

# 쌍극자 분극에 대한 열자격 특성

## Characteristics of Thermally Stimulated Measurement in Dipolar Depolarization

權 寧 守\* · 姜 道 烈\*\* · 鞠 相 勳\*\*\*  
(Young-Soo Kwon · Dou-Yol Kang · Sang-Hoon Kook)

### 요 약

온도구배가 있는 경우의 쌍극자분극에 대하여 열자격전류를 측정하였다. 가교폴리에틸렌(XLPE)을 시료로 하여 실험한 결과, 온도구배가 있는 경우의 열자격전류(TG-TSC)특성에서 초기상승 부분의 이론해석과 실험결과가 잘 일치하였다. 이것은 시료내에 온도구배가 설정되어 있는 것을 나타내는 것으로 쌍극자에 대한 온도구배 열자격측정이 시료내에 온도구배가 설정되어 있다는 것을 판정할 수 있다는 것을 제시하는 것이다.

**Abstract-** A thermally stimulated current measurement using a temperature gradient (TG-TSC) has been applied to the study of dipolar depolarization in polymers. It has been clarified that theoretical analysis of TG-TSC in the initial rise region corresponds with the experimental results. We conclude that the experimental results on a cross-linked polyethylene (XLPE) film can be explained using the above relation and that the characteristics obtained from the above theoretical analysis can be used for ascertaining the presence of a constant temperature gradient in a film.

### 1. 서 론

유전체의 분극은 일반적으로 전자분극, 이온(원자)분극, 배향분극으로 구분할 수 있다. 이들 분극 가운데 전자 및 이온분극의 경우에는 탄성적인

복원력에 의한 것으로서 온도의존성이 작으므로 열자격법의 대상이 되지 않는다. 그러나 배향분극의 경우는 유전체중의 영구 쌍극자가 전계로 인하여 배향되는 것이므로 분극의 과정이 열적인 천이 확률로서 열자격법의 대상이 된다. 이들의 측정은 종래 교류를 사용한 임피던스 측정[1]을 하여 구한 유전완화의 성질로부터 상세하게 검토되고 있다.

쌍극자 분극이 열자격전류(TSC)로서 측정된 것은 Bucci[2]의 이온결정에서 쌍극자의 연구가 처

\*正 會 員 : 東亞大 工大 電氣工學科 助教授 · 工博

\*\*正 會 員 : 弘益大 工大 電氣制御工學科 教授 · 工博

\*\*\*正 會 員 : 朝鮮大 工大 電氣工學科 教授 · 工博

接受日字: 1989年 7月 7日

一次修正: 1990年 3月 16日

음이었다. 그 후 많은 연구자[3, 4]들에 의해 TSC로서 쌍극자분극에 대한 여러 특성이 밝혀지고 있으며, 최근[5]에는 폴리머 필름내의 쌍극자에 대한 완화시간 및 완화현상에 대한 연구가 이루어지고 있다.

본 논문에서는 시료내에서 온도구배가 있는 경우의 쌍극자 탈분극에 의한 TSC특성을 검토하였다. 또한 실제 실험을 통하여 이론과 측정결과를 비교한 결과, 본 측정법에 의해 시료내에 실제로 온도구배가 설정되어 있다는 사실이 확인되었다.

### 2. 쌍극자의 이론

영구쌍극자의 배향분극은 고체의 경우, 일반적으로 그림1과 같이 속박회전모델(Debye model)로서 설명된다[6]. 쌍극자의 회전은 potential barrier H로서 나누어진 2개의 평형위치 1, 2사이의 하전입자의 천이로서 표시되며, 그림1의 경우에는 potential well이 시료(두께 d)의 두께 방향으로 n개가 나란히 배열되는 가장 간단한 1차원 모델을 생각하였다.

시료에 전계 E가 인가되어 있지 않은 경우에는 1, 2의 potential well은 같은 potential로서 하전입자는 양(兩) well에 같은 확률로서 존재하여 각 well에서는 진동수로서 진동하게 된다.

시료에 전계 E가 인가되면, potential은 그림1의 파선과 같이 변화하게 된다. 이 potential에 의하여 입자의 천이확률이 변화하여 새로운 어떤 평형상태에 이르게 된다. 이때 1의 well로부터 2의 well으로 전하 q를 가진 입자의 천이확률  $\omega_{12}$ 와 2의 well에서 1의 well으로의 천이확률  $\omega_{21}$ 은 각각 다음과 같이 표시된다.

