

絶縁體의 熱刺戟 電流와 應用

姜 道 烈

〈弘益大 工大 電氣工學科 副敎授 · 工博〉

目 次

- 1. 머릿말
- 2. 열자극전류의 기본원리
- 3. TSC 측정방법
- 4. 쌍극자분극
- 5. 포획, 공간전하
- 6. 이온 공간전하분극
- 7. 결 론

1. 머릿말

오늘날 전기절연재료는 종래의 전력케이블 및 전력 기기의 분야로 부터 전자소자의 분야에 이르기까지 그 용도는 다양하게 응용되고 있으며, 절연재료에 인가되는 전계도 매우 커져서, 전기전도기구, 절연파괴기구, 그 밖에 다른 전기특성에 대한 연구가 더욱 깊이 있게 요구되고 있다. 그러나 절연재료는 구조적으로 매우 복잡하여, 도전기구에서 가장 기본이 되는 「전기전도의 캐리어가 무엇인가」하는 것이 아직도 명확치 못한 경우가 있으며, 캐리어가 무엇인지는 파악이 되었다 하더라도 이들 캐리어의 생성기구, 전도기구 등에 대한 명확한 설명이 또한 용이하지 않다. 따라서 이와 같은 물성적인 해석을 위한 측정방법에 있어서도 새로운 기술이 여러가지로 개발되고 있다.

최근 열자극전류(Thermally Stimulated Current-이하 TSC 포함)에 의한 측정이 새로운 측정기술의 하나로 활발하게 연구되고 있어 그 응용¹⁾이 기대되고 있으므로, 열자극전류의 기본원리와 간단한 응용에 관하여 간략하게 소개하고자 한다.

TSC의 측정은 1945년에 J.T. Randall²⁾ 등이 ZnS의 형광기구를 관찰하기 위하여 Thermoluminescence

(T.L)를 측정할 것이 계기로 되어, 1955년에 R.H. Bube³⁾ 등이 측정할 것인데 그동안 반도체 분야에 에너지준위를 구하는데 이용하고 있었다. 그러나 최근에 와서 절연체, 유전체의 연구 분야에서도 이에 대한 응용이 활발하게 전개되고 있다.⁴⁾⁵⁾

절연체의 전도기구는 크게 두가지로 즉, 쌍극자와 같이 구한된 공간속에서 미시적인 변위를 하는 것과, 전도전자와 같이 절연체 내부를 폭넓게 거시적으로 이동하는 것으로 구분된다. 전하의 미시적 변위는 변위 전류(displacement current)의 원인이 되어 유전특성에 관여하며, 거시적 이동은 주로 전도전류(conduction current)를 일으킨다. 절연체의 변위전류, 전도전류 등을 파악하기 위하여 일반적으로는 시료에 일정한 전압을 걸고 시료에 흐르는 충전전류를 측정하거나, 충전전압을 단락한 후에 흐르는 방전전류를 관측한다. 그러나 이러한 측정으로 전도기구에 대한 물성적인 해석을 얻어 내기에는 미흡하다. 그러므로 여러온도에서 상기측정을 반복하여 충전전류 및 방전전류의 온도의존성을 얻어내야 하는 까다로운 방법을 택해야 했다.

그러나 TSC는 저온에서 하전입자를 동결시키고, 시료를 일정한 온도 승온하면서, 해방된 하전입자가 이동하여 흐르는 전류를 측정하는 것이므로, 시료의 방전전류 측정 등이 빠른 시간내에 이루어지고, 측정된 결과로부터 완화시간, 활성화에너지, 또는 포획준위 등 하전입자의 기본 물리량을 직접 구할 수 있는 장점을 가지고 있어 물성적인 해석이 용이하다.

