

## 강유전체에서의 전계분포 및 절연파괴

신병철 · 김호기  
한국과학기술원 재료공학과  
(1987년 5월 6일 접수)

### Dielectric Breakdown and Electric Stress Distribution in Ferroelectrics

Byoung-Chul Shin and Ho-Gi Kim

Department of Materials Science and Engineering, KAIST  
(Received May 6, 1987)

#### 요 약

순수한 티탄산바륨을 1340°C에서 2, 4, 8, 16 시간 소결하여, 상승하는 교류 전계 하에서 절연파괴 및 부분방전 시험을 행하였다. 소결시간이 증가하면서, 평균 결정립 크기가 증가했고, 절연파괴 전계는 약간 감소하였다. 고전압 인가시 티탄산바륨의 기공에서 부분방전이 발생하고 있음을 관찰하였으며, 절연파괴 과정을 제시하였다.

#### ABSTRACT

Pure barium titanate was sintered at 1340°C for 2, 4, 8, 16 hr to control their grain size. The measurements of breakdown strength and partial discharge characteristics were performed under rising AC voltage(60Hz). With increase of sintering time, the average grain size was increased and breakdown strength was slightly decreased. Partial discharge in pores was observed under high voltage, and a model of dielectric breakdown in barium titanate ceramics is proposed.

#### 1. 서 론

일반적으로 임의의 소자에 기준치 이상의 과전압이 인가되었을 때 시간이 지남에 따라 절연저항이 감소되는 현상인 퇴화가 시작되며, 궁극적으로 절연성을 상실하게 되는데, 이러한 현상을 절연파괴라 한다. 위 현상에 관한 가장 중요한 문제는 세라믹 강유전체의 퇴화 및 절연파괴가 어디에서 시작되고, 어떤 과정을 거쳐 진행되는가 하는 것이다. 이에 관한 연구사례를 살펴보면, 1975년 서독의 Schomann<sup>1)</sup>에 의해 전자세

라믹스의 주요물질인 다결정 BaTiO<sub>3</sub>의 절연파괴에 대한 이론적 고찰이 처음 시도된 이래, 높은 신뢰도가 요구되는 고전압 세라믹 콘덴서와 다층콘덴서에 있어서 비파괴 기술로 신뢰도를 예측하는 방법중의 하나인 부분방전(partial discharge)에 관한 연구가 Bever(1982)<sup>2)</sup> 등에 의해 발표되었다. 부분방전이 발생하면 유전 손실이 증가하여 콘덴서의 기능을 상실한다. 따라서 부분방전 개시전압을 측정하면 소자의 안전 사용전압을 미리 알 수 있다.

본 연구에서는, 고전압 인가시 재료 내부에서 발

생하는 부분방전이 어떻게 강유전체의 절연파괴에 영향을 미칠 것인가를 조사하였으며, 이를 위해서는 재료의 미세구조와 절부시켜 부분방전 특성을 관찰하고 그 결과를 절연파괴 특성과 비교 분석하고자 한다.

2. 실험방법

평균 입경 1.68  $\mu\text{m}$ , 순도 99%인 BaTiO<sub>3</sub> 분말(Tam Ceramics)에 유기결합제를 약 2wt% 섞어 원판형 및 가운데가 움푹해진 원판형 시편을 제조하였다. 1340 °C에서 소결시간을 변화시켜 기공의 크기 및 입경을 조절하였다. 시편에는 전기적인 물성을 측정하기 위하여 Pd/Au 금속을 2000 Å 두께로 sputtering 시켰다. 시편의 전면이 아니라 가운데 부분에만 전극을 입히는 경우 원형전극 가장자리에 전계가 집중되어 그 부분에서 브레이크다운 채널이 생기는 경우가 많았다. 이렇게 측정된 값은 재료자체의 절연내력과 비례한다고 가정할 수 있으나 절연비율값으로 보기에 는 무리가 많다. 따라서 절연파괴 및 부분방전 실험은 전극의 모양을 그림 1과 같이 만들어서 행하였다. 절연파괴 시험시, 공기중에서의 방전(flash over)을 방지하기 위하여 전기 절연성이 우수한 변압기유 속에서 구형금속구(직경 8mm)의 gap으로 시편을 고정시킨후 전압을 인가하였다. 상온에서 교류전압(60Hz)을 증가시키면서 절연파괴시의 전압을 취하였으며, 부분방전 시험

은 부분방전 측정회로<sup>2)</sup>를 구성하여 행하였으며, 방전량이 5pC 이상인 전압을 부분방전 개시전압으로 취하였다.

