

전착된 폴리이미드 박막의 고온영역에서 절연파괴 특성에 관한 연구

유영복*, 신동국*, 김병준*, 김종석*, 박강식**, 김석기***, 조동현***, 한상옥 ***
* 대전산업대학교 ** 충남전문대학 *** 충남대학교

A Study on the Breakdown Characteristics of Electrodeposited Polyimide Film at High Temperature
Y.B.Yu*, D.K.SIN*, B.J.KIM*, J.S.KIM*, K.S.PAK**, S.K.KIM***, D.H.CHO***, S.O.HAN ***
* Taejon National Univ. of Tech. ** ChungNam Junior College.
*** ChungNam National Univ.

ABSTRACT

To evaluate insulating properties of polyimide thin film on high temperature over 100 °C, polyimide film were prepared by electrophoretic deposition onto metal surface from nonaqueous emulsion.

The emulsion is made by adding a solution of the resin to a precipitant, which is an organic liquid completely miscible with the solvent of the organic resin solution, but which does not dissolve the resin.

The polyimide film obtained by annealing shows good insulation properties of 5.8 MV/cm at elevated temperature and breakdown strength of the film reveals thickness dependence.

1. 서 론

유기 고분자 재료는 가볍고 가공성이 뛰어나며, 또한 전기절연성이 우수하기 때문에 각

종 절연재료로서 널리 사용되어왔다. 그러나 이와 같은 우수한 특성을 갖고 있음에도 불구하고 내열성이 부족하여 그 용용은 주로 낮은 온도범위에 한정되어왔다.

그러나 최근 고분자 화학의 발전에 의해 수백도의 고온에서도 견디는 내열성 고분자나 초고강도의 고분자 등이 개발되어 그 용용이 날로 확대되고 있다.

현재까지 알려진 내열성 고분자들로는 실리콘 고무와 폴리이미드(PI) 및 불소계고분자인 사불화에틸렌(PTFE)등이 알려져 있다. 이와 같은 내열성 절연재료는 최근의 전기전자제품의 소형 경량화 경향에 따라 이에 사용되는 절연재료 역시 보다 가혹한 조건하에 놓이게 됨에 따라 우수한 절연재료에 대한 관심이 점차 높아지게 되었다. 폴리이미드는 특히 내열성(전기절연재료 H종), 극 저온특성, 형태의 안정성, 성형 가공성이 다른 내열성 수지에 비해 우수하며, 박막의 형태도 가능하여 각종 반도체나 회로용 기판의 재료로도 사용되고 있으며, 크기안정성, 내화학성이 우수하여 항공우주용 재료 등의 그 용도가 점차 확대되고 있다.

따라서 본 연구에서는 내열성이 뛰어나면서도 높은 절연내력과 함께 광반응성, 흡습성등

이 우수한 고기능성재료인 폴리이미드를 이용하여 이들의 특성을 평가하기 위하여 폴리이미드막을 제작하여 고온영역에서의 절연내력을 측정하였으며, 또한 기존의 박막제작법인 용액도포법에 의해 제작한 막의 특성과 영동법에 의해 제작한 막의 특성을 비교평가하였다.

2. 실험방법

1) 유탁액의 제조

유탁액의 제작에 사용된 베이스 물질은 듀폰사에서 생산된 폴리아미산 용액으로 상품명은 Pyre ML RC-5057 이다. 이 폴리아미산은 이미드고분자물질이 16.5wt% 녹아있는 겔타입의 용액이다.

여기에 용매인 NMP(N-methyl-2-Pyrrolidone; C_5H_9NO) 를 혼합하여 유동성이 좋은 고분자 용액으로 만든다. 또한 별도의 용기에, 용매인 NMP 와는 상용성을 가지나 고분자인 폴리이미드산과는 상용성이 없는 물질인 아세톤 (acetone, CH_3COCH_3)과 표면전하의 이동을 쉽게하는 역할을 하는 계면활성제 TEA (Tri-Ethylamine, $(C_2H_5)_3N$)를 혼합하였다.

유탁액의 제작과정은 다음과 같다.

- (1) PAA 10 g과 NMP 62 g을 혼합한 다음 40 °C에서 4시간동안 교반하여 묽은 PAA 용액(A)을 만든다.
- (2) 침전제인 아세톤 178 ml 에 계면활성제로 TEA를 0.4g 혼합(B)하여 40 °C에서 4시간 동안 교반하였다.
- (3) B 용액을 교반하면서 A용액을 서서히 부어 혼합한후 수시간 동안 교반하여 유탁액을 얻었다.