2. 열자극전류의 기본원리

열자극전류의 측정원리는 계(系)가 온도상승과 더불어 불평형상태에서 열평형상태로 이행할 때 방출되는

에너지를 전류의 형태로 측정하는 것이다. 따라서 측정대상물은 온도 T 에 크게 의존하는 것이어야 한다. 쌍극자와 같이 가역 1차 반응으로 묘사할 수 있는 계에서 그림 1과 같은 천이 모델을 생각한다. 상태 A 에서 상태 B 로 알(net) 천이하는 반응속도의 식은, 입자밀도를 Y 라 할 때

$$\frac{dY}{dt} = -\frac{1}{\tau} Y \dots\dots\dots (1)$$

로 표시된다. 여기에서 τ 는

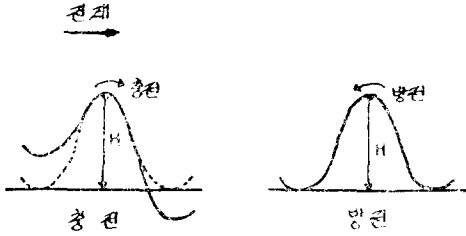


그림 1. 쌍극자의 충·방전전류

$$\tau = \frac{1}{K} \exp\left(\frac{H}{kT}\right) \dots\dots\dots (2)$$

K ; 이탈주파수

H ; 천이장벽

T ; 절대온도

k ; Boltzmann 상수

로 보통 완화시간이라 부른다. 승온과정은 일정한 열 β 로 연속상승을 하는

$$T = T_0 + \beta t \dots\dots\dots (3)$$

T_0 ; 계시온도

를 사용하면, 식 (2)와 (3)에서 식 (1)을 풀어

$$Y = Y_0 \exp\left\{-\frac{K}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{H}{kT'}\right) dT'\right\} \dots\dots\dots (4)$$

Y_0 ; 초기값으로 $T = T_0$ 때의 Y 값식 (4)를 시간미분하면

$$\begin{aligned} TSC &= -\frac{dY}{dt} = -\beta \frac{dY}{dT} \\ &= Y_0 K \exp\left(-\frac{H}{kT}\right) \exp\left\{-\frac{K}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{H}{kT'}\right) dT'\right\} \dots\dots\dots (5) \end{aligned}$$

로 되어 기본적으로는 Y 혹은 $-dY/dt$ 가 열자극전류 (TSC)로 관측되는 것이다.

3. TSC 측정방법

TSC를 측정하기 위한 회로는 그림 2와 같다. 스위치를 S_1 쪽으로 하고 비교적 높은 바이어스(bias) 온도

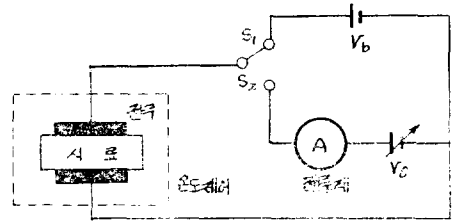


그림 2. TSC 측정회로

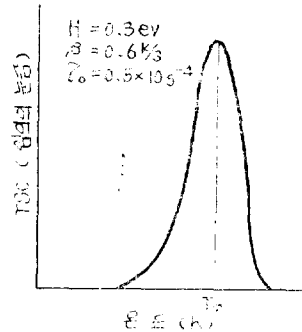


그림 3. 쌍극자에 의한 TSC의 예

T_0 에서 시료에 바이어스전압 V_b 를 t_0 시간 만큼 인가한 후, 시료를 급냉시켜서 인가전계로 배향된 쌍극자라든가 포획된 전하들을 모두 동결시킨다. 다음으로 V_b 를 끊고, 스위치를 S_2 의 전류쪽으로 바꾸어 시료의 온도를 일정한 열 β 로 승온하여 탈분극이라든가 포획 전하의 해방으로 일어나는 TSC를 전류계로 관측한다.