3. 결과 및 고찰

그림 2와 표 1에 나타낸 바와 같이 소결시간이 증가하면서 평균입경은 증가하였으나 밀도는 크게 변하지 않았다. 그림 3의 (a)는 절연파괴된 시편에 생긴 브

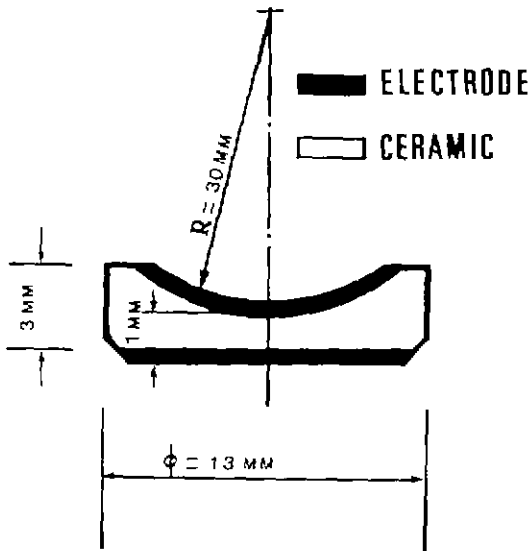


Fig. 1. Electrode arrangement used for breakdown and partial discharge test in barium titanate ceramics.



Fig. 2. Microstructure of barium titanate ceramics sintered at 1340 °C (a) for 2 hr, (b) for 8 hr (bar = 100  $\mu\text{m}$ ).

Table 1. Breakdown Characteristics and Physical Properties of Barium Titanate Ceramics.

Sintering Time at 1340 °C (hr)	2	4	8	16
Breakdown Field (Volt/mm)	4020 ( $\pm 173$ )	3780 ( $\pm 202$ )	3771 ( $\pm 152$ )	3588 ( $\pm 240$ )*
Partial Discharge Inception Field (Volt/mm)	208 ( $\pm 47$ )	342 ( $\pm 76$ )	229 ( $\pm 61$ )	224 ( $\pm 36$ )
Sintering Shrinkage (%)	16.11	16.35	16.33	16.36
Average Grain Size ( $\mu\text{m}$ )	13	16	23	49

\* Standard deviation.

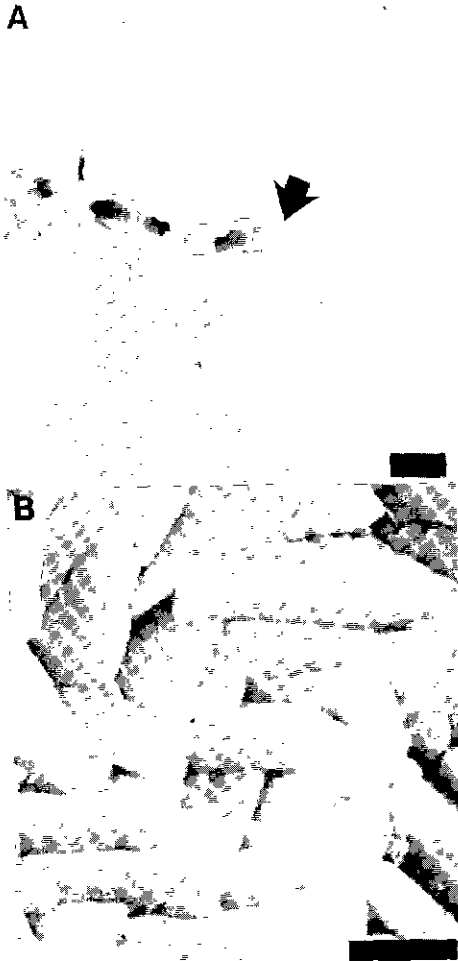


Fig. 3. (a) SEM photograph showing breakdown channel of barium titanate ceramics (bar = 200  $\mu\text{m}$ )  
 (b) Magnified SEM photograph of arrow mark of (a), (bar = 2  $\mu\text{m}$ ).

레이크다운 채널이고 그채널의 내벽을 좀더 자세히 살펴 보면, 그림 3의 (b)와 같이 2~3  $\mu\text{m}$  정도의 직각기둥 모양의 입자들로 이루어져 있다. 이러한 구조는 일반적인 파괴표면(그림 4)과 달리 순간적으로 용융되었던 것으로 보인다. 한편 절연파괴강도는 소결시간의 증가에 따라 약간 감소하였으나, 부분방전 개시전압은 소결시간에 거의 의존하지 않았다.

