에폭시수지에 분산시키고, 마이크로실리카를 65 wt% 혼합한 에폭시-나노실리카-마이크로실리카 혼합 콤포지트 (ENMC)를 제조하였다. 그 결과 열적 특성인 유리전이 온도, 열팽창계수 그리고 탄성계수 연구 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 유리전이온도

ENMC의 경우 fumed 나노 실리카입자 첨가량 증가에 따른 유리전이 온도 특성으로 원형에폭시의 경우 126.3℃의 유리전이 온도를 나타내었으며, 나노입자의 첨가량을 4 phr 첨가 시 143.43℃로 13.42℃ 향상된 열적특성의 결과를 얻었다. 이는 나노입자가 마이크로 입자 사이로 조밀하게 충전되어 들어감으로써 나노입자가 고분자 사슬의 유동성을 억제하는 anchoring 효과로 사료된다.

2. 열팽창계수 (TMA) 특성

열팽창계수 (CTE)의 측정온도 범위는 40~100℃의 결과를 나타낸 것이다. EMC의 경우 마이크로 실리카 충전 함량 65 wt%에서 CTE 측정 결과 39 $\mu\text{m}/\text{m}^\circ\text{C}$ 이었다. 그러나 ENMC의 나노입자 첨가량을 증가할수록 감소되는 결과를 얻었다. ENMC의 나노첨가량 4 phr에서 CTE가 32.6 $\mu\text{m}/\text{m}^\circ\text{C}$ 로써 6.4 $\mu\text{m}/\text{m}^\circ\text{C}$ 감소되는 결과를 얻었다. 이는 충전기기의 산업재료로서 양호한 결과를 의미한 것이다. 이런 결과는 표면 처리된 실리카의 분산과 마이크로실리카의 적절한 혼합은 입자크기의 조성에 있어서 연구자 [19]의 결과와 일치하는 결과를 얻었다. 나노입자의 균질한 분산이 잘 이루어 질 때, 더욱더 열팽창계수는 낮아지게 되며, 나노입자의 뭉침 현상이 크게되면 뭉쳐진 부분이 열에 의하여 팽창하는 정도가 크게 되고, 역시 수축하는 정도도 크게 되기 때문에 열적인 결함으로 작용하게 된다.

3. 동적 기계적 (DMA) 특성

DMA 측정온도 범위는 30℃~180℃에서 실시하였다. EMC의 경우, 유리상태 (40℃)에서 탄성계수는

6,000~6,500 MPa의 결과였다. 그리고 ENMC의 경우 나노입자 첨가량을 증가시킬 때 유리 상태에서 탄성계수 값은 크게 증가하였다. 그러나 나노입자 첨가량을 3 phr 첨가 시 최적의 탄성계수 값을 얻을 수 있었다. ENMC 최적의 상태의 탄성계수 값은 9,000 MPa 이상이었으며, 나노입자가 마이크로 입자 사이로 치밀한 조직을 갖는 상태로서 EMC보다 ENMC의 경우 33.3% 대단히 큰 향상을 가져왔다.

REFERENCES

- [1] M. Alexandre and P. Dubois, *Mater. Sci. Eng.*, 28, 63 (2000).
- [2] J. Mark, *Polym. Eng. Sci.*, 36, 2905 (1996).
- [3] R. Kotsilkova, D. Nesheva, I. Nedkov, E. Krusteva, and S. S. Rheological, *J. Appl. Polym. Sci.*, 92, 2220 (2004).
- [4] G. Chen, C. Wu, W. Weng, D. Wu, and W. Yan, *Polymer*, 44, 1781 (2003).
- [5] E. Thostenson, Z. Ren, and T. Chou, *Compos. Sci. Technol.*, 61, 1899 (2001).
- [6] B. Wetzel, F. Hauptert, and M. Q. Zhang, *Compos. Sci. Technol.*, 63, 2055 (2003).
- [7] Y. Dong, D. Chaudhary, C. Ploumis, and K. T. Lau, *Compos. Pt.*, A42, 1483 (2011).
- [8] T. W. Dakin, *IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.*, EI-9, 121 (1974).
- [9] J. Sato, O. Sakaguchi, N. Kubota, S. Makishima, S. Kinoshita, T. Shioiri, T. Yoshida, M. Miyagawa, M. Homma, and E. Kaneko, *IEEE/PES Transmission and Distribution Conference and Exhibition: Asia Pacific*, 3, 1791 (2002).
- [10] T. Shimizu, S. Kinoshita, S. Makishima, J. Sato, and O. Sakaguchi, *IEEE 7th Intern. Conf. Properties and Application of Dielectric Materials (ICPADM)*, S22, 1194 (2003).
- [11] T. Imai, F. Sawa, T. Nakano, T. Ozaki, T. Shimizu, M. Kozako, and T. Tanaka, *IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.*, 13, 319 (2006).
- [12] J. J. Park, C. H. Lee, J. Y. Lee, and H. D. Kim, *IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.*, 18, 667 (2011).
- [13] J. J. Park and J. Y. Lee, *IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul.*, 17, 1516 (2010).
- [14] B. Wetzel, F. Hauptert, and M. Q. Zhang, *Compos. Sci. Technol.*, 63, 2055 (2003).
- [15] J. A. Kim, D. G. Seong, T. J. Kang, and J. R. Youn, *Carbon*, 44, 1898 (2006).

- [16] S. Deng, L. Ye, and K. Friedrich, *J. Mater. Sci.*, 42, 2766 (2007).
- [17] A. Yasmin, J. J. Luo, J. L. Abot, and I. M. Daniel, *Compos. Sci. Technol.*, 66, 2415 (2006).
- [18] H. J. Song and Z. Z. Zhang, *Tribol. Int.*, 41, 396 (2008).
- [19] J. M. Choi, S. Y. Yu, S. H. Yang, and M. H. Cho, *Polymer*, 52, 5197 (2011).
- [20] K. Chen and S. Yang, *J. Appl. Polym. Sci.*, 86, 414 (2002).
- [21] X. Liu and Q. Wu, *Polymer*, 42, 10013 (2001).
- [22] Y. Sun, Z. Zhang, and C. P. Wong, *IEEE T. Conon Pack.*, T29, 190 (2006).
- [23] R. K. Goyal, A. N. Tiwari, U. P. Mulik, and Y. S. Negi, *J. Phys. D. Appl. Phys.*, 41, 7 (2008).
- [24] V. M. F. Evora and A. Shukla, *Mater. Sci. Eng.*, A361, 358 (2003).
- [25] D. Fragiadakisa, P. Pissisa, and L. Bokobza, *Polymer*, 46, 6001 (2005).
- [26] J. J. Park, *Trans. Electr. Electron. Mater.*, 13, 153 (2012).
- [27] W. K. Goertzen and M. R. Kessler, *J. Appl. Polym. Sci.*, 109, 647 (2008).
- [28] E. Foo, M. Jaafar, A. Aziz, and L. C. Sim, *Compos. Pt.*, A42, 1432 (2011).
- [29] P. L. Teh, M. Mariatti, H. M. Akil, C. K. Yeoh, K. N. Seetharamu, A. N. R. Wagiman, and K. S. Beh, *Mater. Lett.*, 61, 2156 (2007).