

표면개질된 나노 알루미나의 에폭시-나노 콤포지트 유전 특성

박재준^a

중부대학교 전기전자공학과

Dielectric Properties of Epoxy-Nano Composites for Surface Modified Nano Alumina

Jae-Jun Park^a

Department of Electrical Electronic Engineering, Joongbu University, Goyang 10279, Korea

(Received August 14 2016; Revised September 21, 2016; Accepted September 24, 2016)

Abstract: The aim of this study is to improve of dielectric properties using epoxy/nano alumina composites with adding glycerol diglycidyl ether (GDE:1,2 g). This paper deals with the effects of dielectric properties(ϵ_r' and $\tan\delta$) for epoxy/nano alumina contents (1,3 phr) and GDE addition (1,2 g)composites. 5 kinds specimen were prepared with containing epoxy resins, epoxy nano alumina composites. Average particle size of nano used were 30 nm. The nano alumina used were gamma phase particles of spherical shape. The suppression of epoxy chain motion by addition of nano alumina+GDE decreased dielectric loss and relative permittivity magnitude.

Keywords: Surface modified nano alumina, Dielectric properties, Epoxy/nano alumina composites, GIS spacer

1. 서 론

최근의 연구가 전기적 절연으로서 사용되는 향상된 재료를 얻기 위해 고분자재료 내에 나노필러의 첨가재료인 나노 콤포지트에 초점이 되어왔다. 고전적인 마이크로필러가 충전된 재료와 비교할 때, 고분자 나노 콤포지트는 유기 고분자에 나노입자가 잘 분산된 콤포지트의 경우 많은 분야에서 높은 특성을 갖는 새로운 재료로서 많은 관심을 끌고 있다. 유전 특성, 가령 전도도, 공간전하거동, 절연파괴, 그리고 고분자의 부분방전 저항성이 나노필러를 첨가함으로 향상되어졌다 [1-3]. 그렇지만, 나노필러의 충전은 이들 특성을 약화시킨다고 보

고하고 있다 [4,5]. 이런 점에서 나노필러재료의 효과는 아직까지 완전하게 이해되어지지 않았음을 고려해야 한다. 나노필러의 영향은 형태 및 크기에 의존적이며 분산 방법, 그리고 재료의 전처리 또는 후처리 과정에서도 독특하다. 그래서 필요로 한 특성을 얻기 위해서는 적절한 콤포지트를 개발하는 것이 매우 중요한 것이다.

본 연구에서는 고전압 충전기기인 GIS spacer를 개발하기 위해 GDE를 이용한 나노입자의 표면처리를 실시하였다. GDE의 첨가량 변화와 나노 알루미나의 충전 함량을 변화시켜 제조된 에폭시/나노 알루미나 콤포지트의 유전 특성을 연구하였다.

2. 실험 방법

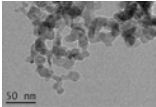
2.1 재료

본 연구에 이용한 나노 알루미나 입자는 aluminium

a. Corresponding author; jjpark@joongbu.ac.kr

Copyright ©2016 KIEEME. All rights reserved.
 This is an Open-Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

Table 1. Properties of fillers for the specimens.

Property	Nano alumina
Mean particle size	30 nm
Crystal form	Gamma phase
Particle shape	
Purity(%)	99.9%
BET (specific surface area) : m^2/g	100±20

oxide power로서 국내 Sukgyung AT Co., Ltd.산으로 SG-ALO30의 제품을 이용하였다. 나노입자의 특성은 표 1에서 나타내었다.

상업적인 DGEBA (diglycidyl ether of bisphenol A)타입 에폭시는 상품명 Araldite CT-200을 사용하였다. 점도는 120°C에서 390~520 mPs이며, 밀도는 25°C에서 1.15 g/cm³ 에폭시 함량(equip./kg)은 2.55~2.7이다. 경화제(hardener)는 제품명으로 HT 903으로서 실내 온도에서는 고체상체의 냄새가 나지 않는 carboxylic acid anhydride 기반 경화제이다. 용점 범위(melting range)는 128~132°C이며, 밀도는 130°C에서 1.22~1.25 g/cm³이다. 산의 함량은 ≤3(%), 휘발성 함량은 0~0.2%로 외관상 백색의 파우더 형태를 갖는다.