2) 시편의 제작

시편의 제조공정도를 그림 1에 나타냈다. 본 실험에서 폴리이미드막의 제작에 사용할 기판은 25mm×75mm×2mm 의 커버 글라스를 이용하였다. 기판은 전기영동시 전착막이나 유탁액에 불순물이 혼입되는 것을 방지하기 위하여 초음파 세척기로 세척하였다.

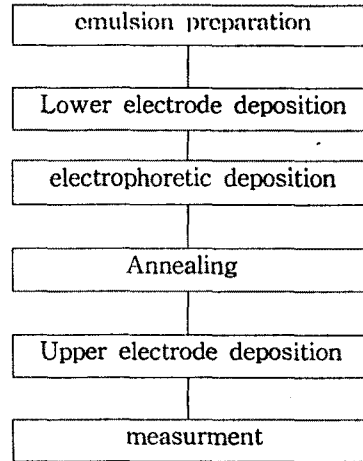


그림 1 시편의 제조 공정

Fig. 1 Block diagram of Fabrication process of specimens

하부전극 증착은 진공증착장치를 이용하여 폭 2 mm, 길이 75 mm로 알루미늄을 증착하였다. 하부 전극이 증착된 기판을 그림 2와 같이 유탁액속에서 동전극과 25mm의 간격으로 평행으로 배치한후 전착할 기판에 + 전압, 동전극에 -전압을 인가하여 실험목적에 따라 소정의 시간동안 전착시켰다.

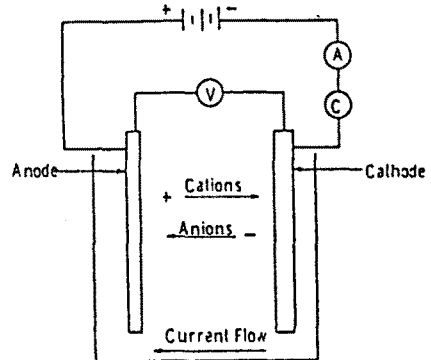


그림 2 전기영동을 위한 전극시스템

Fig. 2 electrode system for electrophoretic deposition

영동에 의한 전착이 끝난 시편은 70°C로 설정된 전기 오븐에서 2시간 동안 건조 시켰으며, 건조가 끝난 시료는 이미드화 하기 위하

여 300 ℃에서 2시간동안 열처리하였다. 열처리가 끝난 시료는 하부 전극에 직각방향으로 상부전극을 증착하였다. 이때 상부전극의 두께는 자기절연회복에 의한 파괴시험을 위하여 하부전극보다 얇게 하였다. 전극의 두께조절은 증착막 두께에 따른 전기저항값 변화를 이용하여 측정하였다. 제작된 시편의 구조를 그림 3에 도시하였다.

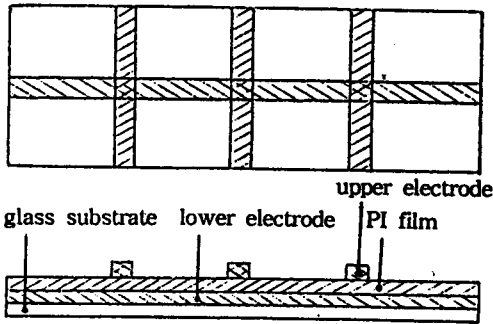


그림 3 제작된 시편의 구조도
Fig. 3 structure of fabricated specimens

3. 결과 및 고찰

3-1. 고온영역에서의 파괴특성

폴리이미드는 내열성이 우수한 고분자로 널리 알려져 있기 때문에 본 연구에서는 폴리이미드가 고온영역에서의 절연내력을 조사하기 위하여 100℃의 공기 중에서 자기절연회복법에 의해 파괴시험을 하여 그림 4에 나타냈다. 자기절연회복법에 의한 절연파괴 시험은 동일한 시료에 의해 반복적으로 시험할수 있는 특징에 의해 동일시료에서 파괴횟수를 반복함에 따라 시료내에 혼입되어 있던 불순물들이 제거되어 파괴전계가 점차 증가하는 것을 볼수 있다. 일반적으로는 실온 영역에서는 파괴횟수 증가에 따른 파괴전계의 포화는 차단전류에 따라 다르게 나타나지만 대개 20-30 회 정도의 반복파괴시험에 의해 포화되어 가는 반면[2], 100 ℃의 고온영역에서는 10 여회 정도에서 포화되어가는 것을 관측할 수 있었다. 저온영역에서의 절연파괴는 고전계의 인가에 의해 전자사태에 이은 열적파괴로 진행하여 나타나는 것으로 사료된다. 자기절연회복법에 의한 폴리이미드박막의 파괴시 재료 본래의 절연파괴전계보다 훨씬 낮은 전계에서의 파괴시의 스파크 분포에 의한 파괴양상을 보면 차단전류를 10 μ A로 하였을 경우를 예로 들면 한곳에서의 플래시오버가 발생하여 흐

르는 전류가 아닌 동시에 여러장소에서 동시다발적으로 수곳 내지는 수십곳에서의 플래시오버가 발생하여 차단전류에 이르게 되는 것을 관측할 수 있었다.