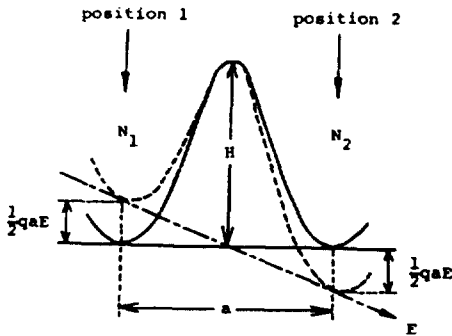


그림 1 쌍극자의 debye model  
Fig. 1 Debye model in dipole.

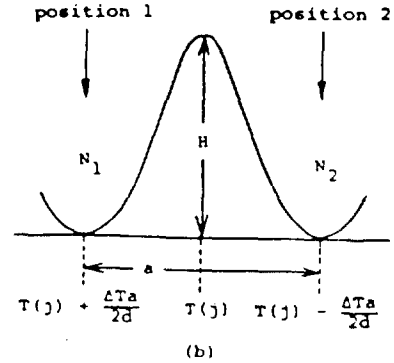
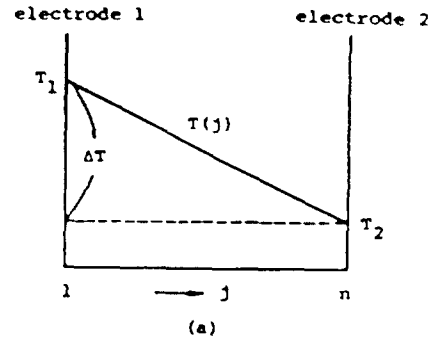


그림 2 시료의 온도 분포 모델

(a) 온도구배

(b) 퍼텐셜 모델

Fig. 2 Model of temperature distribution in the sample

(a) temperature gradient in the sample

(b) temperature distribution in the potential model.

$$\omega_{12} = \nu \exp\left(-\frac{H}{kT}\right) \exp\left(\frac{qaE}{2kT}\right) \quad (1)$$

$$\omega_{21} = \nu \exp\left(-\frac{H}{kT}\right) \exp\left(-\frac{qaE}{2kT}\right) \quad (2)$$

여기서  $\nu$ 는 주파수 인자,  $a$ 는 potential well사이의 거리,  $k$ 는 Boltzmann정수,  $T$ 는 절대온도이다.

그림 2와 같이 시료에 온도차  $\Delta T$ 를 설정한 경우에 대하여 생각하면, potential well의 모델이 그림 2-(b)와 같은 온도분포가 되기 때문에 천이확률  $\omega_{12}$ 와  $\omega_{21}$ 은 각각 다음과 같이 된다.

$$\begin{aligned} \omega_{12} &= \nu \exp\left\{-\frac{H}{k\left(T(j) + \frac{\Delta T a}{2d}\right)}\right\} \\ &\approx \nu \exp\left(-\frac{H}{kT(j)}\right) \exp\left(\frac{H \Delta T a}{2kT^2(j)d}\right) \end{aligned} \quad (3)$$

$$\omega_{21} = \nu \exp \left\{ -\frac{H}{k(T(j) - \frac{\Delta T a}{2d})} \right\}$$

$$\approx \nu \exp \left( -\frac{\dot{H}}{kT(j)} \right) \exp \left( -\frac{H \Delta T a}{2kT^2(j)d} \right) \quad (4)$$

단,  $T(j)$  ( $j=1 \sim n$ )은  $j$ 번째의 potential well 중심에서의 온도이다. 식(3), (4)는 식(5)를 이용하여 유도하였다.

$$\frac{\Delta T a}{2T(j)d} \ll 1 \quad (5)$$

여기서 식(1), (2) 및 식(3), (4)를 비교하면 다음의 관계가 얻어진다.

$$E(j) = \frac{H \Delta T}{qT(j)d} \quad (6)$$

즉, 온도차  $\Delta T$ 를 설정하는 것은 식(6)에서 나타낸 국부전계  $E(j)$ 를 인가한 것과 등가인 것을 알 수 있다. 따라서 시료 전체로부터 본 등가전위  $V_{eq}$ 를 생각하면 식(7)과 같이 된다.

