

용액법에 의해 작성한 고밀도 폴리에틸렌 박막의 絶緣破壞특성 연구

김석기^o 이한우^{*} 한상옥^{*} 박강식^{**} 박귀만^{***} 김중석^{***}
충남대학교^{*} 충남전문대학^{**} 대전산업대학교^{***}

The Electric Breakdown Characteristic of High Density Polyethylene by Making Use of Solution-grown Thin Films

S. K. KIM^{*} H. W. LEE^{*} S. H. HAN^{*} K. S. PARK^{**} G. M. PARK^{***} J. S. KIM^{***}
^{*} Chungnam National Univ. ^{**} Chungnam Junior College
^{***} Taejeon National Univ. of Tech.

ABSTRACT

In order to investigate the effects of crystal structure in electrical breakdown of polyethylene film, Low molecular materials in polyethylene are removed by the method as follow. Polyethylene was dissolved in xylene and filtered through a glass fiber filter. And then, a polyethylene thin films of thickness 0.5 - 0.9 μm are prepared with heat treatment from solution casting.

To evaluate the performance of PE film, Electrical breakdown of PE film are measured on M(Al)-I(PE)-M(Al) system.

1. 서 론

최근 산업화가 급속도로 진행됨에 따라 전력계통의 고전압화와 대용량화가 추진되고 있으며 이에 따라 우수한 절연재료의 개발 및 절연재료의 성능 개선이 절실히 요구되고 있다. 전기절연재료는 높은 절연내력과 함께 낮은 유전율, 낮은 $\tan \delta$ 및 높은 내열성이 요구되고 있다. 이와 같이 절연재료로서 요구되는 특성들은 물질의 구성하는 성분은 물론 구성원소의 전자상태나 분자 구조 및 결정구조 등에 의해 영향을 받게 된다.

전기절연재료로서 널리 사용되고 있는 폴리에틸렌은 반결정성 고분자로서 화학적구조는 단순하지만 제작 조건에 따라 고차구조가 크게 변화하게 된다. 이때 결정영역의 불연속성에 의하여 결정영역과 비결정 영역(무정형 영역)의 계면에서 전기전도 및 절연파괴에 대해서는 아직도 불명확한 점이 많이 있다. 폴리에틸렌은 그 내부가 결정부와 비결정부가 혼재하는 복잡한 삼차원 구조를 하고 있다고 보고되고 있다.

또한 통상의 결정성 고분자에서는 용융상태에서 결정화시키면 구멍이 3차원 배열을 이루며, 일반적으로 전극사이의 시료의 두께방향에 대하여 구멍과 그 경계가 직렬로 배치하고 있으므로 이것이 전극면에 대해 병렬배치로 분포하게 된다. 이 때문에 구멍과 그 경계의 절연파괴강도를 각각 분리해서 관측하는 것이 곤란하다.

따라서 본 실험에서는 폴리에틸렌내의 각종 첨가제나 촉매잔류물등의 전기적인 영향을 제거 하고 단지 결정의 구조가 절연파괴에 미치는 영향을 조사하기 위하여 폴리에틸렌 용액을 만든후 저분자량을 제거한 고분자량의 폴리에틸렌을 제작하였다.

용액법에 의해 작성한 폴리에틸렌 박막을 열처리함으로써 한개의 구멍이 상하부전극에 직접 접촉하는 2차원 구조로 될수 있으며 또한 상하부 전극에 병렬로 결정부분(구멍)과 비결정부분이 병렬로 접속된 구조의 시편으로 반복적인 파괴시험을 통하여 결정부분과 비결정 부분의 계면에서의 파괴특성을 연구하고자 한다.

2. 시편의 제작 및 실험방법

2.1 폴리에틸렌의 정제

본 실험에서 이용한 폴리에틸렌은 고밀도 폴리에틸렌(LK-30)이며 밀도 $0.960(\text{g}/\text{cm}^3)$, 용융지수 1.6이다. 우선 폴리에틸렌으로부터 각종 첨가제나 촉매 잔류물등에 의한 저분자량 효과를 제거하기 위해 5g의 고밀도 폴리에틸렌을 크실렌(Xylene) 과 혼합하여 140 $^{\circ}\text{C}$ 로 가열하여 30분간 고반한 다음 G-4(mesh Size : 10-16 μm)인 Glass Fiber 를 이용하여 진공으로 강제 여과하였다. 여과후 필터에 잔류된 폴리에틸렌을 진공건조시킨 다음 크실렌과 혼합하여 1 wt%

의 희박층으로 제작하였다.

