

纳米掺杂对环氧复合绝缘材料不均匀热老化特性的影响

任志刚, 潘泽华, 郭卫, 陈平, 及洪泉

(国网北京市电力公司电力科学研究院, 北京 100075)

摘要: 本文制备了改性纳米氧化铝掺杂质量分数分别为0%、1%、10%的环氧复合绝缘材料, 对其在150℃下开展了热老化试验, 并通过动态机械(DMA)测试、扫描电子显微镜(SEM)测试和线性热膨胀测试研究其热老化特性及机理。结果表明: 环氧复合绝缘材料在热老化过程中形成了不均匀的老化结构, 且表面老化层厚度与纳米氧化铝的含量有关。当纳米氧化铝掺杂质量分数为1%时, 试样的表面老化层厚度最小, 此时纳米颗粒分散性良好且紧密地镶嵌在环氧基体中。结合玻璃化转变的自由体积理论, 计算发现纳米氧化铝掺杂质量分数为1%时, 试样的自由体积分数最小, 且对应的环氧基体 α 主松弛时间最长, 分子链活性最低。在环氧树脂中加入适量改性纳米氧化铝可以提高分子链的交联程度, 降低体系的自由体积, 进而削弱氧气在材料内部的扩散能力, 最终降低环氧复合绝缘材料的不均匀热老化程度。

关键词: 纳米氧化铝; 环氧树脂; 热老化; 自由体积

中图分类号: TM215 DOI:10.16790/j.cnki.1009-9239.im.2023.12.012

Effect of nano-doping on inhomogeneous thermal ageing characteristics of epoxy composite insulating material

REN Zhigang, PAN Zehua, GUO Wei, CHEN Ping, JI Hongquan

(State Grid Beijing Electric Power Research Institute, Beijing 100075, China)

Abstract: Epoxy composite insulating materials doped with 0%, 1%, and 10% of modified nano Al_2O_3 were prepared and conducted thermal ageing tests at 150℃, and their thermal ageing characteristics and mechanism were studied through dynamic thermal mechanical testing, scanning electron microscopy testing, and linear thermal expansion testing. The results show that an inhomogeneous ageing structure is formed in epoxy composite insulating material during thermal ageing, and the thickness of surface ageing layer is related to the content of nano Al_2O_3 . When the doping mass fraction of nano Al_2O_3 is 1%, the thickness of surface ageing layer is the smallest, and the nanoparticles are well dispersed and closely embedded in the epoxy matrix. According to the free volume theory of glass transition, it is found that the free volume fraction of sample is the smallest when the doping mass fraction is 1%, the corresponding α main relaxation time of the epoxy matrix is the longest, and the molecular chain activity is the lowest. Adding an appropriate amount of modified nano Al_2O_3 into the epoxy resin can improve the cross-linking degree of molecular chain and reduce the free volume of system. Thereby the diffusion of oxygen in the material is weakened, and finally the inhomogeneous thermal ageing degree of the epoxy composite insulating material is reduced.

Key words: nano alumina; epoxy resin; thermal ageing; free volume

0 引言

环氧基复合材料具有优异的介电性能和力学性能, 被广泛应用于电力电子器件和电力设备的主绝缘材料^[1-3]。然而, 随着电力电子器件和电力设备朝着高功率和高集成化的方向快速发展, 设备在运行过程中会积聚大量热量, 从而引起温度的急剧上升。由于长期暴露在高温下, 环氧复合绝缘材料不可避免地发生热老化, 导致其分子结构发生显著变化, 甚至造成绝缘性能的严重劣化, 从而对器件、设备的安全稳定运行造成重大威胁^[4-6]。因此, 全面评

估环氧复合绝缘材料的热老化状态并探究其机理具有重要的意义。

对于环氧树脂高分子聚合物而言, 通常认为, 热老化的本质是在氧气参与下分子链发生的一系列化学反应, 老化前后环氧树脂在化学结构上的变化已经被广泛报道^[7-9]。P MUSTO等^[10]发现环氧树脂/二胺体系在空气中老化后会出现明显的劣化, 而在惰性气氛中则没有明显变化, 这表明氧气的参与是环氧树脂热老化的关键。YANG Y M等^[11]在环氧树脂的热老化研究中发现, 老化后环氧树脂红外光