$$V_{eq} = \sum_{j=1}^n E(j) a = -\frac{H \Delta T}{q n} \sum_{j=1}^n \frac{1}{T(j)}$$

$$\approx -\frac{H}{q} \int_{T_2}^{T_1} \frac{dT}{T} = -\frac{H}{q} \ln \left( \frac{T_1}{T_2} \right)$$

$$\approx -\frac{H \Delta T}{q T_2} \quad (7)$$

여기서  $T_1$ ,  $T_2$ 는 각각 전극1 및 전극2의 온도를 나타내며,  $\Delta T (= T_1 - T_2)$ 는 兩전극사이의 온도차이다. 식(7)로부터 등가전위  $V_{eq}$ 의 크기는 활성화 에너지  $H$ 와 온도차  $\Delta T$ 에 의하여 결정되는 것을 알 수 있다.

일반적으로 쌍극자 분극에 대한 TSC는 초기 상승 부분에서 분극의 완화는 작으므로 다음 식으로 표시된다[3, 7].

$$TSC \approx p_0 \sigma_0^{-1} \exp \left( -\frac{H}{KT_2} \right) \quad (8)$$

단, 식(8)에서 편의상 온도를  $T_2$  ( $T_1 = T_2$ )로 표시하였다. 한편, 시료내에 온도구배가 설정된 경우의 TSC ( $TG-TSC$ )는 다음과 같이 된다. [3, 9]

$$TG-TSC \approx p_0 \sigma_0^{-1} \left\{ \exp \left[ -\frac{H}{K(T_2 + \theta \Delta T)} \right] \right\} \quad (9)$$

여기서  $P_0$ 는  $t=0$  때의 초기 분극량,  $H$ 는 활성화 에너지,  $\theta$ 는 임의의 정수로서  $0 < \theta < 1$ 의 범위이며,  $\Delta T$ 는 온도차 ( $\Delta T = T_1 - T_2$ )이다.

식(8)과 식(9)를 비교하면,  $TG-TSC$ 는 전극2

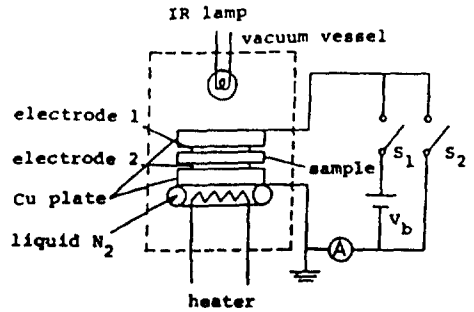


그림 3 온도구배 열자극 측정장치  
 Fig. 3 A Schematic diagram of the thermally stimulated measurements with a temperature gradient in the sample.

측의 온도  $T_2$ 에 대하여  $\Delta T=0$ 인 보통의 TSC보다  $\theta \Delta T$ 만큼 평행 이동한 특성을 나타내는 것을 알 수 있다. 또한 식(9)에 등가 전위  $V_{eq}$ 가 포함되지 않는 것은 인가전압  $V_b$ 에 비하여  $V_{eq}$ 가 매우 작기 때문이다.

### 3. 시료 및 측정장치

실험에 사용한 시료는 두께 0.3mm의 가교폴리에틸렌(XLPE) 필름이며,  $10^{-6}$  Torr 정도의 진공중에서 면적 약 8cm<sup>2</sup>이 되도록 A1을 증착하여 전극으로 사용하였다.

그림 3에 측정장치의 개략을 나타내었다. 시료에 온도구배를 제공하기 위하여 하부 전극측에는 히터 및 액체질소로서, 상부 전극측에는 적외선 집광 lamp를 사용하여 시료의 온도를 제어 하였다 [7].

### 4. 측정결과 및 고찰

#### 4.1 TSC에 의한 하전입자의 구별

그림4는 TSC의 Bias전압 의존성이다. 즉, Bias전압  $V_b$ 와 TSC 피크의 최대값  $I_{max}$ 를 plot한 것이다. 그림 4에서  $I_{max}$ 가  $V_b$ 에 의존하여 직선적으로 변화하고 있다. 이것은 쌍극자 분극에 의한 TSC 피크의 특징과 일치하는 것이다[3].

그림5는 Bias시간  $t_b$ 의 TSC 의존성이다. 그림5의 결과는 TSC가 약 1.5분~2분 정도의 짧은 Bias시간에 포화하는 것을 나타내는 것이다.