2.2 폴리에틸렌 박막의 작성

기판(Substrate)은 가로 22mm 세로 40mm 두께 1mm의 Cover Glass에 폭 2mm로 Si 전극을 증착하여 하부전극으로 하였다. 진공증착시킨 하부전극(M2)위에 폴리에틸렌(PE)이 용해되어 있는 약 1 wt% 키토산 용액을 수회 적하하여 막을 제작한 다음 24 시간 동안 진공건조시켰다. 그 다음 140 °C에서 1시간 동안 열처리 한후 0.2 °C/min 비율로 서서히 냉각하였다. 작성된 박막의 두께는 적하량과 적하온도에 따라 0.5 ~ 0.9 μm 의 분포를 나타냈다. MIM 구조로 만들기 위해 제작된 폴리에틸렌 막위에 하부전극과 교차되는 방향으로 Si 전극을 증착하였다.

2-3. 전극의 제작 및 파괴실험

본 연구에 사용된 시료의 전극구조를 그림1에 나타내었다. 상부전극의 두께는 동일 시료에 반복적인 파괴실험을 하기 위한 자기 절연회복이 양호하도록 상부전극을 하부전극보다 얇게 하였다. 상부전극에 + 전압을 하부전극에 - 전압을 인가하고 서서히 상승시켜 절연파괴 전압을 측정하였다. 이때 오실로스코프와 기록계를 연결하여 파괴전압을 관측하면서 파괴실험을 동일시료에 대해 수십회 반복하였다. 이때 시료의 상부전극은 하부전극보다 얇게 하여 시료에 파괴가 발생하면 이때 흐르면 전류에 의해 상부전극이 증발되어 자동적으로 절연이 회복되도록하였다. 이 자기 절연회복 특성은 다음과 같은 잇점을 갖고 있다.

- (1) 절연파괴전압이 낮으므로 주변효과가 작다.
- (2) 동일시료를 이용하여 수회반복실험이 가능하다.
- (3) 파괴위치, 형태와 절연파괴강도를 대응시키는 것이 가능하다.

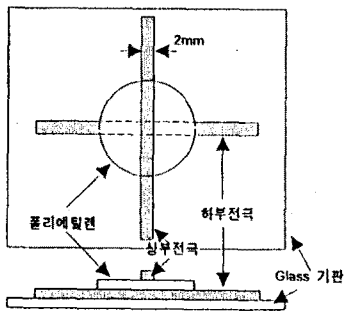


그림 1 시료의 전극 구성도

3. 결과 및 고찰

3.1 폴리에틸렌의 박막형태

작성된 폴리에틸렌 박막의 현미경사진을 그림2에 도시하였다. (a)는 열처리전의 광학현미경사진으로 시료표면에 작은 요철이 존재할 정도로 특별한 특징이 없는 평탄한것을 볼수 있는 반면에 열처리후(b)에서는 시료표면에 커다란 구멍이 생성된것이 구분되고 구멍과 구멍사이에 경계가 형성된것을 알수있다. 또한 (c)는 열처리전의 주사형전자현미경(SEM) 사진으로 다수의 하얀 라멜라가 등일방향으로 무질서하게 배열되어 있음을 볼수있지만 열처리후(d)에는 어떤 하나의 핵을 중심으로 라본과 같은 라멜라가 방사상으로 형성되어 있음을 볼수있다.

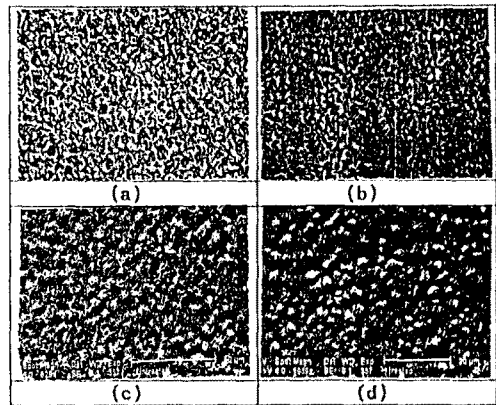


그림2 폴리에틸렌 박막의 형태

	광학현미경사진	주사형전자현미경사진
열처리전	(a)	(b)
열처리후	(c)	(d)

3.2 자기회복성파괴

기판위에 작성한 증착금속에서 Sandwich시킨 절연 파괴의 파괴공은 크게 나누어 그림3과 같이 두가지 형태로 나타낸다. 전압인가시 파괴공의 영향을 받지 않기 위해서는 즉 자기회복성파괴가 양호하도록 하기 위해서는 그림3-a와 같이 상부전극의 증발면적이 하부전극의 증발면적보다 큰것이 바람직하다. 자기회복성이 양호한 파괴의 대표적인 주사형 전자현미경사진을 그림4에 나타내었다. 그림3-b는 전압인가시 파괴후에 구멍에서 발생하는 소위 증식파괴로 실제 파괴치를 얻을수가 없다.