谱中的C-H和-CH₂吸收峰强度相比于老化前出现了明显下降,而羰基C=O吸收峰强度出现了明显增大,这表明环氧树脂在热老化中发生了严重的氧化反应。B DAO等^[12]认为由于氧气在环氧树脂内部的扩散能力有限,环氧树脂与氧气直接接触的外表面部分将经历显著的老化,而其内部可能保持着一种未老化的状态。LONG Y W等^[6]提出了环氧树脂表面老化层的形成是环氧树脂高温氧化反应和再交联反应共同作用的结果,且该表面老化层的厚度随着老化时间的延长而逐渐增大。通常认为,氧气、水等小分子物质在聚合物中的扩散主要通过分子链间的空隙即自由体积进行。自由体积会影响分子链运动,改变聚合物热、机械和链松弛特性,也会影响电荷输运过程,改变聚合物的电学性能^[13]。L A UTRACKI等^[14]提出纳米粒子会抑制聚合物分子链运动,从而降低体系的自由体积。然而,目前对环氧复合绝缘材料在高温条件下的老化特性及其机理仍缺乏足够的认识。

本文制备了改性纳米Al₂O₃掺杂质量分数分别为0%、1%、10%的3种环氧复合绝缘试样,使用动态热机械分析(DMA)研究3种试样的不均匀热老化特性。通过扫描电子显微镜(SEM)、线性热膨胀实验和宽频介电谱表征改性纳米Al₂O₃不同掺杂量对环氧复合绝缘材料自由体积的影响,最后从化学结构层面阐释改性纳米粒子调控环氧复合绝缘材料自由体积的机理。

1 试验及测试方法

1.1 环氧复合绝缘试样制备及热老化试验

选用E51双酚A型环氧树脂作为基体,购自南通星辰合成材料有限公司;选用甲基四氢邻苯二甲酸酐(MTHPA)作为固化剂,2,4,6-三(二甲氨基甲基)苯酚(DMP-30)作为促进剂,固化剂和促进剂均购自阿拉丁试剂(上海)有限公司;选用的纳米Al₂O₃平均粒径为30 nm,使用KH570硅烷偶联剂经过水解、包覆、反应和干燥等步骤对纳米Al₂O₃进行表面改性,均购自北京德科岛金科技有限责任公司。

环氧树脂基体、固化剂和促进剂的质量比为100:80:1,纳米Al₂O₃的掺杂质量分数分别为0%、1%、10%。首先按比例称量环氧树脂基体和纳米Al₂O₃后一并放入THINKY MIXER ARE-310型搅拌罐中,以2 000 r/min的转速混合15 min,然后放入超声波清洗机中进行30 min的超声处理。随后按比例加入固化剂和促进剂,并再次放入搅拌罐中以2 000 r/min的转速混合15 min,然后以2 200 r/min

的转速脱气15 min,最后将混合物缓慢倒入不锈钢模具中进行固化。固化温度设定为80℃/2 h+105℃/2 h+120℃/4 h。

环氧复合绝缘试样的热老化试验在150℃下的空气中进行,老化时长为720 h。

1.2 动态热机械测试(DMA)

采用动态热机械分析(DMA, Netzsch DMA242E型)中的拉伸模式对3种试样进行测试,测试温度范围为70~200℃,频率为1 Hz,升温速率为5℃/min。

1.3 扫描电子显微镜测试(SEM)

采用VE9800型扫描电子显微镜(日本KEYENCE公司)观察试样断裂面处的微观形貌、纳米粒子在基体中的分散性以及与基体的结合程度。为了保证良好的成像,需要在试样断面处进行喷金处理。

1.4 线性热膨胀测试

采用L75型热膨胀仪(德国LINSETS公司)测量试样的相对伸长量随温度的变化。采用圆柱试样(直径为6 mm,高度为20 mm),测试温度为20~220℃,升温速率为2℃/min。

1.5 宽频介电谱测试

使用Concept 80型(德国NOVOCONTROL公司)宽带介电谱仪测试试样的介电响应特性,测试电压为1 V,测试温度为150℃,频率范围为10⁻¹~10⁶ Hz。在测试前,需要对试样表面进行喷金处理,喷金面直径为30 mm。

