

# 시뮬레이션에 의한 활성화 에너지 오차 보정

김기준<sup>o</sup>, 박승협<sup>\*</sup>, 홍진웅<sup>\*\*</sup>, 이준웅<sup>\*\*</sup>

\* 한국원자력연구소 \*\* 광운대학교 전기공학과 교수

## Error Correction of the Activation Energy by a Simulation Method

Ki-Joon Kim<sup>o</sup>, Seung-Hyub Park<sup>\*</sup>, Jin-Woong Hong<sup>\*\*</sup>, Joon-Ung Lee<sup>\*\*</sup>

\* Korea Atomic Energy Research Institute

\*\* Dept. of Elect. Eng. Kwang Woon Univ.

### Abstract

In this paper, to investigate the activation energy, dipole moment, relaxation time, and so on related to charged particles more completely, it was applied numerical method of asymptotic estimation to separate single relaxation from TSC spectra with a complex relaxation. As a result, we could calculate the error of physical factors related to charged particles of specimen, more accurately.

#### 1. 서론

절연 재료의 특성을 명확히 분석하기 위해서는 하전 입자에 관련된 물리적 제정수를 정확히 산출해야 하는데 열자격 전류식은 특성 자체가 워낙 비선형적이기 때문에 이러한 제정수를 명확히 구한다는 것은 매우 어렵다. 입자에 관련된 활성화 에너지 및 완화 시간등의 기본적인 물리량을 구하기 위한 방법으로 여러가지 해석법이 제안되어 사용되어 지고 있는데, 이러한 각 방법은 실시 조건에 따라서 간편하고 정확하게 활성화 에너지를 구할 수도 있으나, 만약 해당 조건에 만족하지 않는 경우에 그 값은 많은 오차를 함유하는 것으로 보고되고 있다.<sup>[1,2]</sup> 또한 열자격 전류식중에 포함된 적분항은 자체값이 워낙 작기 때문에 대부분 계산 과정에서 무시되어진다.<sup>[3]</sup>

따라서 본 논문에서는 열자격 전류를 측정하여 하전 입자와 관련된 활성화 에너지, 쌍극자 모멘트 및 완화 시간등의 물리적 제정수를 보다 명확하게 규명하기 위하여 열자격 전류식에 포함되어 있는 적분항식을 점근 해법 기법을 이용하여 수치 해석 처리하였으며, 컴퓨터 시뮬레이션에 의하여 물리적 제정수의 값을 보정하였다.

#### 2. 열자격 전류식의 점근 해법

단일 완화 형태로 분리된 열자격 전류값에 점근 해법을 적용하므로써 각각의 물리적 제정수를 보다 명확히 구할 수가 있다.<sup>[4]</sup> 일반적으로 Slow Retrapping하에서 일정한 온도 상승 비율을 가진 열자격 전류식은 다음과 같이 표시된다.

$$I(\tau) = I_0 \exp\left[-\frac{E_t}{kT} - \frac{\nu}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E_t}{kT'}\right) dT'\right] \quad (1)$$

이다. 여기서  $k$ 는 볼츠만 상수,  $\nu$ 는 이탈 주파수 인자,  $E_t$ 는 활성화 에너지, 그리고  $\beta$ 는 승은 속도이다.

임의의 온도  $T_i$ 에서의 전류값인  $I(T_i)$ 와 피크 온도  $T_p$ 에서의 전류값  $I(T_p)$ 의 비를 계산하여 양변에  $\ln$ 을 취하고 점근 해법을 적용하기 위하여

$$X = \frac{E_t}{(kT')} \text{라 가정하여 } X_p = \frac{E_t}{kT_p}, X_i = \frac{E_t}{kT_i} \text{라}$$

$$\text{하면 } dx = -\frac{E_t}{k} \left(\frac{1}{T}\right)^2 dt, dT = -\left(\frac{k}{E_t}\right) T^2 dx \text{가 되므로}$$

이를 식(1)의 적분항에 대입하여 부분 적분하면

$$\int_{T_i}^{T_p} \exp(-X) \left(-\frac{kT^2}{E_t}\right) dx = \left(\frac{E_t}{k}\right) \left[\frac{\exp(-X_p)}{X_p} - \frac{\exp(-X_i)}{X_i}\right] + \int_{X_i}^{\infty} \frac{\exp(-X)}{X} dx - \int_{X_p}^{\infty} \frac{\exp(-X)}{X} dx \quad (2)$$

된다.

$$\text{여기서 } X_i - X_p = D = \frac{E_t}{k} \left(\frac{1}{T_i} - \frac{1}{T_p}\right) \text{라 하여 (2)식}$$