경화제로서 사용된 carboxylic acid type (anhydride)는 충전기기 절연소재인 GIS spacer의 절연소재로서 광범위하게 사용되고 있으며, 감마상 나노 알루미늄의 표면개질을 위해 비실란계(glycerol diglycidyl ether, GDE)를 사용하였다.

2.2 교류절연파괴용 에폭시-마이크로 알루미늄 나노 알루미늄 복합체의 제조 과정

GIS spacer 절연소재 개발을 위해 그림 1에서 나타낸 과정을 통하여 에폭시/나노 알루미늄 복합체의 제조방법을 나타내었다.

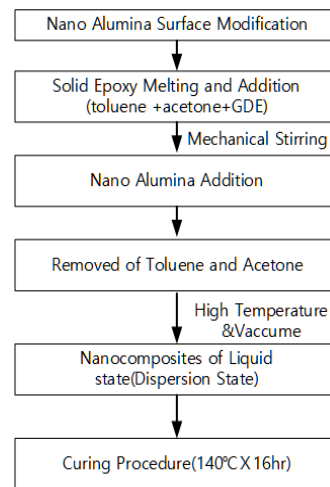
제조된 샘플은 표 3에 나타낸 바처럼 에폭시 원형, 에폭시/나노 복합체 (1,3 phr)+GDE addition(1 phr), 에폭시/나노 복합체(1 phr)+GDE addition(2 phr)된 4종류의 샘플이 제조되었다. 4종류로서 유전 특성 계측시스템을 이용하여 측정한 결과를 나타내었다.

Table 2. Definitions of terms.

Abbreviation	The original terms
GDE	Glycerol diglycidyl ether
ER	Epoxy resins
NA	Nano alumina
ENAC	Epoxy nano alumina composites

Table 3. Type of sample.

Number	Specimen	ER	Hardener	GDE	NA	MA
				Gram	phr	wt%
1	ER	100	40	0	0	0
2	ENA_1 phr/GDE1 g	100	40	1	1	0
3	ENA_3 phr/GDE1 g	100	40	1	3	0
4	ENA_1 phr/GDE2 g	100	40	2	1	0

**Fig. 1.** Preparation procedure for epoxy/surface modified nano alumina composites.

2.3 유전 특성 측정

비유전을 측정은 주파수 범위 3 μHz ~ 3 MHz인 Universal Dielectric Spectrometer로서 제조사는 Novocontrol GmbH이며, BDS 1200 모델을 사용하였다. 측정을 위해 사용된 샘플은 두께 1 mm, 실제 지름 30 mmφ (평판형 크기로서 50 mm × 50 mm)을 사용하였다. 실버페이스트를 도포하여 80°C × 8 h 건조 후 측정에 사용하였다. 우리의 BDS시스템은 온도제어 장치가 없는 impedance spectroscopy와 conductivity 그리고 유전에 대한 일괄 공급된 시스템이다.



Fig. 2. BDS 1200 system.

$$\epsilon_r^* = \frac{G}{j\omega C_0} + \frac{C}{C_0} = \frac{C}{C_0} - j \frac{G}{\omega C_0} = \epsilon_r' - j\epsilon_r''$$

$$I = j\omega C_0 \epsilon_r^* E = C_0 \epsilon_r^* \frac{dE}{dt} = j\omega C_0 (\epsilon_r' - j\epsilon_r'') E = (G + j\omega C) E$$

유전체 내에서 소비된 단위체적당 전력손실 W와 tanδ는

$$W = I^2 R = \frac{V^2}{R} = G V^2 = \omega C_0 \epsilon_r'' E^2$$

$$\tan\delta = \frac{\epsilon_r''}{\epsilon_r'} = \left| \frac{I_R}{I_C} \right| = \frac{1}{\omega CR}, \epsilon_r'' = \tan\delta$$