2 结果与讨论

2.1 环氧复合绝缘材料的不均匀老化结构

图1为环氧复合绝缘试样在老化720 h前后的tanδ曲线。从图1可以看出,对于未老化试样,仅观察到与玻璃化转变过程相关的α松弛峰。经过720 h的热老化后,试样的松弛峰分裂为两个更高温度的峰,即α₁(约141℃)和α₂(约175℃)。出现该现象的主要原因是热老化后环氧复合绝缘材料形成了不均匀的老化结构,即表层老化严重,而内部保持原有状态。由老化曲线可以看出,3种试样的两个松弛峰强度各有差异,其中纳米Al₂O₃质量分数为1%的试样,其代表内层未老化的α₂松弛峰的强度最高,表明在环氧基体加入适量的纳米Al₂O₃,可能起到了降低环氧复合绝缘老化程度的作用。

通过对老化后试样进行表面处理,即打磨不同厚度的表面老化层(厚度标记为R),再对试样进行DMA测试,获得的tanδ曲线如图2所示。由图2可以看出,当去掉相同厚度的表面老化层后,加入1%

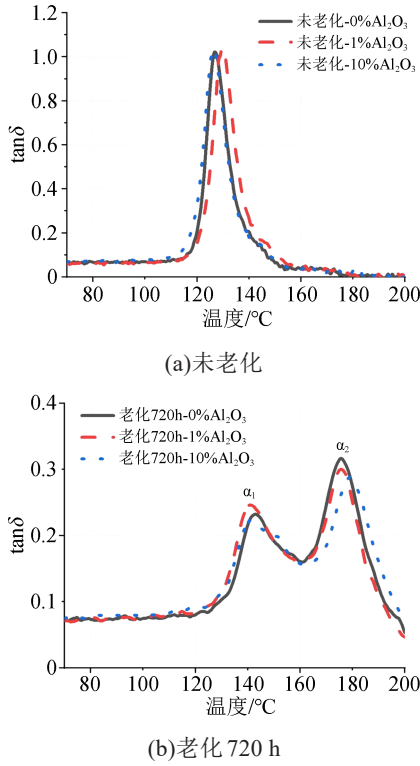


图1 老化720 h前后试样的DMA测试结果
Fig.1 DMA test results of samples before and after ageing for 720 h

纳米 Al₂O₃ 试样的 tanδ 曲线恢复程度最高。当 tanδ 曲线恢复为老化前的状态时,加入 1% 纳米 Al₂O₃ 试样的表面老化层厚度最小。该结果进一步证明,加入 1% 纳米 Al₂O₃ 到环氧树脂基体后,降低了环氧复合绝缘体系表层的热老化程度。

2.2 微观形貌观察结果

采用扫描电子显微镜 (SEM) 观测纳米 Al₂O₃ 在不同掺杂量下的环氧复合绝缘试样断裂面微观形貌,结果如图3所示。从图3可以看出,未掺杂纳米 Al₂O₃ 的试样断裂面光滑平整。当掺杂纳米 Al₂O₃ 质量分数为 1% 时,试样断裂面整体依旧保持光滑、完整的形貌,纳米 Al₂O₃ 均匀地镶嵌在环氧树脂基体中,与基体结合较为紧密。当掺杂纳米 Al₂O₃ 质量分数增加到 10% 时,试样断裂面处出现了大量沟壑与断层,纳米颗粒松散地附着在基体表面,且出现了明显的团聚。由 SEM 结果可以看出,当加入适量纳米 Al₂O₃ 到环氧基体中时,纳米粒子分散均匀,试样整体保持着致密的状态。

2.3 基于玻璃化转变理论的自由体积定量表征

对于非晶聚合物,无规则的分子链交联网络中存在大量的空隙,这些空隙即为自由体积^[15]。而聚合物自身分子或原子实际占有的体积为固有体积。依据玻璃化转变的自由体积理论^[16-17],在玻璃化转