그림6은 Bias 전압 5400V, Bias시간 1분으로 하였을 경우, Bias 온도  $t_b$ 와 TSC의 최대값  $I_{max}$

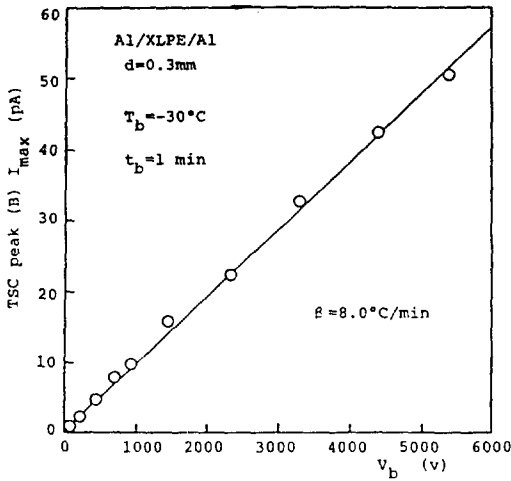


그림 4 I<sub>max</sub>의 bias 전압 의존성  
 Fig. 4 Biasing voltage dependence of I<sub>max</sub>.

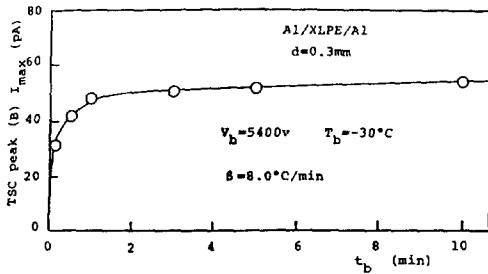


그림 5 I<sub>max</sub>의 bias시간 의존성  
 Fig. 5 Biasing time dependence of I<sub>max</sub>.

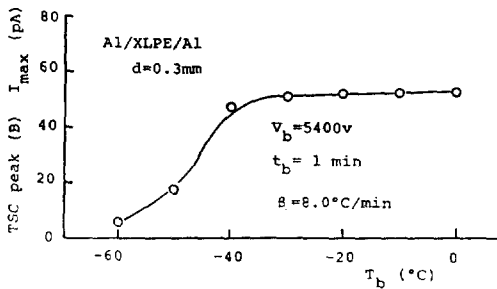


그림 6 I<sub>max</sub>의 bias온도 의존성  
 Fig. 6 Biasing temperature dependence of I<sub>max</sub>.

의 관계를 나타낸 것이다. 그림 6에서 I<sub>max</sub>가 -35°C 정도에서 포화하는 것을 알 수 있다. 따라서 그림 4, 5에서의 Bias온도 -30°C는 TSC의 쌍극자가 분극을 발생하기 위한 충분한 온도라는 것이

확인된다. 또한 그림 4~6의 측정 결과는 TSC의 원인이 쌍극자의 탈분극에 기인한다는 것을 나타내는 data이다.

4.2 Thermal Sampling<sup>3,7</sup>에 의한 TSC

일반적으로 TSC가 Bias시간 종료 후에 V<sub>b</sub>를 인가한 상태로 급냉하는데 대하여, Thermal Sampling의 방법은 Bias시간(본 논문에서는 t<sub>b</sub>=30sec)종료 후에 시료를 단락하여 급냉을 한 후 승온 측정하는 방법이다. 이것은 급냉할 때 시료가 단락상태이므로 V<sub>b</sub>가 시료에 영향을 미치지 못하며, Bias시간 정도의 완화시간을 가진 carrier만이 분극되는 특징이 있다. 본 논문에서는 Bias시간(30sec)이 매우 짧기 때문에 쌍극자성의 분극이 TSC로 표시될 것으로 생각된다. 이것은 보다 긴 시간이 필요한 이온공간 전하분극이나 주입 Trap에 의한 영향을 방지할 수 있기 때문이다[3, 7].