3. 결과 및 고찰

3.1 에폭시/나노 알루미나 입자의 분산

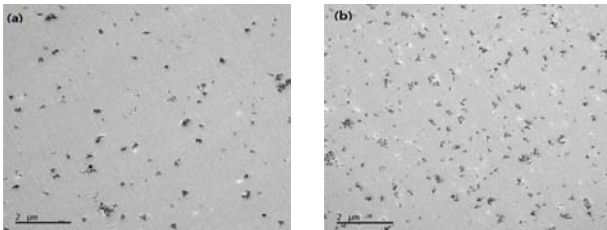


Fig. 3. TEM image for the nano alumina particles dispersed in epoxy matrix. (a) 1 phr and (b) 3 phr.

에폭시수지에서 나노 알루미나 입자의 분산 정도를 TEM 영상을 통하여 조사하였다. TEM으로부터 본 응집현상은 완전하게 피할 수는 없다. 이유는 주요한 나노입자들 사이의 물리적, 화학적 힘이 혼합 과정 동안 적용된 높은 전단력보다 더욱 더 크기 때문에 완전하게 응집현상을 피할 수는 없다. 응집된 정도의 크기는 100~200 nm이며, 전반적인 입자의 균질성은 이루어졌다. 그림 3(a) 나노 알루미나 충전함량_1 phr 3(b) 나노 알루미나 충전함량_3 phr로 에폭시 내부에 나노 알루미나입자의 분산된 구조를 나타내었다 [12].

3.2 ENA 콤포지트의 충전함량에 대한 유전 특성

나노 콤포지트 유전 특성 변화의 메커니즘을 이해하기 위해 많은 관심이 주파수 및 온도함수로서 복소유전율 ϵ_r^* 에 초점이 되어졌다. 복소유전율은 실수부(ϵ_r')와 허수부(ϵ_r'')로서 관계된다.

ϵ_r'' 를 허수부분(영상부분)을 유전재료 내의 유전 손실 (dielectric loss factor) 나타낸다. tanδ를 유전정접이라 하며, δ가 적으면 tanδ ≈ cosθ로 되어 유전체역률 (dielectric power factor)이라 하며, 일반적으로 유전체 손실이란 절연체에 교류전압을 인가하면 절연체 내부에서 매 초당 열로 발생하는 손실에너지로 의미한 것으로 교류 손실이라고 한다. 재료 내의 유전 손실이 낮은 값을 갖는 재료가 전기적 유전시스템 응용에 오히려 선호되는 재료이며, 유전을 값은 구체적인 응용에 따라 사용 재료가 선정되어야 한다.

그림 4에서는 에폭시수지에 NA입자를 GDE (glycerol diglycidyl ether)로 표면 처리된 입자를 에폭시수지에 첨가하여 분산시킨 나노 콤포지트의 유전 특성을 나타낸 것이다. 주파에서는 계면분극과 전도과정, 그리고 고주파에서는 쌍극자 분극의 영향으로 추론된 것이 실수부와 허수부의 값으로 나타난 것이다. 계면분극은 필러와 수지 사이 표면에 관계되고, 반면에 쌍극자 분극은 벌크타입 고분자가 어떻게 영향을 받고 있는지에 관한 정보를 주고 있다. 이런 기술이 원형수지와 함께 ENAC의 유전 특성을 나타낸 것이다. 그림 4(a)는 복소유전율의 실수부로서, 비유전율의 주파수 의존성 나타내었고, 그림 4(b)의 경우 복소유전율의 실수부와 허수의 비로서 유전 손실($\tan\delta = \frac{\epsilon_r''}{\epsilon_r'}$)에 대한 주파수 의존

성을 나타낸 것이다. 비유전율(ϵ_r')에 관한 것으로 모든 ER, ENAC에 대해서 저주파 분산을 나타내고 있다.