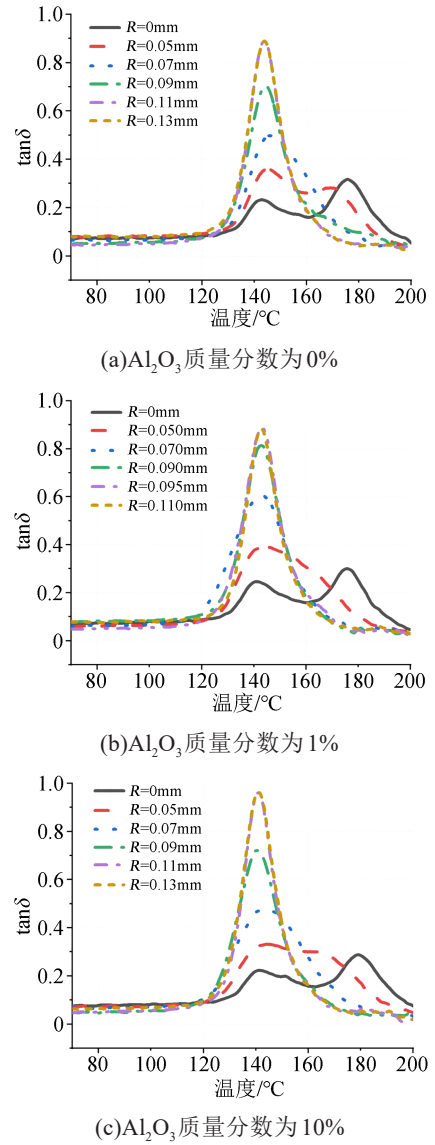


图2 去掉不同表面厚度后试样的 tanδ 曲线恢复情况
Fig.2 The tanδ curves recovery of samples with different surface thickness removed

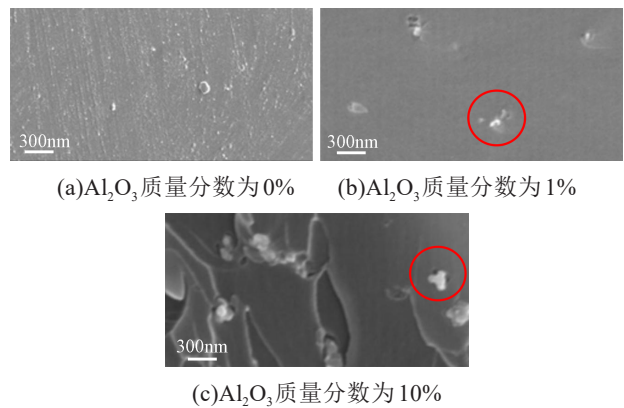


图3 试样的SEM断面形貌观测结果

Fig.3 SEM fracture surface morphological results of samples
变温度前,聚合物的分子链段被冻结,空隙的尺寸和形状基本保持不变,聚合物体积的增大来源于固

有体积的膨胀。在玻璃化转变温度之后,分子链可以自由运动,聚合物的体积增大不仅与固有体积的膨胀有关,也与自由体积的膨胀有关。因此,在玻璃化转变温度前后,随着温度的升高,聚合物呈现出不同的热膨胀特性,可以用来表征其内部自由体积的大小。

M WILLIAMS 等^[17]根据玻璃化转变的自由体积理论提出了计算聚合物内部自由体积分数的模型,如式(1)所示。

$$f_v = f_g + \Delta\lambda_f(T - T_g) \quad (1)$$

式(1)中: f_v 为自由体积分数; T 代表温度(K)(此处取 423 K); T_g 代表玻璃化转变温度(此处取 DMA 的测试结果); f_g 代表聚合物在玻璃化转变温度时的自由体积分数,根据 Fox-Flory 理论^[18],通常取 0.025; $\Delta\lambda_f$ 是一个系数,一般来说^[13],其计算公式如式(2)所示。

$$\begin{aligned} \Delta\lambda_f &= 3\Delta\lambda_1 \\ \Delta\lambda_1 &= \lambda_2 - \lambda_1 \end{aligned} \quad (2)$$

式(2)中: $\Delta\lambda_1$ 为聚合物在玻璃化转变温度上、下的线膨胀系数之差; λ_2 和 λ_1 分别为聚合物在玻璃化转变温度上、下的线膨胀系数。

