

PE 박막의 절연 파괴 특성에 미치는 결정구조의 영향

Effects of crystal structure on the dielectric breakdown of polyethylene thin film

김종석*, 신동국*, 한상옥**, 박강식***

* 대전산업대학교 전기공학과, **충남대학교 전기공학과, *** 충남전문대학 전기과

J. S. KIM, D. K. SHIN, S.O. HAN, K. S. PARK

TaeJon national univ. of tech., ChungNam national univ. ChungNam Junior college

ABSTRACT

In this paper, We studied polyethylene thin film to evaluate the effects of crystal structure on breakdown properties and the dielectric strength on the condition of impurity free. Dielectric strength of the film obtained with self healing method that is able to test repeatedly on the same sample is about 3.58 MV/cm at 0.73 μm . The film shows outstanding crystal domain and crystal structure. The size of spherulites obtained reach 150-200 μm in diameter.

1. 서 론

최근 급속한 산업화로 매년 전력수요가 급격히 증가하고 있으며 이에 따라 점차 전력설비의 대응량화 및 송배전선로의 고전압화가 추진되고 있다. 이와 같은 추세에 따라 전력기기나 설비에 사용되는 절연재료 역시 보다 높은 절연내력이 요구되며, 또한 기기의 소형 경량화경향에 따라 점차 사용조건이 가혹하게 되어 가고 있다 따라서 보다 우수한 특성을 갖는 절연재료의 개발 및 기존 절연재료의 성능향상을 위한 연구노력이 끊임없이 진행되고 있다.

고분자 절연재료중 폴리에틸렌은 절연특성이 우수하면서도 가공성이 좋고 유전손율이 낮아 절연재료 이외에

도 산업전반에 걸쳐 널리 사용되고 있다. 현재까지 폴리에틸렌에 대해서는 많은 연구가 진행되어 왔으며, 이러한 노력에 의해 파괴 및 전도특성에 대한 해석이 많이 이루어져 왔으나 고분자가 갖는 구조적 특성상 아직도 전기적 특성 해석에 다소 미흡한 분야가 남아 있다.

폴리에틸렌은 결정화도가 50 % 내외의 반결정성 고분자로서 결정이 3차원의 고차 구조로 배치되어 전도 및 파괴특성의 해석에 많은 어려움을 주고 있다.

따라서 본 연구에서는 고차구조를 갖는 폴리에틸렌에서 결정 구조가 파괴특성에 미치는 영향을 조사하기 위하여 폴리에틸렌을 1 μm 이하의 극히 얇은 막으로 제작하여 결정을 성장시킴으로서 폴리에틸렌의 구정을 2차원의 판상에서 크게 형성 시키고, 이들의 파괴특성을 관측하여 각 영역별 파괴거동을 규명하고자 한다.

2. 시편의 제작 및 측정

2.1 시편의 제작

본 연구에서 이용한 원 시료는 삼성화학에서 제작된 고밀도폴리에틸렌(HDPE)로서 밀도 0.958 g/mm^3 이고, 용융온도 132 $^{\circ}\text{C}$, 용융지수는 0.35 이다. 절연시험을 위하여 펠렛으로 부터 박막을 작성하였으며 박막의 작성에 앞서 불순물에 의한 전기적 특성의 영향을 배제하기 위하여 크실렌(Xylene)을 용매로 하여 140 $^{\circ}\text{C}$ 에서 용액으로 만든 다음, 필터를 이용하여 여과시킴으로서 산화방지제나 계면활성제등 각종 첨가제와 분자량이 낮은 저분자량 성분을 제거한 고분자 성분만을 얻었다. 이와같이 하여 얻어진 시료는 다시 크실렌으로 녹

여 퇴박응액으로 만든후, 미리 하부전극을 증착하여 준비한 글라스기판위에 적하시켜 박막화 한후 시험 조건에 따라 건조와 열처리를 하였다. 건조는 진공건조를 하였으며 열처리 는 막을 140 ℃ 로 올린후 2시간 정도 유지시킨 다음 80 ℃까지 분당 1 ℃의 속도로 낮춘후 실온까지 자연냉각 처리 하였다. 그런 다음 하부전극에 직각방향으로 상부전극을 증착하였으며, 전극의 두께는 하부전극은 1000 - 2000 Å 정도로 하였으며 상부전극은 자기 절연회복 파괴특성 시험을 위하여 두께를 200 - 500 Å 정도로 비교적 얇게 증착하였다. 제작된 시편의 구조를 그림 1 에 나타냈다.

