

## (Sr·Pb)TiO<sub>3</sub>계 세라믹의 전기전도 및 DC 절연파괴 특성

### The Electrical Conduction and DC Breakdown Properties of (Sr·Pb)TiO<sub>3</sub> - Based Ceramic

김충혁\*, 정일형\*, 이준웅\*\*

Chung-Hyeok Kim, Il-Hyung Jung, Joon-Ung Lee

#### 요 약

본 연구에서는 (Sr·Pb)TiO<sub>3</sub>계 세라믹을 고압용 세라믹 캐패시터로 응용하기 위하여 일반적인 세라믹 소성법으로 제작하였으며, Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>·3TiO<sub>2</sub>의 첨가량에 따른 전기전도 및 DC 절연파괴 특성을 조사하였다.

전도전류는 측정온도의 상승과 Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>·3TiO<sub>2</sub>의 첨가량이 증가함에 따라 상승하였다. 실온에서 전도전류는 전계에 따라 3 영역으로 나누어졌다. 전계 15[kV/cm]이하의 영역에서는 오옴의 법칙이 성립하는 이온전도가 나타났으며, 전계 15[kV/cm]~40[kV/cm]인 영역에서는 전계에 강요된 강유전성 분극의 반전계에 기인하여 전류의 포화현상이 나타났다. 전계 40[kV/cm] 이상의 영역에서는 공간전하제한전류에 관련된 차일드법칙이 성립하였다.

DC 절연파괴 강도는 측정온도의 상승과 Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>·3TiO<sub>2</sub>의 첨가량이 증가함에 따라 감소하였다. 온도 100[°C] 이하에서는 전자적파괴가 일어났으며, 100[°C] 이상에서는 주울열과 유전손실에 의한 열적파괴가 나타났다.

#### Abstract

In this study, the capacitor of (Sr·Pb)TiO<sub>3</sub>-Based ceramic could be used in the field of high voltage were fabricated by the mixed oxide method.

The characteristics of electrical conduction and DC breakdown strength of the specimens with contents of Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>·3TiO<sub>2</sub> were investigated.

The following phenomena were observed: (1) The conduction current was increased with increasing the content of Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>·3TiO<sub>2</sub> and the temperature. (2) At room temperature, the conduction current was divided into the three steps as a function of DC electric field. (3) The first step was Ohmic region due to ionic conduction, below 15[KV/cm]. (4) The second step was shown a saturation which seems to be related to a depolarizing field occurring in field-enforced ferroelectric phase, between 15[KV/cm] and 40[KV/cm]. (5) The third step was attributed to Child's law related to space charge limited current, above 40[KV/cm]. (6) DC breakdown strength was decreased with contents of Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>·3TiO<sub>2</sub> and increasing temperature. (7) In the characteristics of DC breakdown, the electronic breakdown occurred by injection charge below 100[°C]. (8) Above 100[°C], the thermal breakdown was also showed by the Joule heat and the dissipation factor.

\* 광운대학교 대학원 전기공학과

\*\* 광운대학교 전기공학과

## 1. 서 론

최근 전기, 전자회로등에 세라믹 콘덴서의 수요가 급증하고 있는데, 이는 소형, 대용량 및 대량생산이 가능하고 가격이 저렴하다는 장점이 있기 때문이다[1].

많은 연구자들은 고유전율이며 전압의존성과 유전손실이 적은 고전압용 세라믹 콘덴서 개발에 심혈을 기울여 온 결과 최근에 (Sr·Pb)TiO<sub>3</sub>계 세라믹 콘덴서를 개발하게 되었다. 이 세라믹 콘덴서는 실온에서 비유전율이 2,000 이상이며 주파수 및 온도특성이 안정된 상유전체로서 고전압용으로 사용될 수 있는 특징을 갖고 있기 때문에 최근에 매우 주목을 받고있다 [2][3][4].

그러나, 이들 (Sr·Pb)TiO<sub>3</sub>계 세라믹 콘덴서의 물성은 아직 해결해야 할 점들이 많으며, 특히 전기전도 및 절연파괴특성에 대한 물성적 해석에 있어서는 그 이론이 아직 확립되어 있지 못하다.

그러므로, 본 논문에서는 (1-X) (Sr<sub>7/9</sub>Pb<sub>2/9</sub>) (1-y) (Ca<sub>1/5</sub>Mg<sub>4/5</sub>)yTiO<sub>3</sub> - X(Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>·3TiO<sub>2</sub>) (4≤X≤8(mol%), y=0.145)의 세라믹을 제작하여, Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>·3TiO<sub>2</sub>의 첨가량에 따른 미세구조를 관측하고, 이러한 미세구조가 전기적성질에 미치는 영향을 조사하였으며, 비파괴적 절연성 진단과 전기물성의 이론적 정보를 제공하기 위하여 전기전도 특성과 실용적인 측면에서 절연파괴기구에 대하여 연구한 결과를 보고한다.