에 대입하여 정리하면 활성화 에너지를 구할 수 있다. 이때 적분항에 있는  $\frac{\nu}{\beta} \frac{E_t}{kX_p^2} \exp(-X_p)$ 의 값은

점근 해법에 의하여 최대 1이 되기 때문에 결국

$$\frac{\nu}{\beta} \frac{E_t}{k} = X_p^2 \exp(-X_p) \text{가 되어 } D \text{의 값을 구한 후}$$

(3)식에 대입하여 정리하면 정확한 활성화 에너지를 구할 수 있다.

$$E_t = D \frac{KT_p T_i}{T_p - T_i} \quad (3)$$

이때  $D$ 의 값은 처음에는 임의의 값을 주어져  $i$  번째에서  $i-1$  번째와의 차이가  $10^{-5}$  보다 작게 될 때까지 반복하여 값을 구하게 된다.

#### 3. 실험

본 연구에 사용된 시료는 Kureha Chemical(日)사 제품인 2축 연신된 PVF<sub>2</sub> 필름으로서  $\alpha$ 형 결정 구조를 가지고 있으며 그외에 주요 물성은 표 1과 같다.

표 1. PVF<sub>2</sub>의 물성  
Table 1. Physical Properties of PVF<sub>2</sub>

종 류	단 위	값
Density	g/cm <sup>3</sup>	1.75 ~ 1.78
Degree of Crystal	%	51 ~ 70
Tg	℃	-35
Melting Point	℃	170

실험 장치는 항온조(Toyo Seiki사), 온도 조절 장치(Toyo Seiki사) 및 직류 전압 발생 장치(Peschel Instrument Model H50, USA)였으며, 그림 1과 같이 연결하여 측정하였다. 또한 측정 방법은 형성 온도 40[℃]에서 145[℃]까지 일정하게 유지하면서 형성 전계 1[MV/m] ~ 10[MV/m]를 1분에서 480분 동안 변화시켜 인가하면서 -100[℃]까지 급냉한 일렉트렛트로부터 5[℃/min]로 승온시키면서 열자격 전류를 측정하였다.

#### 4. 컴퓨터 시뮬레이션

S. Haridoss는 1978년에 CSMP(Continuous System Modeling Program) 언어를 사용하여 열자격 전류식의 모델링 및 시뮬레이션을 구현하였으며,<sup>[5]</sup> 1980년대에 들어서 Maeta와 Sakaguchi는 열자격 전류 실험값을 이용하여 수치 해석적 기법으로 해석함으로써 이론적 값을 유도하였다.<sup>[4]</sup> 이들의 연구 목표와 같이 PVF<sub>2</sub>의 열자격 전류 곡선의 시뮬레이션은 수행하기 위하여 (1)식의 적분항을 접근 해법에 의하여 정리하면

$$I(T) = A \exp(-B - C \exp(-B)T^2) \quad (4)$$

로 되며, 여기서 C와 B는 각각  $\frac{\nu}{\beta} \frac{E_t}{k}$ ,  $\frac{E_t}{kT}$ 가 된다.

한편 N.S. Mohan과 R. Chen은 상수 C를  $\exp(B_m) \frac{B_m^3}{(B_m+2)}$ 로 근사화하였는데, 여기서 B<sub>m</sub>

은  $\frac{E_t}{kT_m}$ 이다.<sup>[6]</sup>

곡선의 최대 온도값은 이미 알고 있는 값이기 때문에 C, B를 구하고 (4)식에 대입하여 계산하면 시뮬레이션을 수행할 수 있다. 상수 A값은 시뮬레이션에 의하여 구한 열자격 전류의 최대값과 실험값으로 구한 최대값의 비로서 제조정하여 구하게 되는데, 이때 열자격 전류의 시뮬레이션 결과를 I(T<sub>s</sub>)라 하고 실험에서 얻은 열자격 전류식을 I(T)라 하면 각각 온도 T<sub>i</sub> (i=1,2,3,...,N)에서의 i번째 단일 완화 피크에 대한 최적치(Most Optimal Value)를 구하기 위하여 식(5)에서와 같이 최소 자승법(Least Square

$S = \sum [I(T_s) - I(T)]^2$  (5)  
Method)의 값이 최소가 되는 값을 구함으로써 최적 시뮬레이션을 할 수 있었다.