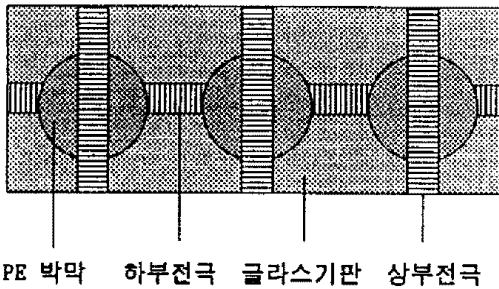


그림 1 제작된 시편의 구조

Fig. Structure of fabricated specimens

2.2 측정

2.2.1 막 두께의 측정

작성된 폴리에틸렌 박막은 1 μm 이하의 매우 얇은 막이기 때문에 두께의 측정이 용이하지 않아 주파수 1 KHz 에서 정전용량을 측정한후, 계산에 의해 두께로 환산하였다. 환산에 필요한 폴리에틸렌의 비유전율은 2.2 로 하였다. 전극의 두께 측정은 진공증착시 별도의 기판에서 저항값을 측정후 저항과 두께곡선으로 부터 구하였다.

2.2.2 PE막의 결정형상 관측

본 실험에서는 막의 결정영역과 비결정영역의 파괴거동을 관측하기 위하여 결정을 가능한 크게 형성 하였으며 열처리에 의해 형성된 결정의 형상과 크기를 전자현미경과 광학 현미경을 통하여 관측하였다.

2.2.3 파괴전계의 측정

폴리에틸렌 박막의 파괴시험은 자기절연회복 시험법을 이용하였다. 자기 절연회복 파괴 시험은 동일 시료에 대하여 반복적으로 파괴시험을 반복하는 방법으로서 시료의 제작시 혼입된 불순물 등에 의해 절연취약부에서 부분적인 파괴가 일어나는 것을 이용하여 그 부분의 전

극을 자동적으로 제거되도록 하는 방법이다. 이와 같은 방법을 이용함으로써 한번 파괴를 일으켰던 부분은 다음 파괴에 관여 하지 않도록 함으로서 파괴를 반복함에 따라 점차 물순물 부분이 제거되어 재료 본래의 절연내력을 측정할 수 있도록 하였다.

3. 결과 및 고찰

3.1 PE막의 결정구조 및 형상

그림 2는 열처리에 의해 형성된 PE의 결정을 SEM과 광학현미경을 통하여 관측한 것이다. 본 실험에서는 PE막의 결정영역과 비결정영역이 절연파괴시 어떠한 거동을 보이는가 관측하기 위하여 가능한 한 결정을 크게 만들어 지도록 하기 위하여 막을 박막화 하였다. 그 결과 결정이 두께 방향으로 는 성장하지 못하고 방사상의 면 방향으로 결정이 형성됨으로서 대면적의 결정이 형성되었으며 성장된 결정들이 만나 이루어진 domain이 명확하게 관측되었다. 결정에 대한 광학현미경 사진에서 결정이 고분자 체인의 규칙적인 배열에 의해 생긴 라멜라들로 이루어져 있음을 관측할 수 있었다. 또한 결정의 형성은 결정의 중심에 위치하고 있는 결정의 핵에서 부터 출발하여 방사상으로 진행하며, 핵이 다수 분포되어 있는곳에서는 결정간의 영역확장이 제한되어 결정의 크기가 작으나 핵의 밀도가 적은쪽에서는 결정의 성장에 제약을 덜 받기 때문에 보다 큰 결정이 형성되며 결정의 직경이 150- 200 μm 로 매우 큰 결정이 형성됨을 관측할 수 있었다. 이와 같이 결정이 크게 형성 됨에 따라 관학 현미경으로도 충분히 관측할 수 있었으며, 광학현미경으로 배율 400 배로 확대한 결정의 형상을 그림 3 에 나타냈다.