ϵ_r' 와 tanδ는 주파수 감소에 따라 약간의 증가를 가져왔고, 온도상태는 상온상태를 유지하였다.

그러나 Norikazu Fuse [5] 연구에서는 상온상태에서 주파수 감소에 따라 증가하는 경향을 나타내었다. 그러나 온도가 증가하게 되면 더욱 더 유전 손실이 증

가하는 현상을 나타내고 있다. 이런 현상은 전하 캐리어의 전송과 연관이 있다고 보고하고 있다. 만일 전하 캐리어가 전계 하에서 전송된다면, 에너지는 주울열에 의해 소비가 될 것이다. 이런 경우 일반적으로 유전 손실로서 표현하면,

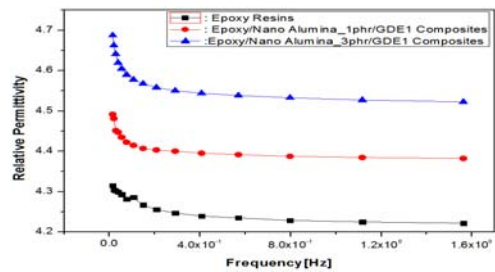
$$\epsilon_r'' = \tan\delta = \frac{\sigma}{2\pi\epsilon_0 f} \quad (1)$$

ϵ_0 는 진공 중에 유전율, f 는 인가전압의 주파수이다 [3,5]. 그러므로, $\tan\delta$ 증가는 전기전도에 기인하고, 전하 교환이 전극에서 일어나지 않을 때, 이종의 전하 (hetero space)가 표면 근처에 누적하고 있다. 전극에서 전하밀도가 증가한 결과는 순차적으로 ϵ_r' 의 증가를 가져 온다 [3,5]. 반대전극을 향하여 이온전하의 완화는 에폭시수지 내 주요한 전기전도 원인을 보고하고 있다 [13]. ER의 비유전율(ϵ_r')은 주파수 분산의 경우 ENAC에 비하여 낮은 유전율을 나타내었다. 이는 나노알루미나 필러가 첨가되면 고분자체인이 움직이지 못한 구조가 되어 분극이 낮게 되어지는 결과로 사료된다. $\tan\delta$ 의 경우, ER과 나노필러가 충전된 콤포지트의 경우 손실 패턴을 비교하여 볼 때, 손실 값이 ER가 상대적으로 큰 손실 값을 나타내었다. 이는 ENAC 1과 3 phr가 첨가된 모든 콤포지트에서 유전 손실의 반응이 발생되었고, 주파수 함수로서 유사한 반응패턴을 얻을 수 있었다. 그렇지만, ER에 나노알루미나 소량 첨가시 1 phr에 비하여 3 phr 경우 유전율 크기가 증가하는 결과 값을 나타내었다. 이유는 여러 연구자들의 경우 증가할 수도, 감소할 수도 있지만, 그 결과는 필러의 유전율과 또는 나노입자의 상호작용 영역 내에서 분자의 움직임이 제한을 받기 때문이며, 그 원인을 실리카의 높은 유전율에 의한 결과로도 보고하고 있다 [3].

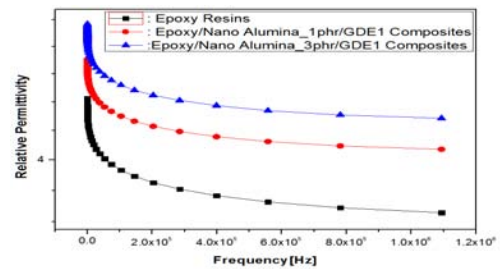
나노필러가 충전된 분산체에서 손실값이 더욱 더 작아지는 이유는 입자 주위 에폭시체인이 이동하지 않은 계면층의 존재에 의한 분극으로 보고하고 있다 [1].

이와 같은 유사한 실험 결과 비유전율과 유전 손실의 측정 결과 본 연구와 같은 경향을 나타내었다 [7,8].