#### 5. 결과 및 검토

##### 5.1 실험

그림 2에서 나타난바와 같이 4개의 피크가 나타났는데 이들의 명칭을 고온에서 저온측으로 내려가면서 α', α, β<sub>2</sub>, 그리고 β<sub>1</sub>이라 하였고, 이중 가장 큰 피크가 α 피크임을 확인하였다. 이러한 열자격 전류 곡선을 살펴보면 -35[℃]에서 β<sub>2</sub> 피크와 0[℃] 근처에서 β<sub>1</sub> 피크를 각각 얻었는데, 전계 2x10<sup>6</sup> [V/m] 이하의 영역에서는 60[℃]와 85[℃] 근처에서 α 피크와 α' 피크를, 4x10<sup>6</sup> [V/m] 이상의 영역에서는 약 68[℃] 부근에서 α 피크를 각각 얻었다. 또한 α 피크는 2x10<sup>6</sup> [V/m] 이하의 전계에서는 60[℃]로 일정함을 알 수 있으나, 그 이상의 전계 영역에서 최대 온도는 67[℃]에서 70[℃]로 형성 전계에 따라 고온측으로 이동함을 알 수 있다. β<sub>2</sub>, β<sub>1</sub> 피크는 전계의 증가와 더불어 피크 전류가 직선적으로 증가하고 있으며, 이와 같은 현상은 쌍극자에 의한 기여로 생각할 수 있다. 또한 α 피크는 형성 전계의 증가에 따라 최대 전류값이 비선형적으로 변화하고, 고전계 영역에서는 포화하는 경향을 보이고 있기 때문에 β<sub>2</sub> 또는 β<sub>1</sub> 피크일때와 같은 쌍극자에 의한 기여로 볼 수 없다. 이들 곡선에 대한 ln I와 1/T로서 Arrhenius Plot하여 직선의 기울기로 부터 초기 상승법을 이용하여 활성화 에너지의 분포를 분석한 결과 β<sub>2</sub>, β<sub>1</sub>, α 피크의 활성화 에너지 분포는 각각 0.01~0.39, 0.2~0.25, 0.3~0.95[eV]로 관측되었다.

한편 접근 해법을 이용하여 각 피크에서의 최대 온도와 전류비의 값, 활성화 에너지, 그리고 유전 완화 시간의 값을 계산한 결과 초기 상승법에 의한 활성화 에너지와 비교하면 β<sub>2</sub> 피크와 β<sub>1</sub> 피크에서는 최대 오차가 각각 15[%] 정도이었고, α 피크에서는 최대 13[%]의 오차가 있음을 확인하였다. 이것에 대한 이유는 초기 상승법은 적분항을 0으로 가정하여 활성화 에너지만을 계산한 것이고, 접근 해법에 의한 활성화 에너지 계산은 적분항도 포함하여 계산하였다.

##### 5.2 컴퓨터 시뮬레이션

수치 해석 기법중 접근 해법 알고리즘을 이용하여 열자격 전류의 시뮬레이션 수행 결과를 살펴 보면, 그림 3에서 도시된 것과 같이 먼저 계산된 활성화 에너지의 값이 최적치보다 작을 경우에는 시뮬레이션에 의한 곡선은 최대값을 제외한 다른값들의 분포가 실험 곡선보다 상단부에 위치하게 되고 반면에 크게 계산이 되어졌을 경우에는 최대값을 제외한 나머지의 값은 실험 곡선 보다 하단부에 분포하는 경향을 보이고 있다. 이것은 실험값과 시뮬레이션 결과값을 식 (5)에 대입하여 계산할 경우 S의 값이 양(+)의 값이 나올 경우에는 활성화에너지는 5~6 [%] 정도 증가하게 되고, 반대로 음(-)이 되면 활성화 에너지의 값은 5~6[%] 정도 감소하는 경향을 보이고 있다. 따라서 시뮬레이션에 의한 곡선을 실험 곡선에 일치 시켰을때 만약 이 두 곡선이 정확하게 일치가 안될 경우에는 식 (5)에 의한 S의 값을 구하여 활성화 에너지의 값을 제조정함으로써 이 값을 보정할 수 있었다. 또한 본 연구에서 수행한 시뮬레이션의 결과는 그림 4에서와 같이 단일 완화 곡선이 중복되는 부근에서의 실험과 시뮬레이션에 의한 열자격 전류 곡선을 제외하고는 두 곡선이 잘

일치하고 있다. 이러한 단일 완화 곡선의 중복되는 부근에서 오차가 많이 발생하는 이유는 실험 장비 및 실험 조건에서 발생하는 것과 시뮬레이션 실행시 근사화 과정이 각 피크를 중심으로 하여 상승부와 하강부에는 적용이 잘 되는 양상을 보인 반면에 곡선의 처음과 끝부분에는 근사화 모델링에 대한 일반적인 적용이 매우 힘들다는 결과를 얻었다.