그림7은 Thermal Sampling의 결과로서 TSC의 피크가 깨끗하게 Sampling된 것을 알 수 있다. 그림 8은 그림 7의 결과를 Bucci plot[2, 3]한 것이다. 지금 TSC의 어느 피크가 쌍극자에 의한 탈분극이라면, 완화시간 τ는 다음과 같이 표시된다.

$$\tau = \tau_0 \exp(H/KT) \tag{10}$$

한편, 열자격 전류 I(T)는 분극의 시간 변화이므로

$$I(T) = -\frac{dP}{dt} = -\frac{1}{\tau} P(t) \tag{11}$$

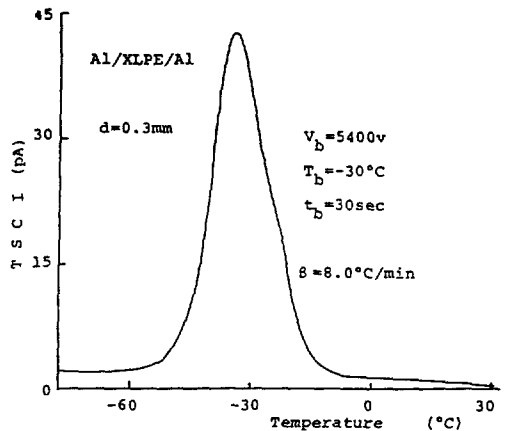


그림 7 Thermal sampling에 의한 TSC  
 Fig. 7 Thermal sampling of TSC

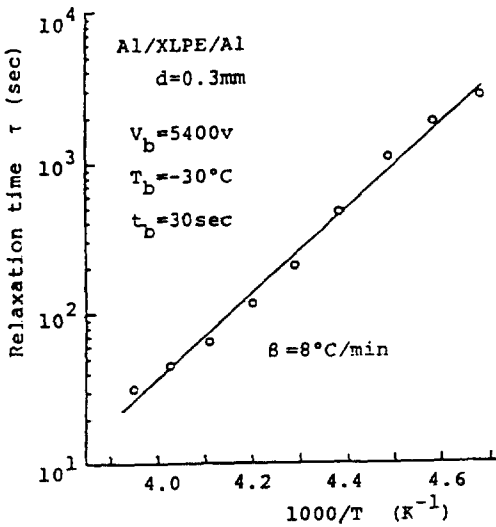


그림 8 Bucci plot  
Fig. 8 Bucci plot.

이 된다. 식(11)을 적분하여 분극값과 TSC의 면적과의 관계를 사용하면 다음 식이 된다.

$$I(T) = \frac{1}{\tau} \int_t^\infty I(T) dt \quad (12)$$

따라서

$$\tau = \frac{\int_t^\infty I(T) dt}{I(T)} \quad (13)$$

TSC의 원인이 쌍극자 분극에 기인한다면 그림 7로부터 TSC의 면적  $\int_t^\infty I(T) dt$ 와 TSC값  $I(T)$ 를 이용하여 식(13)에 의해  $\tau$ 를 계산하여 온도  $T$ 에 대하여 plot하면 식(10)에 의하여 직선의 관계가 될 것이다. 즉, 그림 8의 종축은 식(13)으로부터 계산한  $\tau$ 이며, 횡축은 온도  $1000/T$ 이다. 그림8의 결과는 직선관계가 잘 나타나고 있는 것으로 TSC의 원인이 쌍극자 탈분극에 기인한다는 것을 나타내는 것이다. 또한 그림 6의 Bias온도 특성에서 TSC의 초기상승 부분을 Arrhenius plot하여 활성화 에너지  $H$ 를 구한 결과  $-30^\circ\text{C}$ 의 경우에  $H=0.36\text{eV}$ 이었다. 이 값을 이용하여 식(10)으로부터 TSC피크의 온도에서 완화시간  $\tau_m$ 을 계산하면  $\tau_m=106\text{sec}$ 가 된다. 이 값은 그림 5의 Bias시간 의존성에서  $t_b=1.5\sim 2$ 분 정도에서 TSC가 포화하는 것과 비교할 때 잘 일치하는 결과이다.

이상의 TSC측정 결과로부터 쌍극자의 탈분극

으로 인한 TSC 피크라는 사실을 확인 할수 있었다.

### 4.3 시료에 온도구배가 있는 경우의 TSC

시료에 온도구배가 있는 경우의 TSC를 측정하기 위하여 시료에 실제로 온도구배가 설정되어 있는지 양전극 사이의 온도차이를 확인하였다.

그림 9는 쌍극자의 탈분극 온도 영역에서 양전극사이의 온도차이를 측정된 결과이다. (a)의 구배 승온이 약  $20^\circ\text{C}$ 의 일정한 온도차로서 승온되는 것을 알 수 있다. 또한 (b)의 균등 승온의 경우에는 전극1의 온도  $T_1$ 과 전극 2의 온도  $T_2$ 가 거의 일치하여  $T_1=T_2$ 상태로 승온되고 있다.