对不同纳米 Al_2O_3 掺杂量的环氧复合绝缘试样进行线性热膨胀测试,得到试样相对伸长率随温度的变化曲线如图 4 所示。通过计算曲线玻璃化转变温度前后的斜率可以得到 λ_1 和 λ_2 ,结合 DMA 测试中各试样的 T_g ,代入式(1)和式(2),可以计算出各试样的自由体积分数,结果如表 1 所示。从表 1 可以看出,加入 1% 纳米 Al_2O_3 的试样自由体积最小,而加入 10% 纳米 Al_2O_3 试样的自由体积与纯环氧树脂相比没有明显变化。

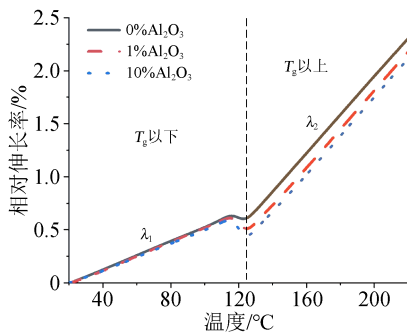


图 4 试样的线性热膨胀实验结果

Fig.4 Linear thermal expansion results of samples

2.4 自由体积对环氧复合绝缘材料主松弛特性的影响

自由体积会影响分子链在外加应力下的松弛过程。当自由体积减小时,分子链完成极化的转向空间减少,分子链间的阻力增大,运动受到限制,导

表 1 试样的自由体积分数计算结果

Al_2O_3 质量分数/%	玻璃化转变温度 $T_g/^\circ C$	自由体积分数 $f_v/\%$
0	126.85	3.33
1	129.75	3.18
10	126.53	3.32

致松弛时间增大^[19-21]。

本文测试了 3 种环氧复合绝缘试样在 150°C 下的介电松弛特性,并使用 Havriliak-Negami 拟合提取 α 松弛。Havriliak-Negami 方程如式(3)所示^[22-24]。

$$\epsilon^*(\omega) = \epsilon_{\infty} + \sum \frac{\Delta\epsilon_i}{[1 + (i\omega\tau_i)^\beta]^\gamma} + \frac{\sigma_{dc}}{i\epsilon_0\omega} \quad (3)$$

式(3)中: ω 代表角频率; ϵ^* 代表复介电常数; ϵ_{∞} 代表光频介电常数; σ_{dc} 为直流电导率;对于该式中自由松弛贡献的部分, $\Delta\epsilon_i$ 表征松弛强度; τ_i 代表松弛时间; β_i 和 γ_i 为形状参数。

图 5 是 3 种试样在 150°C 时的介电常数虚部拟合结果。基于 Havriliak-Negami 拟合提取的 α 松弛过程的松弛强度和松弛时间等参数,采用 Arrhenius 公式计算松弛活化能^[25],如式(4)所示。

$$\tau = \tau_0 \exp\left(\frac{E_A}{k_B T}\right) \quad (4)$$

式(4)中: T 为测试温度; τ 为 T 温度下该松弛的松弛时间; τ_0 为前置因子; k 为 Boltzmann 常数; E_A 为该松弛的松弛活化能。

3 种试样 α 松弛的松弛时间 τ 计算结果如表 2 所示。从表 2 可以看出,在温度为 150°C 时, Al_2O_3 掺杂质量分数 1% 的试样松弛时间最长,表明此时环氧复合材料的自由体积最小。

2.5 纳米氧化铝掺杂量对环氧复合绝缘材料不均匀热老化特性的影响机理

纳米粒子具有较大的比表面积和表面能,可以吸附附近电离的分子链段,在一定程度上促使分子链连接更加紧密。为了避免加入到基体中的纳米粒子团聚,通常会对纳米粒子进行有机偶联剂改性。通过氢键或共价键的作用,偶联剂进一步加强了纳米粒子与基体的连接强度,促使整个交联网络更加紧密,从而降低体系的自由体积^[26-27]。