현재까지 티탄산바륨의 절연파괴는 아래의 두 가지 메카니즘으로 설명되어왔다. 첫째로, 상대유전상수가 높은 결정립에 둘러싸인 중간층에서의 field emission이 계속적인 emission을 야기시켜 티탄산바륨 세라믹스

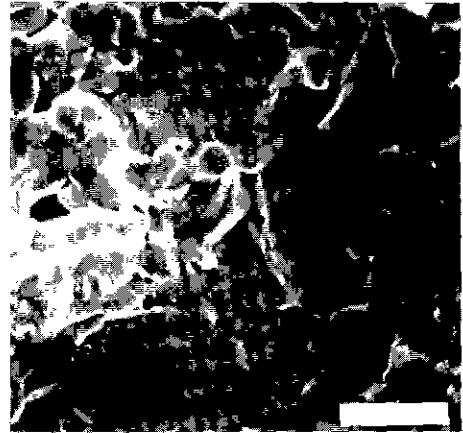


Fig. 4. Mechanical fracture surface of barium titanate ceramics (bar = 20  $\mu\text{m}$ ).

의 절연파괴에 이른다는 이론이 있다.<sup>3, 4)</sup> 시편에 과전압이 인가되었을때 전계방향에 수직으로 존재하는 입계층을 생각해 보자. 티탄산바륨의 경우 입계층의 상대유전상수는 결정립에 비하여 100분의 1 정도로 알려져 있으므로 입계층에 걸리는 전계는 그에 비례하여 커진다. 좀더 정확한 값은 Schomann<sup>13)</sup>에 의하여 제안된 바 있다. 그리하여 절연파괴가 10 kV/mm 정도의 전계하에서 발생하는 경우, 그때 입계층에 걸리는 전압은 1 MV/mm에 이른다고 하였다. 이정도로 큰 전계는 내부 field emission을 일으키기에 충분하고, 그렇게 되면 시편의 절연파괴까지 가능케 한다. 위와 같은 절점립 사이에 존재하는 입계층에서의 전계집중이 절연파괴를 일으킬 것이라는 모델은 평균입경이 증가하면서 절연내력이 감소해야한다. 그러나 표 1의 실험결과에서 보듯이 절연내력은 제산치 만큼 크게 변하지 않았다.

두번째로, Gerson과 Marshall<sup>14)</sup>에 의하면, 기공은 실제 고체부분의 전극간 거리를 감소시키는 것 이외의 다른 효과는 없다고 발표되었다. 또한 기공율이 증가할수록 절연파괴값이 낮다는 실험결과가 제시되었다. 그러나 기공의 역할을 전극간 고체의 두께를 감소시키는 것으로만 볼 수는 없다. 이 경우 기공의 역할은 최근에 관찰되고있는 티탄산바륨 세라믹스에서의 부분방전과 연관성이 있을 것으로 추측할 수 있다. 유기 고분자 재료의 경우 기공(void)에서 부분방전이 발생하면 기공 내벽에서의 지속적인 충격으로 인하여 서서히 미세균열이 전파되거나, 기공 내벽의 전기전도도가 증가하는 것으로 알려져 있다.<sup>15)</sup> 티탄산바륨의 경우 상대유전상수가 약 2000 정도가 되기때문에 유전상

수가 낮은 고분자 재료에 비하여 기공에서의 전계집중이 더욱 심화된다. 또한 기공의 모양에 따라 전계집중 정도가 달라지는데, 기공의 상대 유전상수를 1로 가정하면, 구형인 경우 기공에 걸리는 전계 ( $E_p$ ) 는