그림 10은 그림 9의 온도 특성을 이용하여 온도구배 TSC(TG-TSC)를 측정된 결과이다. 그림 10에서 실선으로 표시한것이 온도구배가 없는 경우의 보통의 TSC이며, 파선이 온도구배가 있는 경우의 TSC이다. 그림 10에서 TSC의 초기상승 부분을 비교하면, 온도구배가 있는 경우의 TSC가 온도구배가 없는 TSC에 비하여 온도차  $\Delta T=20^\circ\text{C}$ 보다 더 작게 약  $10^\circ\text{C}$  정도 저온측으로 평행이동한 특성이 있다. 또한 Bias전압의 극성에 대하여 거의 대칭적인 특성을 나타내고 있다. 이와 같은 특성은 앞에서 설명한 식(9)의 결과를 만족하는 것으로서 TSC의 피크가 쌍극자에 기인한다는 것을 알 수 있다. 한편, 온도구배 TSC(TG-TSC)

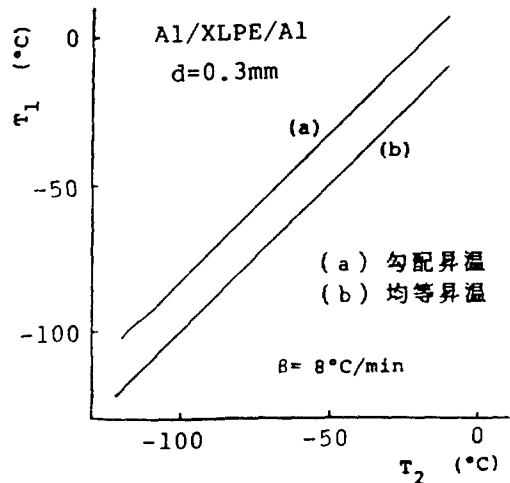


그림 9 시료의 온도특성

Fig. 9 Characteristics of temperature in the sample.

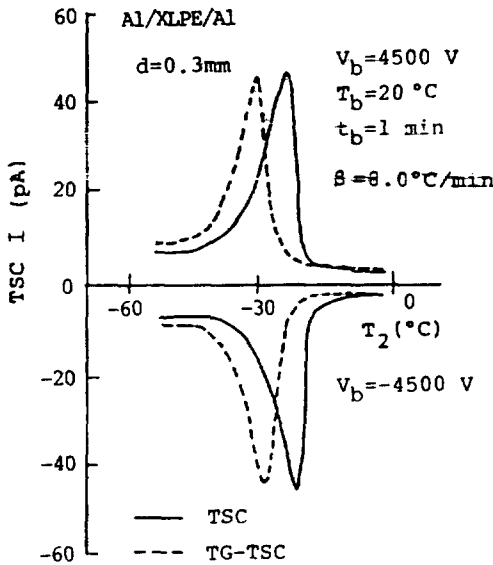


그림 10 TSC와 온도구배 TSC의 측정결과  
 Fig. 10 Experimental results of TSC and TG-TSC measurements on a XLPE film.

의 특성을 계산기Simulation[8]한 결과 온도구배 TSC의 피크가 보통의 TSC피크보다  $-\Theta\Delta T$ 만큼 평행 이동한 것으로서 그림 10과 잘 일치하는 것을 확인할 수 있었다. 또한, 온도구배 TSSP[7]의 측정 결과 역시 온도구배 TSC에 대응하는 것과 같은 현상이 관측되었다. 즉, Bias전압의 극성에 대하여 대칭적이며, 온도구배 승온의 TSSP가 균등 승온의 TSSP에 비하여 저온측으로 이동하여 피크가 관측되었다. 이들에 대해서는 다음 기회에 보고하겠다.