本文使用 KH570 偶联剂(γ -甲基丙烯酰氧基丙基三甲氧基硅烷)对纳米粒子进行改性。KH570 作用的机理可以概括为水解、缩合和成键 3 个连续的步骤,如图 6 所示。首先经水解反应,KH570 水解生成硅醇,硅醇之间脱水缩合形成的网络结构会包覆纳米粒子表面;然后硅醇与纳米 Al_2O_3 表面的羟基会以氢键或脱水缩合的方式紧密结合;最后硅醇上的

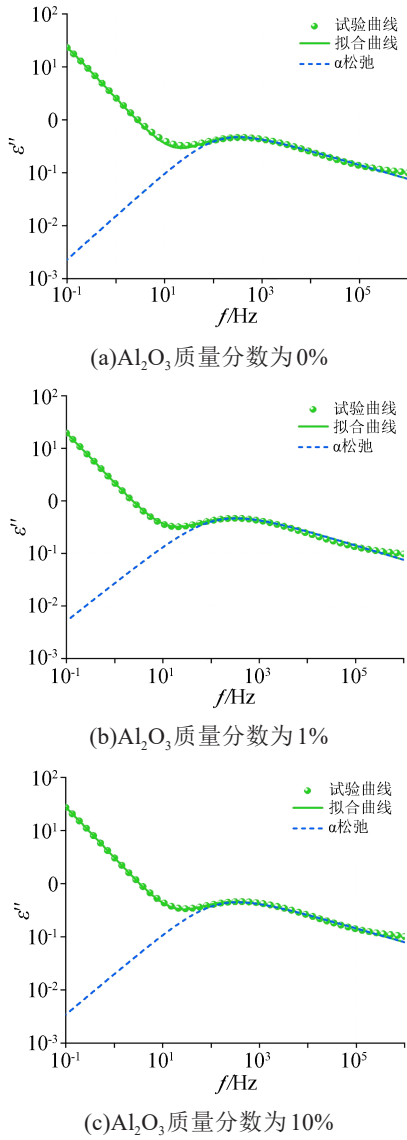


图5 试样在 150℃时的介电常数虚部及拟合结果

Fig.5 The imaginary part of dielectric constant of samples at 150℃ and fitting results

表2 试样在 150℃时的 α 松弛时间

Tab.2 The α relaxation time of samples at 150℃

Al ₂ O ₃ 质量分数/%	τ/s
0	2.44×10 ⁻³
1	3.22×10 ⁻³
10	2.21×10 ⁻³

其他羟基同样以氢键或共价键的方式与环氧树脂分子链上相应基团进行结合。

当加入 1% 的纳米 Al₂O₃ 时, 纳米颗粒含量较低, 由 SEM 结果可知纳米粒子分散性良好, 且与环氧基体结合紧密, 因此可以认为质量分数为 1% 时, 几乎所有纳米 Al₂O₃ 颗粒都能与环氧基体有效结合, 从而增加了分子链间的交联密度, 减小了整个体系的自由体积, 削弱了氧气在材料内部的扩散能力,

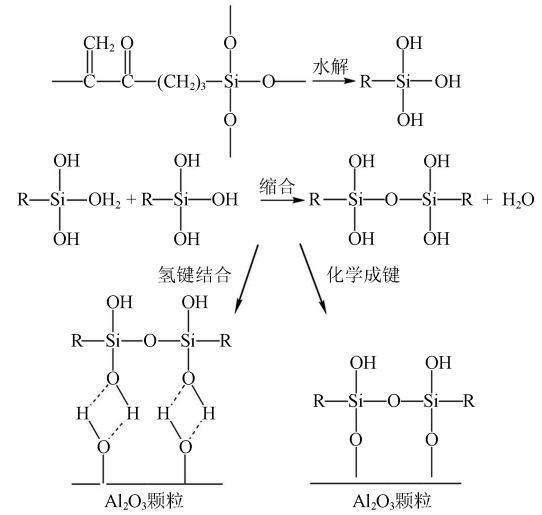


图6 KH570 偶联剂与纳米 Al₂O₃ 成键原理

Fig.6 The bonding principle of KH570 coupling agent and nano-Al₂O₃

从而降低了环氧复合绝缘材料的热老化程度。

而当加入 10% 的纳米 Al₂O₃ 时, 纳米粒子含量较高, 可以从 SEM 结果中看出纳米粒子出现了明显的团聚。此时纳米粒子比表面积降低, 表面能减小, 对分子链的吸附能力减弱; 同时, 有大量纳米颗粒只是简单地附着在环氧基体表面, 没有与基体形成有效的连接。表明在纳米 Al₂O₃ 含量较高时, 部分纳米粒子将孤立于基体中, 在基体中占据独立的空间, 从而会引入额外的自由体积。因此在纳米 Al₂O₃ 掺杂质量分数为 10% 时, 相比于纯环氧而言其自由体积并没有明显变化, 也就没有起到明显降低热老化程度的作用。