승온중에 인가하는 콜렉팅(collecting) 전압 V_c 는 바이어스전압 V_b 에 대하여 양, 음 또는 영(零) 등으로 변화시킬 수 있다. TSC는 계가 열평형상태로 돌아가는 과정에서 관측되는 전류이므로 고온이 되어 열평형상태로 되면 TSC는 나타나지 않는다. 따라서 TSC의 모양은 그림 3과 같이 피크(peak)를 갖는 산모양의 곡선으로 나타난다.

4. 쌍극자 분극

유전 및 절연재료에서 유전율은 전기특성에 대단히 중요한 비중을 차지한다. 유전율은 일반적으로 교류를 이용하여 측정하고 있으나 주파수가 낮게 되면 측정이 어렵게 되어 그의 한계는 0.1Hz 정도로 되고 있다. 그러나 TSC를 이용하면 직류를 가지고 측정된 결과로

임의의 주파수에 대한 유전율을 계산할 수 있기 때문에 편리하다.

그림 1과 같은 Debye 모델로 쌍극자를 생각하면 A의 위치에서 B의 위치로 (혹은 B에서 A로) 천이하는 확률 P는 온도 T에서

$$P = \frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_0} \exp\left(-\frac{H}{kT}\right) \dots\dots\dots(6)$$

τ : 유전완화시간

τ_0 : 주파수인자와 관계하는 정수

$t=0$ 에서 분극 $P=P_0$ 가 일어나고 있을 때 이것이 시간 경과와 더불어 탈분극해가는 일은

$$\frac{dP}{dt} = -\frac{P}{\tau} \dots\dots\dots(7)$$

가 되며 온도를 $T=T_0+\beta t$ 의 일정율로 승온하여 일어나는 탈분극전류(TSC)는 식 (5)와 전혀 동일한 모양으로 다음과 같이 표시된다.

$$\begin{aligned} TSC &= -\frac{dP}{dt} \\ &= A \frac{P_0}{\tau_0} \exp\left(-\frac{H}{kT}\right) \exp\left\{-\frac{1}{\beta\tau_0} \int_{\tau_0}^T \exp\left(-\frac{H}{kT'}\right) dT'\right\} \dots\dots\dots(8) \end{aligned}$$

A: 전극의 면적

Bucci¹⁾ 등은 온도 T_b 에서 전계 E_b 를 t_b 초간 시료에 인가했을 때

$$P_0 = \frac{N\mu_d^2 E_b}{3k T_b} \dots\dots\dots(9)$$

N: 쌍극자밀도

μ_d : 쌍극자능률

의 분극이 일어났다고 보고 식 (8)에 대입하여

$$\begin{aligned} TSC &= i(T) \\ &= \frac{AN\mu_d^2 E_b}{3k T_b \tau_0} \exp\left(-\frac{H}{kT}\right) \exp\left\{-\frac{1}{\beta\tau_0} \int_{\tau_0}^T \exp\left(-\frac{H}{kT'}\right) dT'\right\} \dots\dots\dots(10) \end{aligned}$$

과 같은 식을 얻었다. 식 (10)은 그림 3과 같이 최대를 되는 온도 T_m 까지는 비교적 완만하게 증가하고 T_m 을 지나서는 급격하게 감소하는 모양을 갖는다.

식 (10)은

$$\begin{aligned} l_n \tau(\tau) &= l_n \tau_0 + \frac{H}{kT} \\ &= l_n \left\{ \int_{\tau_0}^{\infty} i(\tau') d\tau' \right\} - l_n i(\tau) \dots\dots\dots(11) \end{aligned}$$