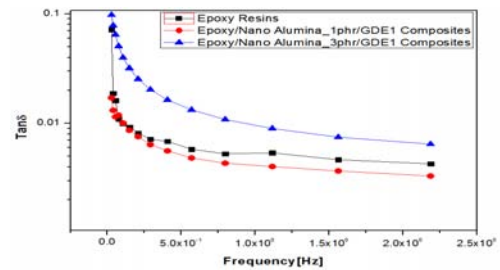
T. Rouyre [9] 연구자는 나노 콤포지트, 나노-마이크로혼합 콤포지트의 경우, 나노 콤포지트의 경우만은 유전율 특성에서 영향이 크지 않지만 혼합된 콤포지트에서는 마이크로필러의 영향이 크게 나타남을 보고하고 있다. 더불어, A. K. Jonscher [10] 연구자는 ER보다 높은 유전율 값을 갖는 무기물이 에폭시수지에 혼합되면, 콤포지트의 실제적인 유전율은 증가한다 하였고,



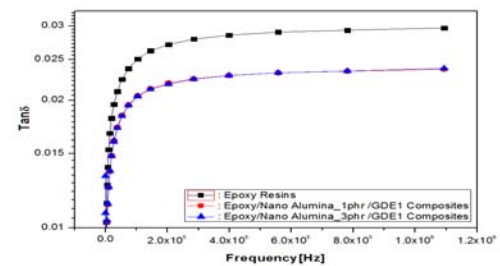
(a) frequency range : 0.01405 ~ 1.2 Hz(ϵ_r')



(b) frequency range : 1.2 Hz ~ 1.09 MHz(ϵ_r')



(c) frequency range : 0.01405 ~ 1.2 Hz($\tan\delta$)



(d) frequency range : 1.2 Hz ~ 1.09 MHz($\tan\delta$)

Fig. 4. Dielectric properties for contents of nano alumina filler according to frequency variation.

S. Singha [11] 연구자는 나노입자의 특징 중 하나는 큰 상호작용 영역이 마이크로 콤포지트 보다 나노 콤포지트의 유전율 값에 중요한 임팩트를 가질 수 있다. 이는 실리카 나노필러와 고분자체인 사이 상호작용이

이동도를 줄이고, 더욱 더 나노필러의 높은 표면적이 샘플의 전반적인 유전율을 감소하게 하는 원인이 된다.

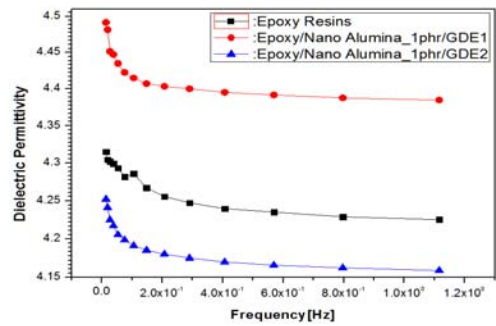
3.3 ENAC 콤포지트의 GDE 첨가량에 따른 유전 특성

ER와 ENAC_1 phr에 GDE1 g과 GDE 2 g을 각각 첨가한 샘플을 제조하였고, GDE 첨가량의 변화에 따른 유전 특성 측정결과 그림 5(a), (b)에서는 주파수 함수로서 실수부(ϵ_r') 그림 5(c), (d)에서는 주파수 함수로서 $\tan\delta$ 의 결과를 나타낸 것이다. 그림 5(a), (b)에서 주파수 감소에 따라 원형 및 ENAC의 경우 유전율이 증가하는 결과를 보이고 있다. 유전율은 고분자 내에서 주파수 의존성이 강한 파라미터이다. 유전율의 에폭시 성분은 시스템 내에 배향하는 쌍극자수와 교번전계에서 배향할 수 있는 그들의 능력에 지배된다 [14]. 보통, 유전 완화 메커니즘에는 수직과 수평하게 부착된 고분자 라디칼이 기여하게 된다. 인가전압이 낮은 주파수에서 에폭시체인 내 모든 자유 쌍극자 관능기가 이들 주파수에서 높은 유전율 값에 관계한다. 전계주파수가 증가할수록 더욱 더 큰 쌍극자가 교번전계에서 같은 양상으로 배향하기는 어렵다는 것을 알게 된다. 그래서 유전율에 이들 쌍극자가 기여는 더욱 더 높은 주파수에서 에폭시시스템의 유전율을 연속적으로 감소하는 결과를 가져오게 된다. 유사하게 TiO_2 와 ZnO 입자에서 본래의 유전율은 인가전계 주파수 증가에 따라 감소하게 된다 [11,15,16].