$$E_p = \frac{3 \epsilon_r E_a}{1 + 2 \epsilon_r} \simeq \frac{3}{2} E_a$$

정도로 인가전계 ( $E_a$ )의 1.5 배 가량이로 정해져 유전체의 유전상수 ( $\epsilon_r$ ) 나 기공의 크기에 의존하지 않는다<sup>6)</sup>, 판상모양의 기공인 경우  $E_p = \epsilon_r E_a$  이므로 유전체의 유전상수 만큼 전계집중이 일어난다. 실제로 BaTiO<sub>3</sub> 세라믹스 내부 기공은 크게 세가지로 나뉘어진다. 구형에 가까운 결정립 내부의 고립기공, 세개의 결정립으로 둘러싸인 넓적한 기공, 이는 2 차원으로 볼때는 두개의 결정립 사이에 존재하는 것으로 보인다. 또 네개의 결정립 사이에 존재하는 기공이 있다. 이들 중 결정립 내부의 고립기공은 구형에 가까기 때문에 전체의 집중이 덜 일어나고(1.5 배) 기공이 작기 때문에 부분방전이 발생하더라도 충격이 작다. 따라서 열화 및 절연과피에 거의 영향을 주지 않는다. 한편 세개의 결정립으로 둘러싸인 얇고 넓적한 기공 가운데 그 장축이 전계방향에 수직인 것은 전계집중이 극대화되고, 고체의 상대 유전상수가 2000 정도로 높기 때문에 외부에서 가해준 전계의 100 배 이상이 걸린다<sup>6)</sup>. 이 경우 부분방전이 쉽게 발생하며, 기공이 크기 때문에 방전량도 커지게되어 열화 및 절연과피에 영향을 줄 수 있다. 만일 어떤 기공에서 부분방전이 발생하면 방전이 발생한 기공에는 전압이 걸리지 않게 되어 인가된 전압은 순간적으로 나머지 부분에 걸린다. 그러면 방전이 일어나지 않고있던 다른 기공에 과전압이 인가되어 함께 방전한다. 또한 계속해서 전압을 상승시키면, 부분방전이 일어나는 기공의 수가 증가하고 방전시의 전류가 증가한다. 이 값이 임계치에 도달했을때, 기공에서의 부분방전에 의한 급속한 전류의 증가가 절연과피를 야기할 것으로 보인다. 이 경우 소결시간 증가에 따라 세개의 결정립에 둘러싸인 기공이 서로 합쳐지면, 절연내력도 감소해야 한다. 그러나 기공이 합쳐지더라도 장축의 길이가 거의 커지지 않기 때문에 절연내력의 감소폭은 아주 작게 된다. 바로 이 점이 임계과피 모델과 다른점이다. 표1에서 보면, 소결시간 증가에 따른 절연내력의 감소폭은 아주 작았는데 이는 임계과피 모델보다 부분방전에 의한 절연과피 기구를 뒷받침하는 실험결과 중의 하나이다. 또한 강유전성 세라믹스의 경우, 높은 전계하에서 ferroelectric domain wall의 이동에 따른 전단응력에 의해 균열



Fig. 5. SEM micrograph showing cracks occurred in barium titanate after applying 2kV(ac)/mm at 25°C (bar = 10 μm).

이 발생하는 것이 관찰되고 있다(그림 5). 이때 전파되는 균열이 큰 기공과 만나, 얇고 넓적한 모양의 공극이 되면 부분방전 전류의 급격한 증가로 인하여 절연과피가 일어날 수 있다.

#### 4. 결 론

소결시간 증가에 따라 평균입경이 상당히 증가했고, 측정된 절연과피값의 변화는 임계과피 모델로 부터 계산된 감소폭에 비하여 극히 적었다. 따라서 강유전성 세라믹스에 과전압이 인가되었을 경우, 기공이나 큰 균열에서 부분방전이 일어나고, 그로인한 전류가 임계치를 넘게될때 절연과피가 일어난다고 말할 수 있다.

#### References

1. K.D. Schomann, "Electric Breakdown of Barium Titanate: A Model", *J. Appl. Phys.* 6, 89-92 (1975).
2. R. Bever, J.L. Westro, "Partial Discharge Testing Under Direct Voltage Conditions", *IEEE Trans. Aero. Electr. Sys.*, AES-18, (1) 82-93 (1982).
3. 심문식 외, "고전압 측정기술의 체계화 연구", 한국전기통신연구소 보고서 3SS030(1983).
4. B.C. Shin and H.G. Kim, "Effect of Micro-

structure on the Dielectric Breakdown of Polycrystalline  $\text{BaTiO}_3$ ", *IEEE Conf. on Conduction and Breakdown in Solid Dielectrics*, pp. 165-169 (1986).

R. Gerson and T.C. Marshall, "Dielectric Breakdown of Porous Ceramics", *J. Appl.*

*Phys.*, **30**, (11) 1650-1653 (1959).

6. D.D. Chang, T.S. Sudarshan and J.E. Thompson, "Analysis of Electric Stress Distribution in Cavities Embedded within Dielectric Structures", *IEEE Trans. Electr. Insul.* EI-21, (2) 213-219 (1986).