로 되는 관계를 얻어 우변의 적분항을 TSC 곡선에서 계산하면 $l_n \tau(\tau) \sim \frac{1}{T}$ 의 직선관계가 성립하여 완화시간 $\tau(\tau)$, 또는 τ_0 , H 등을 얻어내고 있다⁴⁾. 그리고 그림 3에서 초기상승만을 취하면 식 10에서 적분항은 0으로 볼 수 있으므로

$$l_n i(\tau) = \text{const.} - \frac{H}{kT} \dots\dots\dots(12)$$

의 직선관계를 얻어 직선의 경사로 부터 H를 구할 수 있다. 식 (10)에서

$$\tau(T_m) = \frac{k T_m^2}{\beta H} \dots\dots\dots(13)$$

의 관계가 성립하여 T_m 을 측정하므로써 완화시간 $\tau(T_m)$ 을 알아낼 수 있다. 이와 같이 쌍극자의 완화시간을 TSC를 이용하여 용이하게 구할 수 있으므로 유전율도 계산할 수 있다⁵⁾. 식 (10)에서 $N\mu_d^2 E_b / 3k T_b$ 는 단위체적 중에서 일어나는 분극이다. 그러므로 이것은 TSC 곡선의 면적에서 구하는 전하량과 같게 된다²⁾. 정 유전율을 ϵ , 쌍극자가 분극에 관여치 못할 정도로 높은 주파수에 대한 유전율을 ϵ_∞ 라고 하면

$$N \frac{\mu_d E_b}{3k T_b} = \frac{(\epsilon_s - \epsilon_\infty) E_b}{4\pi} \dots\dots\dots(14)$$

의 관계가 성립하므로 τ 를 알면 온도 T_b 때의 유전율 $\epsilon = \epsilon' - j\epsilon''$ 는 Debye 식에 의하여 다음과 같이 하여 구할 수 있다.

$$\left. \begin{aligned} \epsilon'(\omega) - \epsilon_\infty &= \frac{\epsilon_s - \epsilon_\infty}{1 + (\omega\tau)^2} = \frac{4\pi N \frac{\mu_d^2}{3k T_b}}{1 + (\omega\tau)^2} \\ \epsilon''(\omega) &= \frac{(\epsilon_s - \epsilon_\infty)\omega\tau}{1 + (\omega\tau)^2} = \frac{(4\pi N \frac{\mu_d^2}{3k T_b}) \omega\tau}{1 + (\omega\tau)^2} \end{aligned} \right\} \dots\dots(15)$$

5. 포획(trap), 공간전하

최근 절연막 특히 고분자 박막연구분야에서 하전입자의 주입, 그의 포획으로 형성되는 공간전하 등이 문제시 되고 있다⁶⁾. TSC를 이용하므로써 주입전하량, 주입평균거리 등을 용이하게 알아낼 수 있다.

절연재료에 전계를 인가하면 전자 전공 등이 주입되기도 하고 또 발생이 되기도 하여 그림 4에서와 같이 전극 방향으로 이동한다. 이들 하전입자를 저온으로 급냉각하여 동결하고, 쿨렉팅전압 V_c 를 인가하고 온도를 일정율로 상승시키면 TSC가 관측된다.

Perlman⁷⁾ 등은 코로나방전으로 Mylar의 표면에

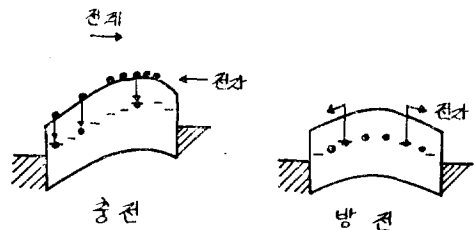


그림 4. 포획에 의한 충·방전전류

생긴 전자성캐리어인 TSC 를 측정하고, 쌍극자에 의 한 TSC 의 식 10과 흡사한

$$TSC = -\frac{\mu e^2 \delta^2 n_0^2 \tau_0}{2\epsilon d} \cdot \frac{\tau}{\tau_0} \exp\left\{-\frac{H}{kT}\right\} - \frac{2}{\beta \tau_0} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{H}{kT'}\right) dT' \dots\dots (16)$$