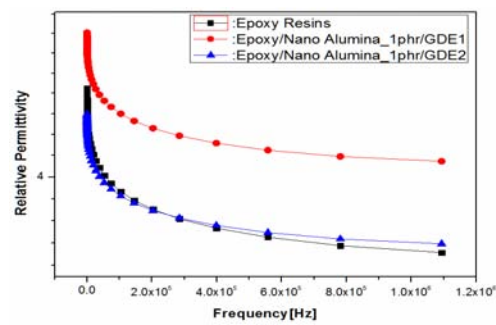
주파수 의존성에 대한 비유전율의 함수로서 ER와 ENAC를 비교하여 볼 때, 극저주파(0.01405~1.2 Hz)에서는 GDE_2 phr가 첨가된 ENAC의 경우가 ER에 비하여 낮은 비유전율을 나타내었고, 1.2 Hz~1.09 MHz 범위에서는 원형과 거의 유사한 값의 크기를 나타내었다. 그러나 GDE_1 phr의 경우 오히려 원형보다 높은 비유전율을 얻었다.

실제적인 나노 콤포지트의 유전율은 복합재료의 벌크 타입에서 유전분극과 완화 메커니즘에 의해 결정된다. 나노 콤포지트는 계면분극이 대부분 일어나는 계면이 매우 크다는 것은 이미 알려진 사실이다.

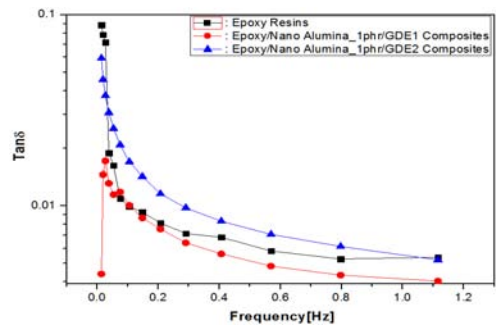
계면이 크지만 나노 알루미나 사이 표면개질을 GDE 처리된 나노입자를 충전시켜 제조된 경우로서, GDE 첨가량의 차이에 따른 비유전율은 ER와 NA계면의 강화는 유전율값을 작게 하고, 계면의 강화는 유전율을 크게 하는 것이다. 나노 비표면적이 매우 커서 GDE 첨가량이 2 g인 경우 계면의 강화를 더욱 더 크게 한 결과로 사료된다.



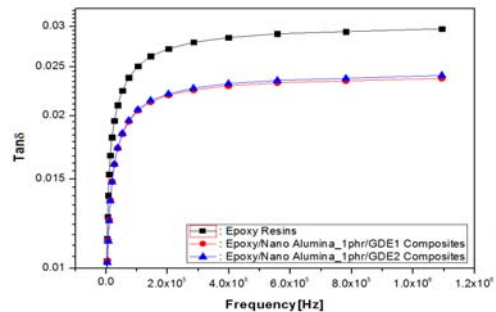
(a) frequency range : 0.01405~1.2 Hz(ϵ_r')



(b) frequency range: 1.2 Hz~1.09 MHz(ϵ_r')



(c) frequency range : 0.01405~1.2 Hz($\tan\delta$)



(d) frequency range: 1.2 Hz~1.09 MHz($\tan\delta$)

Fig. 5. Dielectric properties of nano alumina for GDE addition according to frequency variation.