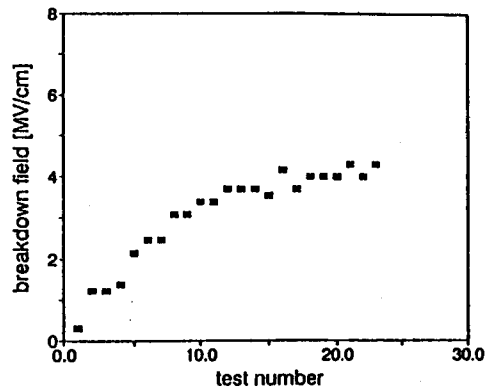


그림 4 파괴전계의 파괴시험횟수 의존성 (T:100℃)
Fig. 4 The dependence of breakdown field on breakdown number

이때 파괴시험횟수에 따른 파괴전계가 파괴시험 분위기 온도에 따라 다르게 나타나는 것은 비교적 낮은 온도영역에서는 자기절연회복법의 특징인 불순물 부분만 선택적으로 전극이 제거되는 현상이 잘 이루어 지지만 고온영역에서는 플래쉬 오버에 도달할 때 까지의 주열과 플래시오버발생시 아크열이 기판이나 절연물질 및 상하부전극에의 열방산이 원활하게 이루어지지 못하기 때문으로 생각된다. 이 때문에 절연파괴시 온도의 상승영역이 넓어지게 되어, 자기절연회복에 의해 제거되는 부분도 넓어지게 되기 때문이 아닌가 생각된다.

3-2. 파괴전계의 두께의존성

두께분포에 따른 파괴특성을 조사하기 위하여 두께가 0.37 - 0.94 μ m 범위의 시료를 이용하여 100 ℃에서의 파괴전계특성을 조사하여 그림 5에 나타냈다. 파괴전계의 두께 의존성은 0.37 μ m의 시료가 5.8 MV/cm의 파괴전계를 나타낸 반면 0.94 μ m의 시료가 2.95 MV/cm로서 막의 두께가 얇아 질수록 파괴전계는 높아지는 특성을 보였다. 이와같은 특성은 고체절연체에서 나타나는 전형적인 특성으로 두께 방향의 전계 불균일에 의한 것으로 추정된다. 그러나 파괴시험 온도가 100℃로서 비교적 높은 온도에도 불구하고 파괴전계가 상당히 높은 전계를 유지하고 있으며 이와같이 고온영역에서의 우수한 특

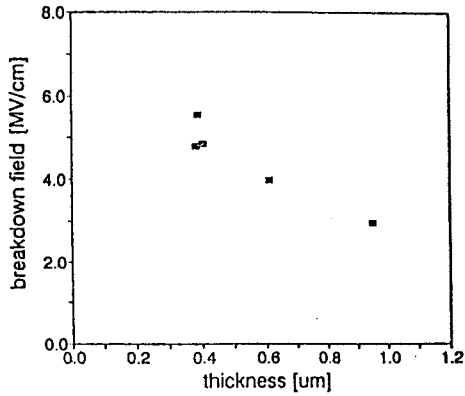


그림 5 파괴전계의 두께의존성

Fig. 5 The dependence of breakdown field on film thickness

성은 폴리이미드의 분자쇄 내의 높은 에너지 상태에 의하여 구조 안정성을 이루고 있기 때문으로 생각된다. 이와 같은 분자 구조적 안정성은 전기전도에 기여하는 캐리어의 농도나 이동도의 변화에 대한 기여가 적기 때문에 의한 것으로 생각된다.

참고문헌

1. 일본 전기학회편, "유전체현상론" pp. 204-209, 1973.
2. 김종석외 5인, "전기영동법을 이용한 폴리이미드 박막의 절연파괴특성", 한국전기전자재료학회 논문집, pp.103-107, 1994.
3. 澤 五郎 外 2人, "電氣泳動法によるポリミド膜の作成と絶縁破壊", 研究開發 letter, T.IEE, Japan, Vol. 115-A, No. 4 1995.
4. シロキサ ン 含有 ポリイミド 薄膜の 高温領域における 交流電氣傳導特性, 日本電氣學會 論文Vol. 114, No. 9, 1994.
5. W. M. Alvino et al, " electrophoretic deposition of polymers. II, polyimides: A coulombic study", J. A. poly. Scic. Vol. 28, pp.267-282, 1983.