단; $\tau_r = \tau_0 \exp\left(\frac{H}{kT}\right)$

μ : 캐리어 이동도

n_0 : 포획캐리어의 초기농도

δ : 시료표면의 캐리어 존재범위

ϵ : 유전율

τ : 자유캐리어의 수명

τ_r : 포획캐리어의 수명

e : 캐리어의 전하

d : 시료두께

식을 얻어 실험결과와 잘 일치하는 것으로 보고하고 있다. 포획에서 여기된 전자는 콜렉팅전압 V_c 에 의하여 전극방향으로 이동하게 되므로 그림 5에서와 같이 V_c 의 극성에 따라 TSC의 방향도 역전¹⁰⁾하며 V_c 가 증가함에 따라서 TSC도 커지고 있으나 TSC 면적에서 계산된 전하는 그림 6에서 알 수 있는 바와 같이 결국 포획된 결과를 보게 된다¹¹⁾.

주입전하량 Q 는 포획전하량 Q_1 과 Q_2 를 더한 것으로 구할 수 있을 것이며 주입전하의 평균주입거리 \bar{x} 도 다음과 같이 구할 수 있을 것이다.

$$\left. \begin{aligned} -Q_{(t)} &= Q_{1(t)} + Q_{2(t)} \\ \bar{x}_{(t)} &= \frac{\int_0^d x \rho_{(x,t)} dx}{\int_0^d \rho_{(x,t)} dx} = d \frac{Q_{2(t)}}{-Q_{(t)}} \end{aligned} \right\} \dots\dots (17)$$

x : 주입전극으로부터의 거리

ρ : 주입전하 밀도

d : 시료두께

6. 이온 공간전하분극

절연재료중에 있는 이온이 전체로 드리프트되어 공간전하분극¹²⁾을 형성한다는 것은 잘 알려져 있는 일로써 이온의 TSC에 관한 보고도 최근에 많이 나오고 있다^{4) 13)}. 이온 공간전하분극 역시 드리프트로 형성된 공간전하가 동결 되었다가, 승온되는 과정에서 전류로 관측되는 것인데, 하나의 분극현상 이므로 TSC는 바이어스전계 E_b 와 역방향으로 관측된다. TSC의 관계식 역시 식 (5)와 쌍극자분극인 경우의 식 (8)과 흡사한

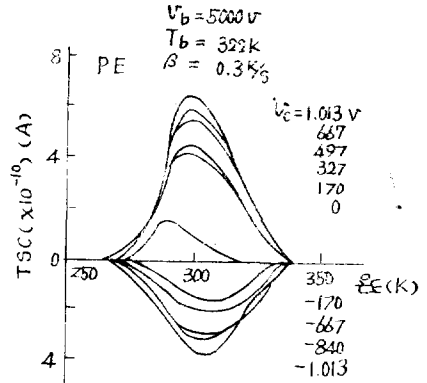


그림 5. 주입전하에 의한 TSC의 V_c 의존성 (문헌 11에서)

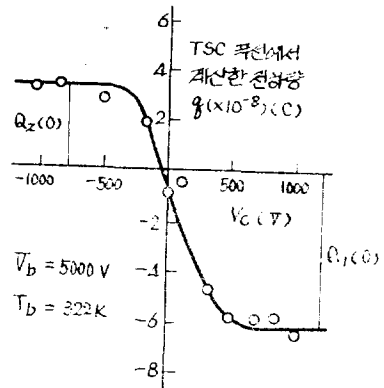


그림 6. V_c 에 의한 주입전하량 (문헌 11에서)

$$TSC = AP_b \nu \exp\left(-\frac{H}{kT}\right) \exp\left\{-\frac{\nu}{\beta} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{H}{kT'}\right) dT'\right\} \dots\dots (18)$$