또한 파괴시 전극 증발에 필요한 에너지는 전류에 의한 주열과 아크방전에 의해 발생된다. 후자의 에

너지는 파괴시 발생하는 전자에 의해 양극에 에너지가 많이 공급되기 때문이다. 자기회복성파괴의 바람직한 조건들을 정리하면 다음과 같다.

- (1) 상부전극의 두께가 하부전극의 두께보다 얇을것.
- (2) 상부전극을 양극으로 할것.
- (3) 절연체 박막의 두께가 얇고 파괴전압이 작을것.
- (4) 증착전극의 두께가 균일할것.

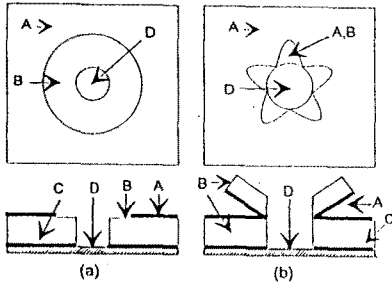


그림 3 파괴공의 형태

(a) 자기회복이 양호한 형태

(b) 자기회복이 불량한 형태

A : 상부전극 B : 절연체 박막

C : 하부전극 D : Glass 기판



그림 4 자기회복파괴공의 주사현미경 사진

3.3 폴리에틸렌 박막의 절연파괴특성

제작된 PE박막의 절연파괴특성을 조사하기 위하여 고전압 직류전원장치를 이용하여 상부전극을 양극으로, 하부전극을 음극으로 하여 절연파괴전압을 측정하여 그림 5에 나타냈다. 측정에 사용된 시료두께는 각각 0.56 μm , 0.60 μm , 0.80 μm , 0.88 μm 이었으며 이들 시료에 반복적으로 직류전압을 인가한 결과 파괴전압은 초기에는 낮은 값을 나타냈으나 파괴횟수가 증가할수록 점차적으로 파괴전압이 증가하여 점차 포화되는 경향을 나타냈다.

이때 초기에 파괴전압이 낮은 것은 시료내부나 표면에 부착된 불순물의 영향에 의한 것으로 추정된다. 이들부분은 파괴시험을 반복함에 따라 점차 제거되어 순수 폴리에틸렌만의 파괴전압을 나타내는 것으로 볼 수 있다. 두께별 파괴전계를 관측하여 그림 6에 나타냈다. 파괴전계는 시료의 두께가 얇을수록 높은

값을 나타냈으며 이는 전계가 두께방향으로 균일하게 분포되지 않음을 나타내고 있다.

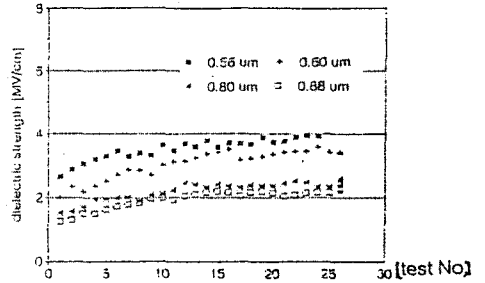


그림 5 반복파괴에 의한 전계강도특성 곡선

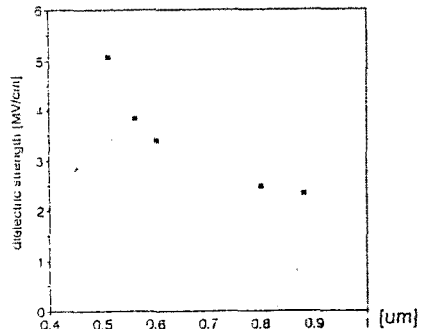


그림 6 박막의 두께에 따른 전계강도특성 곡선

4. 결론

본 논문에서 작성된 시료의 절연파괴특성 결과를 요약하면 다음과 같다.

1. 대부분의 파괴는 구경계면에서 발생됨을 알 수 있었다.
2. 전계강도는 시료의 폴리에틸렌막 두께가 증가함에 따라 감소하는 경향을 보였다.
3. 자기회복파괴로 약점부가 제거됨으로써 전계강도가 향상됨을 관측할 수 있었다.

5. 참고문헌

1. K. Kitagawa, G. Sawa, M. Ieda: "Self-Healing Breakdown at Spherulite Boundaries of Polyethylene Thin Films", Japan. J. Appl. Phys., Vol. 20, (1979)
2. K. Kitagawa, G. Sawa, M. Ieda: "Electric Breakdown of Solution-Grown Polyethylene Films without Spherulite", Japan J. Appl. Phys., Vol. 21, (1982)
3. 北川, 輝五郎, 家田: "薄膜 絶縁體の 絶縁破壊試驗の 自動化와 自己回復性 破壊의 條件" 電氣學A, 103, 150 (昭 58-3)
4. 北川, 輝五郎, 家田: "폴리에틸렌 薄膜의 球晶과 그 境界에서의 絶縁破壊" 電氣學A, 109, 37 (昭 63-1)