5. 검 토

필자들[7]은 시료에 온도 구배가 있는 경우와 없는 경우에서 전하의 여기상태 변화를 이용하여 하전입자의 극성을 판정하였다. 본 논문은 TSC의 초기상승 부분에서 전하분포가 보존되는 조건에서 쌍극자 분극의 이론 해석과 실험을 하였다. 즉, 쌍극자 분극의 완화시간을 될 수 있는 데로 단순화시키기 위하여 Thermal Smpling의 방법을 이용하여 측정하였다. 따라서 온도구배 TSC역시 온도구배 TSSP와 동일한 결과로 해석이 가능하였으며, 실험결과 또한 이론해석과 잘 일치한 것이었다. 한편, 시료내에 실제로 온도구배가 설정되어 있는지의 여부가 매우 중요하지만, 온도분포를

형성하는 시간의 확인이 곤란하며, 시료 양면의 온도변화를 check하는 것 또한 불가능하기 때문에, 여기서는 시료내에 온도구배가 형성될 때 까지의 시간을 평가하여 검토를 하였다. 온도 구배가 형성될 때 까지의 완화시간 $\tau$ 는 다음 식으로 주어진다[8, 9].

$$\tau = c\rho d^2 / K \tag{14}$$

여기서,  $c$ 는 정압비열,  $\rho$ 는 밀도,  $K$ 는 열전도율이다. 식(14)에서 두께 0.3mm의 시료에 대하여  $\tau$ 를 계산하면  $\tau$ 가 최대값일 때 약 115ms 정도이었다. 본 논문에서 실험한 TG-TSC의 승온속도  $\beta$ 는 8°C/min이므로 그 크기를 생각하면 측정중 거의 일정한 온도 구배가 시료내에 형성되어 있을 것으로 생각된다. 따라서 본 실험의 경우에, 전극과 시료의 계면에서의 커다란 온도 강하도 생각하기 곤란하므로, 시료내에 일정한 온도 구배가 형성되었을 것으로 생각하였다. 이와같은 사실은 쌍극자에 대한 TG-TSC의 측정이 시료내에 온도 구배가 형성되어 있다는 사실을 확인할 수 있는 하나의 방법이 될 수 있다는 것을 나타내는 것으로 생각된다.

6. 결 론

본 논문에서는 쌍극자의 탈분극에 기인하는 열자격전류의 피크에 대하여 시료에 온도구배를 설정한 온도구배 열자격 특성으로 검토하였다. 쌍극자의 배향을 Debye model에 의해 온도구배를 등가 전위로 생각할 수 있다는 것을 논의하였다.

온도구배 TSC의 초기상승 부분의 특성을 검토한 결과, 온도 구배가 있는 경우의 TSC가 온도 구배가 없는 보통의 TSC에 비하여  $-\Theta\Delta T$  ( $0 < \Theta < 1$ ,  $\Delta T$ : 온도차)만큼 저온측으로 평행 이동하는 특성이 확인되었다. 시료로서 가교폴리에틸렌(XLPE) 필름을 사용하여  $-35^\circ\text{C}$  부근에 나타나는 TSC의 피크가 쌍극자 분극의 탈분극에 기인한다는 것이 밝혀졌으며, 시료에 온도구배를 설정하여 TG-TSC를 측정된 결과, 실험결과와 이론이 잘 일치하였다.

이와 같은 사실은 실제로 시료내에 온도구배가 설정되어 있다는 것을 나타내는 것이다. 따라서 폴리머 필름 등에서 두께 방향으로 온도구배가 형성되어 있다는 것을 확인할 수 있는 방법이 없는 현실을 생각할 때, 본 실험에서와 같이 쌍극자 분극에 대한 TG-TSC를 측정하면 시료내에 일정한 온도구배가 형성되어 있는지 어떤지의 확인이

가능할 것으로 생각된다.

### 참 고 문 헌

[1] 岡小天：“誘電體論”現代工學社, 1977.  
[2] C. Bucci, R. Fiesh: Phys. Rev. Lett 12. p. 16, 1964.  
[3] 日野外：電氣絶録材料の熱刺激電流 電氣學會技術報告(11部) 第194號(昭60)  
[4] 日野, 鈴大：電氣學會論文集 A93 p449(昭48)

T.Hino: J. Appl. phys. 46 p. 1956, 1975.  
[5] J. Sworakowsk etal: J. Appl. Phys. 54 p. 4523, 1983. J. Appl. Phys. 56 p149, 1984  
[6] H. Frohlich: “Theory of Dielectrics” Oxford at the clarendon press, 1958.  
[7] 권 영수, 강 도열, 국 상훈：“온도구배 열자 격 측정에 의한 하전입자의 구별 및 극성판정”전기학회 논문지 38(8) p. 600, 1989.  
[8] K. Kato: ph. D.dissertation. Tokyo Institute of Technology. JAPAN 1986.  
[9] M. iwamoto etal: Trans. Inst. Elect. Eng. Jpn. 104-A p. 193, 1984.