ν : 주파수 인자

와 같다. 그러나 P_b 는 $t=0$ 때의 분극으로

$$P_b = P_0 \sinh\left(\frac{qaE_b}{2kT_b}\right)$$

단; $P_0 = 2qN_i a \nu \exp(-H/kT_b)$

q : 이온의 전하

a : 이온의 도약거리

N_i : 이온의 갯수

로 되어 P_b 의 전계 의존성은 쌍극자인 경우의 식 (9)와는 아주 다르다. 분극을 할 때 이온의 드리프트는 이온전도의 형식을 취할 것이므로 V_b 가 증가하면 그 TSC는 V_b 에 대하여 지수관수적으로 증가하게 될

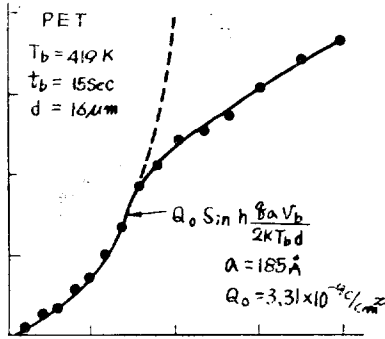


그림 7. 이온공간전하분극에 의한 TSC 전하량의 바이어스전압 의존성(문헌 13에서)

것이며(그림 7 참조), 쌍극자분극에서는 분극에 관여하는 Langevin 관수로 고찰하여 V_b 에 비례하다가 포화하게 될 것이다.

7. 결 론

이상 언급한 것은 절연재료의 경우를 들어 TSC에 관한 개괄적인 개념을 언급하였다. 이 외에도 MIS 소자의 계면준위에 의한 TSC¹⁴⁾ 등 여러 방면에서 활발하게 연구가 전개되고 있다. 또한 TSC는 앞으로 널리 응용될 것으로 예상되어 그의 연구가 기대된다.

참 고 문 헌

- 1) 日野太郎; "熱刺激電流(TSC)의測定と應用" 日本電氣學會雜誌, 95卷, 2號, pp.109~116, 1975.
- 2) J.T. Randall & M.H.F. Wilkins; "The phosphorescence of various solids" Proc. Roy. Soc. (London), Vol. 184A, No. 6, pp.347~407, 1945.
- 3) R.H. Bube; "Photoconductivity and Crystal Imperfections in Cadmium Sulfide Crystals.

- Part II. Determination of Characteristic Photoconductivity Quantities" J. Chem. Phys., Vol. 23, No. 1, pp.18~25, 1955.
- 4) C. Bucci, et al; "Ionic Thermocurrents in Dielectrics" Phys. Rev., Vol. 148, No. 2, pp. 816~823, 1966.
- 5) J. Van Thurnhout; "Thermally Stimulated Discharge of Polymer Electret" Elsevier Sci. Pub. Com., Amsterdam, 1975.
- 6) T. Hino, et al; "A Measurement of Relaxation Time of Dipole and Dielectric Loss Factor in Very Low Frequency by Thermally Stimulated Current" Japan, J. Appl. Phys., Vol. 12, No. 5, pp.651~656, 1973.
- 7) H. Fröhlich; "Theory of Dielectrics" Oxford, 1958.
- 8) 第6回, 第7回 電氣絶緣材料シンポジウム(日本) 1973, 1974.
- 9) R.A. Crewell & M.M. Perlman; "Thermal Currents from Corona Charged Mylar" J. Appl. Phys., Vol. 41, No. 6, pp.2365~2375, 1970.
- 10) 澤・家田; 日本電氣學會全國大會シンポジウム, S. 3~2, 1974
- 11) 日野・山下; "熱刺電流による絶緣膜への注入電荷と注入距離の測定" 日本電氣學會論文誌, 95卷, 2號, pp.79~86, 1975.
- 12) A. Von Hippel; "Dielectric Material and Application" John Wiley & Sons Inc., 1954.
- 13) 金子・日野; "ポリエチレンテレフタレート的空間電荷分極" 日本電氣學會論文誌, 98卷, 2號, pp. 101~108, 1978.
- 14) J.G. Simmons & L.S. Wei; Solid-State Electronics, Vol. 17, p.117, 1974.