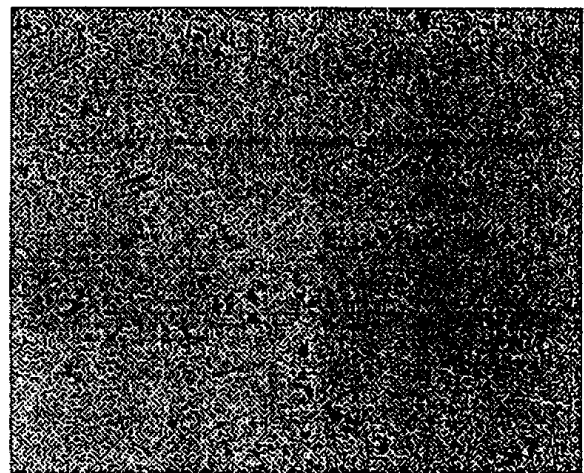


그림 2 폴리에틸렌 결정 구조의 SEM 사진

Fig. 2 Scanning electron micrograph of crystal structure of polyethylene

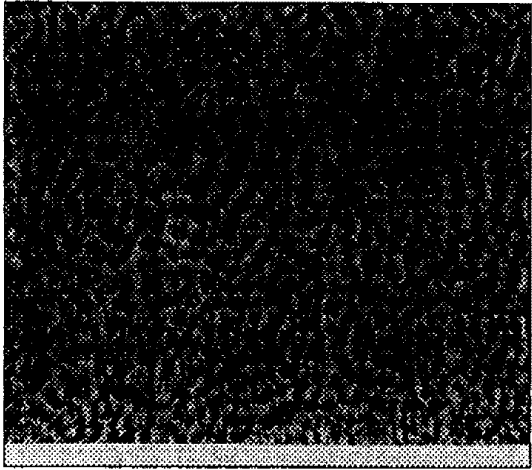


그림 3 폴리에틸렌 결정 구조의 광학현미경 사진
Fig. 3 Optical micrograph of crystal structure of polyethylene

3.2 폴리에틸렌의 자기절연회복특성

두께가 마이크로 메타 이하의 박막형의 절연막에서는 매우 작은 불순물에 의해서도 절연특성에 많은 영향을 받게 된다. 특히 실험실에서 막을 제작과정에서 불순물이 혼입될수 있는 여러 가지 요인들이 존재하기 때문에 이들이 막 고유의 절연내력에 미치는 영향을 제거하여야 만 막자체의 순수 절연파괴 강도를 구할 수 있다. 이와 같이 막 두께가 매우 얇은 박막형 절연재료의 경우 절연파괴는 자기절연회복법을 이용하면 보다 정확한 파괴전계를 구할 수 있다. 자기절연회복법은 동일한 시료에 전압을 서서히 증가시켜 가면 불순물 혼입등에 의한 절연의 취약부에서 저전압에서도 상하전극간에 방전이 발생하며, 방전시 발생하는 열로 방전을 일으킨 지점을 중심으로 높은 열이 발생하게 된다. 이때 방전이 발생하는 순간 전류를 신속히 차단하면 높은 열은 방전부분에만 국한 되고 넓은 범위로 확산되지 않고 방전부분만 국소적으로 전극이 응용, 기화 됨으로서 그 부분의 전극이 자동적으로 제거되도록 하는 방법이다. 이와 같은 방법에 의해 절연이 취약한 부분만의 전극을 제거한 후 동일한 시료에 다시 인가전압을 저전압으로 점차 증가시켜 가면 이전에 전극이 제거된 절연취약부는 다음번의 파괴시 작용을 하지 못하게 되며, 다른 불순물 입자에 의한 새로운 절연취약부에서 방전이 발생하고 그 부분의 전극이 제거된다. 이와 같은 동작을 수십회 이상 반복해 가면 불순물이 자리한 부분이 순차적으로 제거되어 절연파괴를 일으키는 전압은 점차 상승하게 되고 파괴전압은 더 이상 증가하지 않고 포화되

게 되며 이 때 순수한 폴리에틸렌만의 파괴전계를 얻을 수 있다.

이때 자기절연회복 파괴는 상하부 전극의 두께와 전류 및 전류의 차단시간에 영향을 받게 되어 전극의 두께가 너무 두꺼울 경우에는 전극이 제거되지 못하는 결과를 가져 오게 된다. 자기절연회복법에 의해 얻어진 파괴공의 형상을 그림 4 에 나타냈다.



그림 4 자기절연회복법에 의한 절연파괴 패턴
Fig. 4 Dielectric breakdown pattern of polyethylene film by using self healing method

3.3 파괴전계와 파괴반복횟수의 관계

그림 5는 두께가 $1.18 \mu\text{m}$ 의 시료에 대해 전압상승율 400 V/s 로 하여 측정한 파괴전계특성을 나타낸 것이다. 파괴전계는 파괴 횟수가 증가할수록 급격히 증가하고 약 30 여회 이상 반복하면 파괴전계가 거의 포화되어 일정한 값을 나타냈다. 파괴곡선이 포화된 상태에서의 파괴전계가 불순물의 영향이 개입되지 않은 순수한 PE 만의 파괴전계를 나타낸다. 이때 파괴전계가 포화되는 횟수는 시료에 따라 다소 편차를 보이는데 이와 같은 결과는 시료의 제작시 혼입되는 불순물의 농도에 따라 달라지는 것으로 볼 수 있다.