그림 5(c), (d)에서는 GDE 첨가량의 변화에 따른 $\tan\delta$ 유전 손실의 경우, 극저주파 (0.01405~1.2 Hz)에서는 EP 경우 보다 ENAC (GDE1)의 경우 유전 손실이 작은 값을 가져왔다. 이유는 GDE 분자에 대한 특성에 관한 것으로 양쪽 말단에 epoxide ring과 친수성기(OH)가 두 개가 달려 있는 분자량이 작은 GDE가 사용되었고, 알루미늄 입자 표면은 친수성기가 많아 OH기가 달려 있는 GDE와의 친화력이 좋아, GDE 말단에 epoxide ring이 달려 있어 에폭시와도 우수한 친화력을 갖게 된다. 이런 이유로 알루미늄과 에폭시(CT-200) 간의 빈 공간에 GDE를 붙여 에폭시수지와 NA 간의 계면 접착력과 분산성이 향상될 수 있다.

S. Singha [11] 연구자는 나노입자의 특징 중 하나, 입자와 입자의 큰 상호작용으로 실리카 나노필러와 고분자체인 사이 상호작용으로 이동도를 줄이고, 더욱 더 나노필러의 높은 표면적이 샘플의 전반적인 유전 특성을 향상되어 고분자 체인의 움직임을 약하게 한다. 그런 경우 유전 손실이 작아지는 원인이 되어 진다.

4. 결론

본 연구에서는 GIS spacer 절연소재를 개발하기 위하여, 나노 알루미늄입자의 표면개질을 실시하였다. 첨가된 비실란 첨가제인 GDE (glycerol diglycidyl ether)를 소량 1, 2 g을 첨가하였고, 개질된 나노 알루미늄의 충전함량 1, 3 phr을 첨가하여 제조된 원형 및 나노 콤포지트 4종류 샘플에 대한 유전 특성을 연구하였다. 그 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

1. 나노 알루미늄 충전함량 변화에 따른 유전 특성

비유전율(ϵ_r'): ER과 ENAC_1 phr와 3 phr의 유전 특성에서 비유전율의 경우 ER이 ENAC보다 낮은 결과의 유전율을 나타내었고, ENAC_1 phr와 ENAC_3 phr의 비교에서 3 phr의 경우가 1 phr에 비하여 높은 비유전율의 특성을 나타내었다. 또한, 주파수 의존성의 경우: ER과 ENAC 경우 모두 주파수 감소에 따라 ϵ_r' 는 증가하였고 극저주파로 갈수록 더욱 더 증가되는 특성을 얻었으며, 모두 같은 유사한 경향을 나타내었다.

유전 손실($\tan\delta$): ER과 ENAC의 유전 손실 특성에서 ER이 ENAC 보다 높은 유전 손실을 나타내었고, ENAC_1 phr와 ENAC_3 phr의 비교에서 1, 3 phr

둘 다 거의 같은 손실 크기를 나타내었다. 원형에 비하여 낮은 유전 손실을 나타낸 이유는 나노 알루미늄 입자분산에 의하여 입자상호간 작용력과 입자 주위 에폭시체인의 구속력이 강하게 작용하여 체인이 이동하지 못하게 하는 계면 층의 분극작용 결과로 사료된다.

2. 나노 알루미늄 표면처리를 위한 GDE 첨가량 변화에 따른 유전 특성

비유전율(ϵ_r'): ER과 ENAC_1 phr와 3 phr의 유전 특성에서 비유전율의 경우 ER이 ENAC보다 높은 결과의 유전율을 나타내었고, ENAC_GDE1 g과 ENAC_GDE2 g의 비교에서 GDE2 g이 GDE1 g에 비하여 낮은 비유전율의 특성을 나타내었다. 또한, 주파수 의존성의 경우: ER과 ENAC 경우 모두 주파수 감소에 따라 ϵ_r' 는 증가하였고 극저주파로 갈수록 더욱 더 증가되는 특성을 얻었으며, 모두 같은 유사한 경향을 나타내었다.