### 6. 결론

본 연구에서는 수치 해석과 시뮬레이션 기법을 이용하여 PVF<sub>2</sub> 필름의 열자극 전류 특성을 분석하였는데 그 결과를 요약하면 다음과 같다.

- 1) 접근 해법 기법을 이용한 수치 해석 적용 결과 얻어진 활성화 에너지는 초기 상승법에 비하여  $\beta_2$  피크와  $\beta_1$  피크에서는 각각 15[%], 그리고  $\alpha$  피크에서는 최대 13[%]의 적분항 계산에 대한 오차를 줄일 수 있었다.
- 2) 접근 해법에 의한 알고리즘을 사용하여 시뮬레이션을 시도한 결과 전 온도 범위에 걸쳐 실험 값과 잘 일치하고 있으며,
- 3) 특히 시뮬레이션 기법에 의한 활성화 에너지 값을 보정함으로써 최적값을 유도할 수 있었다.

### 참고 문헌

1. S. Maeta and F. Yoshida, "On the Determination of the Trap Depths from Thermally Stimulated Current II," Jap. Journal of Appl. Phys., Vol. 28, No. 9, pp.1727~1717(1989)
2. K.J. Kim, S.H. Park, C.H. Kim, and J.U. Lee, "Error Correction of the Activation Energy of TSC by using a Asymptotic Estimation Method," KIEEME 추계 학술대회 논문집, pp.118~122(1992)
3. J.U. Lee, K.J. Kim, S.H. Park, and J.U. Hong, "TSC of the PVDF Film using Data Acquisition under Room Temperature," 대한 전기학회 창립 40주년 기념 학술 대회 논문집, pp.480~483(1987)
4. S. Maeta and K. Sakaguchi, "On the Determining of Trap Depth from Thermally Stimulated Current," Jap. J. of Appl. Phys., Vol. 19, No. 3, pp.519~526(1980)
5. S. Haridoss, "Simulation of Thermoluminescence and Thermally Stimulated Currents," J. of Computational Physics, Vol. 26, pp.232~235(1978)
6. N.S. Mohan and R. Chen, "Numerical Curve Fitting for Calculation Glow Parameters," J. Phys. D:Appl. Physics., Vol. 3, pp.243~247(1970)

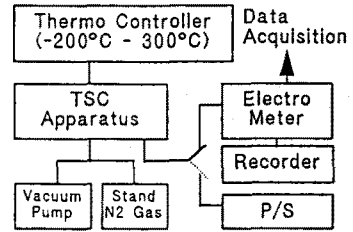


그림 1. 실험 장치의 블럭 선도  
Fig. 1 Block Diagram of Experimental Device

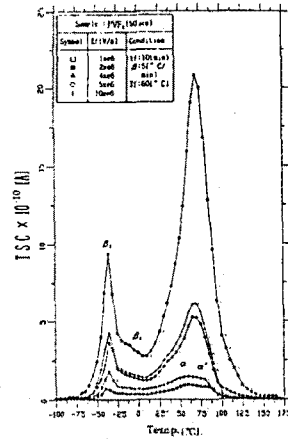


그림 2. 형성 전계에 따른 열자극 전류 곡선  
Fig. 2 TSC Spectra as Function of Forming Field

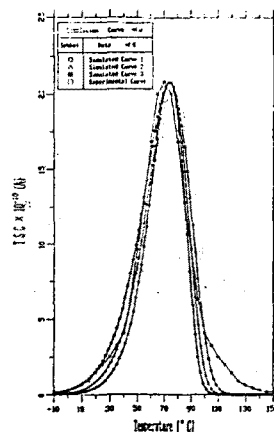


그림 3. 활성화 에너지에 의하여 모사된 열자극 전류 곡선  
Fig. 3 TSC Curve Simulated by Activation Energy

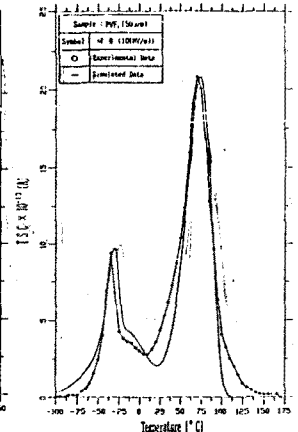


그림 4. 10[MV/m]일 때 시뮬레이션과 실험 곡선의 비교  
Fig. 4 Comparison of Simulated and Experimental Curves at 10[MV/m]