3.4 파괴전계의 두께 의존성

그림 6은 시료의 두께에 따른 파괴전계 의존성을 나타낸 것으로 이 실험법에서도 두꺼운 쪽의 시료에 비해서 얇은 쪽의 시료에 대한 파괴전계가 높게 나타났으며 이와 같은 특성은 동일한 전계가 시료에 인가된다 하여도 두꺼운쪽의 시료의 전극부분에서의 전계가 보다 높아져 전극부분의 부분방전에 의해 파괴전계가 낮아지는 것으로 생각된다.

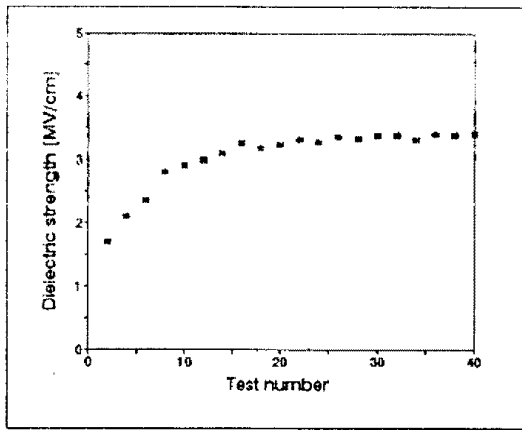


그림 5. PE 박막의 반복파괴횟수에 따른 파괴전계특성
 Fig. 5 Dielectric breakdown properties of PE film on the number of breakdown test

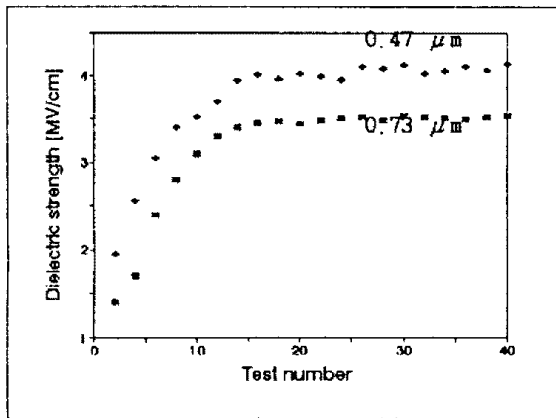


그림 6. 절연파괴전계의 두께의존성
 Fig. 6 Thickness dependence of dielectric breakdown field

4. 결 론

불순물 효과들을 제거하기 위하여 정제된 폴리에틸렌으로부터 박막을 제작한후 열처리에 의해 구멍을 형성시켜 이들의 구조적 특성과 절연파괴 특성을 조사한 결과 PE막 내부의 구멍의 직경이 150 - 200 μm 정도의 대형 결정의 형성이 가능하였다. 이 박막으로부터 자기 절연회복법에 의해 절연파괴특성을 조사한 결과 파괴시험횟수가 증가함에 따라 파괴전계가 점차 증가하여 포화되는 경향을 나타냈으며, 막 두께 0.73 μm의 경우 절연파괴강도는 3.58 MV/cm, 0.47 μm의 경우 4.1 MV/cm를 나타냈다.

참고문헌

1. K. Yashino, S. Harada, J. Kyokane and Y. Inuishi, "Temperature dependence of dielectric breakdown of C₃₇H₇₄ single crystal", Jpn. Appl. Phys., Vol. 18, No. 3, 1979.
2. M. Ieda, "Dielectric Breakdown process of polymer", IEEE, Trans. Vol. EI-15, No. 3, 1980.
3. K. Kitagawa, G. Sawa, M. Ieda, "Electric breakdown of solution-grown polyethylene films without spherulite", Jap. J. Appl. Phys., Vol. 21, No. 8, 1982.
4. K. Yahagi, "Dielectric properties and Morphology in polyethylene", IEEE Trans. Vol. EI-15, No. 3, 1980.
5. Kazuo Lida, Jong Suk Kim, "Effects of molecular structure on electrical conduction in low density polyethylene above its melting point", IEEE Trans. on Elec. Insul. Vol. 27, No. 2, 1992.