유전 손실($\tan\delta$): ER과 ENAC의 유전 손실특성에서 ER이 ENAC 보다 높은 유전 손실을 나타내었고, ENAC_GDE1 g과 ENAC_GDE2 g의 비교에서 GDE 1,2 g의 경우 둘 다 거의 같은 손실 크기를 나타내었다.

이유는 나노 알루미늄 표면개질을 통하여 ER과 NA 입자간 결합력이 더욱 더 강한 결합력의 결과로 유전 손실이 작아지는 것으로 사료된다.

REFERENCES

- [1] T. Tanaka, *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, **12**, 914 (2005).
[DOI: <http://dx.doi.org/10.1109/TDEI.2005.1522186>]
- [2] N. Fuse, Y. Ohki, M. Kozako, and T. Tanaka, *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, **15**, 161 (2008).
[DOI: <http://dx.doi.org/10.1109/T-DEI.2008.4446747>]
- [3] J. Katayama, Y. Ohki, N. Fuse, M. Kozako, and T. Tanaka, *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, **20**, 157 (2013).
[DOI: <http://dx.doi.org/10.1109/TDEI.2013.6451354>]
- [4] N. Tagami, M. Okada, N. Hirai, T. Tanaka, Y. Ohki, T. Imai, M. Harada, and M. Ochi, *2007 Annual Report (Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena, 2007)* p. 232.
- [5] N. Fuse, H. Sato, Y. Ohki, and T. Tanaka, *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, **16**,

- 524 (2009). [DOI: <http://dx.doi.org/10.1109/TDEI.2009.4815188>]
- [6] P. K. Poovamma, T. R. Afzal Ahmed, and C. Viswanatha, *Electrical Insulation and Dielectric Phenomena (CEIDP)* (2012 Annual Report Conference, 2012) p. 291.
- [7] M. F. Fréchette, H. D. Martinez, S. Savoie, A. Krivda, L. E. Schmidt, and D. Zegarac, *Electrical Insulation (ISEI)* (Conference Record of the 2010 IEEE International Symposium, 2010) p. 1.
- [8] J. Castellon, H. N. Nguyen, S. Agnel, A. Toureille, M. Frechette, S. Savoie, and A. Krivda, *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, **18**, 651 (2011).
[DOI: <http://dx.doi.org/10.1109/TDEI.2011.5931049>]
- [9] T. Rouyre, A. C. Taylor, M. Fu, F. Perrot, and I. James, *10th IEEE International Conference on Solid Dielectrics*, 1 (2010).
- [10] A. K. Jonscher, *Dielectric Relaxation of Solids* (Chelsea Press, 1983)
- [11] S. Singha and M. Joy Thomas, *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, **15**, 12 (2008).
[DOI: <http://dx.doi.org/10.1109/T-DEI.2008.4446732>]
- [12] R. Kochetov, T. Andritsch, P.H.F. Morshuis, and J. J. Smit, *Electrical Insulating Materials (ISEIM)* (International Conference, 2011) p. 383.
- [13] J. Katayama, N. Fuse, M. Kozako, T. Tanaka, and Y. Ohki, *Electrical Insulation and Dielectric Phenomena (CEIDP)* (Annual Report Conference, 2011) p. 318.
- [14] A. Livi, V. Levita, and P. A. Rolla, *J. Appl. Polymer Sci.*, **50**, 1583 (1993).
[DOI: <http://dx.doi.org/10.1002/app.1993.070500912>]
- [15] L. D. Zhang, H. F. Zhang, G. Z. Wang, C. M. Mo, and Y. Zhang, *Phys. Stat. Sol.*, **157**, 483 (1996).
[DOI: <http://dx.doi.org/10.1002/pssa.2211570232>]
- [16] L. M. Levinson and H. R. Philipp, *J. Appl. Phys.*, **47**, 1117 (1976).
[DOI: <http://dx.doi.org/10.1063/1.322745>]