3 结论

本文主要研究了纳米 Al₂O₃ 环氧复合绝缘材料在 150℃ 热条件下的不均匀老化特性, 结合微观形貌、自由体积和介电松弛特性, 分析了纳米 Al₂O₃ 含量对环氧复合绝缘材料不均匀老化特性的影响机理, 主要得到如下结论:

(1) 通过 DMA 测试发现, 在经过 720 h 的热老化之后, 试样的玻璃化转变松弛峰分裂为两个更高温度的峰, 表明试样出现了不均匀老化现象。其中掺杂 1% Al₂O₃ 的试样表面老化层厚度最小, 而掺杂 10% Al₂O₃ 的试样不均匀老化结构与纯环氧树脂无明显差异。因此, 加入 1% 纳米 Al₂O₃ 有效降低了环氧树脂体系的不均匀热老化程度。

(2) 由 SEM 结果可知, 当 Al₂O₃ 质量分数为 1% 时, 纳米颗粒分散性良好, 且紧密地镶嵌在环氧基体中。通过线性热膨胀实验并结合基于玻璃化转变的自由体积理论, 计算得出此时复合材料的自由

体积分数最小,同时导致其 α 主松弛时间最大,分子链段的活动性最低。

(3)不同纳米 Al_2O_3 含量的环氧复合绝缘材料在不均匀热老化程度上的差别来源于纳米粒子对其内部自由体积的调控作用。当加入1%的纳米 Al_2O_3 时,纳米颗粒与环氧基体之间结合程度较好,分子链间的交联程度得到提高,减小了整个体系的自由体积,削弱了氧气在材料内部的扩散能力,从而降低了环氧复合绝缘的热老化程度;而当纳米 Al_2O_3 质量分数增加到10%时,纳米粒子出现了严重的团聚,其比表面积降低,进而表面能减小,对分子链的吸附能力减弱,且存在部分纳米颗粒孤立于基体中而引入的额外自由体积,因此没有起到明显的降低热老化程度的作用。

参考文献:

- [1] 杨凯,任颀若,李建英,等. 乙烯共聚调控晶态结构对聚丙烯电缆绝缘料电气性能的影响[J]. 高电压技术,2023,49(3):982-989.
- [2] 高建,严智民,李建英,等. 温度对硅橡胶电树枝自恢复特性的影响机制[J]. 西安交通大学学报,2022,56(9):176-184.
- [3] 汪政,黄振,彭向阳,等. 复合绝缘子护套-芯棒界面异常老化特征及原因分析[J]. 绝缘材料,2022,55(3):112-118.
- [4] 胡鹏,李成钢,陈大兵. 电缆GIS终端环氧套管开裂原因分析及对策研究[J]. 电力工程技术,2017,36(1):102-105.
- [5] 吕鸿,马佳炜,杨贤,等. 热老化对220kV硅橡胶电缆接头绝缘材料介电性能的影响[J]. 绝缘材料,2019,52(2):47-51.
- [6] LONG Y W, LI J Y, CHENG Z L, et al. Split dynamic mechanical relaxation of an inhomogeneous dielectric and the insights into its anomalous characteristics[J]. Materials Letters,2022,310:131488.
- [7] 何宏明,邱漫诗,聂章翔,等. 高温下110kV XLPE电缆绝缘在空气和硅油介质中的老化机理研究[J]. 绝缘材料,2020,53(3):22-27.
- [8] 严智民,杨凯,王诗航,等. 硅脂对硅橡胶电树枝劣化特性的影响机制研究[J]. 中国电机工程学报,2019,39(2):604-611,657.
- [9] ZHENG Y Y, LONG Y W, YI D L, et al. Correlation between antioxidant depletion kinetic model and ageing behavior of cross-linked polyethylene cable insulation[J]. High Voltage,2023,8(2):231-238.
- [10] MUSTO P, RAGOSTA G, RUSSO P, et al. Thermal-oxidative degradation of epoxy and epoxy-bismaleimide networks: Kinetics and mechanism[J]. Macromolecular Chemistry and Physics, 2001,202(18):3445-3458.
- [11] YANG Y M, XIAN G J, LI H, et al. Thermal aging of an anhydride-cured epoxy resin[J]. Polymer Degradation and Stability, 2015,118:111-119.
- [12] DAO B, HODGKIN J, KRSTINA J, et al. Accelerated aging versus realistic aging in aerospace composite materials. II. Chemistry of thermal aging in a structural composite[J]. Journal of Applied Polymer Science,2006,102(4):3221-3232.
- [13] LI Z, MIN D M, NIU H, et al. Enhanced DC breakdown strength of epoxy nanocomposites at elevated temperature and its mechanisms[J]. Journal of Applied Physics,2021,130(6):65101.
- [14] UTRACKI L A, SIMHA R, GARCIA-REJON A. Pressure-volume-temperature dependence of poly- ϵ -caprolactam/clay nanocomposites[J]. Macromolecules,2003,36(6):2114-2121.
- [15] NAPOLITANO S, GLYNOS N, NICHOLAS B. Glass transition of polymers in bulk, confined geometries, and near interfaces[J]. Reports on Progress in Physics,2017,80(3):036602.
- [16] WHITE R, LIPSON J. Polymer free volume and its connection to the glass transition[J]. Macromolecules, 2016, 49(11): 3987-4007.
- [17] WILLIAMS M, LANDEL R, FERRY J. The temperature dependence of relaxation mechanism in amorphous polymers and other glass forming liquid[J]. Journal of the American Chemical Society,1955,77(14):3701-3707.
- [18] FOX T, FLORY P. Second-order transition temperatures and related properties of polystyrene. I. Influence of molecular weight [J]. Journal of Applied Physics,1950,21(6):581-591.
- [19] PANAGOPOULOU A, RODRÍGUEZ-TINOCO C, PWHITE R, et al. Substrate roughness speeds up segmental dynamics of thin polymer films[J]. Physical Review Letters,2020,124(2):27802.
- [20] DEBOT A, WHITE R P, LIPSON J, et al. Experimental test of the cooperative free volume rate model under 1D confinement: The interplay of free volume, temperature, and polymer film thickness in driving segmental mobility[J]. ACS Macro Letters, 2018:41-45.
- [21] WU K N, LI R, JIA R, et al. Transition of the colossal permittivity related dielectric relaxation in V-doped $CaCu_3Ti_4O_{12}$ ceramics [J]. Journal of Applied Physics,2022,132(16):164103.
- [22] HUANG Y, MIN D M, LI S T, et al. Dielectric relaxation and carrier transport in epoxy resin and its microcomposite[J]. IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation,2017,24(5):3083-3091.
- [23] 武康宁,黄雨薇,王子悦,等. 电介质的衍生对数导数介电分析方法及其应用[J]. 高电压技术,2020,46(2):640-647.
- [24] 尹桂来,李建英,唐壮,等. GIS用环氧浇注材料的介电松弛特性研究[J]. 绝缘材料,2015,48(5):51-51,59.
- [25] SUN W X, BOWLER N. Dielectric properties of silanized-silicon/epoxy nanocomposites[J]. IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation,2016,23(4):2095-2101.
- [26] TSAGAROPOULOS G, EISENBERG A. Dynamic mechanical study of the factors affecting the two glass transition behavior of filled polymers. Similarities and differences with random ionomers[J]. Macromolecules,1995,28(18):6067-6077.
- [27] IMA T, SAWA F, NAKANO T, et al. Effects of nano and micro-filler mixture on electrical insulation properties of epoxy based composites[J]. IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation,2006,13(2):319-326.

收稿日期:2022-11-02;修回日期:2023-03-09。

作者简介:任志刚(1983-),男(汉族),北京人,高级工程师,主要从事高电压与绝缘技术的研究。