## 2. 실험

### 2.1 시편의 제작

본 실험에 사용된 시편은 (1-X) (Sr<sub>7/9</sub>Pb<sub>2/9</sub>) (1-y) (Ca<sub>1/5</sub>Mg<sub>4/5</sub>)yTiO<sub>3</sub>-X(Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>·3TiO<sub>2</sub>) (4≤X≤8(mol%), y=0.145)로 조성하여 일반적인 세라믹 소성법으로 제작하였으며, 사용된 시료의 제조회사 및 순도는 표 3-1과 같다.

각 시료는 시편의 조성식에 따라 전자천평으로 평량하여 알루미늄 유발에서 알콜을 분산매로 하여 4시간 동안 혼합, 분쇄하였으며, 혼합분쇄된 분말을 진공오븐에서 2시간 동안 완전 건조시킨 후 알루미늄 도가니에 넣어 전기로에서 1,100(°C)로 2시간 동안 하소(Calcining)시켰다. 하소된 분말을 알루미늄 유발에서 재분쇄하고, 시브(Sieve, #200)를 통하여 입도를 균일하게 한 후, 바인더(Binder)로 폴리비닐알콜 (PVA:PolyVinyl Alcohol)을 1.5(wt%) 혼합하여 진공오븐에서 완전 건조

시켰다.

건조된 시료를 원통형 금형 (직경:20mm)에 3(g)씩 넣고 1.5(ton/cm<sup>2</sup>)의 압력으로 성형하였다. 성형된 시료를 알루미늄 도가니에 넣고 전기로에서 1,220(°C)로 2시간 동안 소결(Sintering)하였으며, 이 때의 온도상승율은 300(°C/hr)로 하였다.

또한, 소결용 분말로 ZrO<sub>2</sub> 분말을 사용하여 도가니 속에 넣고 밀폐하여 도가니 내의 온도를 균일하게 하였다. 소결된 시편은 두께를 1(mm)로 가공하였으며, 시편의 표면을 연마용 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 분말로 연마한 후, 초음파세척하였다. 시편의 양면에 1.5(mm)의 갭(gap)을 주고 실버프린팅(silver printing)기법을 이용하여 원형(직경:15mm)으로 전극 처리하였으며, 800(°C)에서 20분동안 열처리 함으로써 오염성 접촉이 되게 하였다[5].

전극 처리된 시편의 양면은 도입선(lead)을 납땜 부착하여 전기전도 및 절연파괴특성을 측정 하였다.

### 2.2 측 정

각 시편의 조성에 따른 미세구조를 관찰하기 위하여 표면처리된 시편을 화학적에칭(Chemical etching)한 후, 주사형전자현미경(Scanning Electronic Microscope; SEM, M, JSM 840A, Jeol, Japan)으로 Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>·3TiO<sub>2</sub>의 첨가량에 따라 미세구조를 관찰하였다.

제작된 시편의 소결성을 조사하기 위하여 시편의 공기중에서의 무게와 물속에서의 무게를 측정한 후 식 (1)을 이용하여 소결밀도를 계산하였다.

$$\rho = \frac{W}{W - W'} \cdot X \cdot \rho' \quad (\text{g/cm}^3) \quad (1)$$

여기서  $\rho$  : 시편의 소결밀도(g/cm<sup>3</sup>),

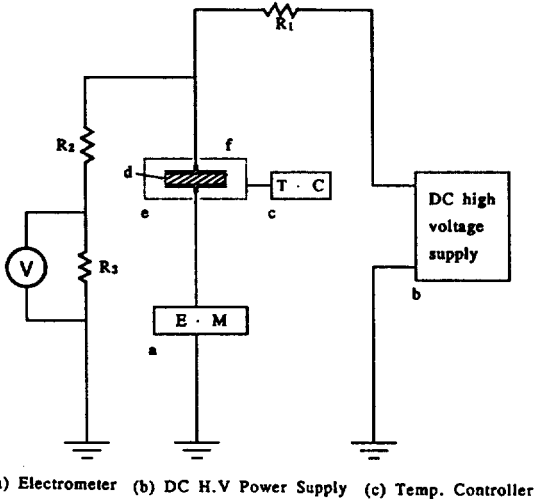
$\rho'$  : 물의 밀도(g/cm<sup>3</sup>),

W : 공기중에서의 시편의 무게(g),

W' : 물속에서의 시편의 무게(g)이다

DC 전압-전류특성 및 절연파괴특성은 Power Supply (Peschel Instrument, Co.), Electrometer (Keithley Instruments, 602)를 그림 1과 같이 연결하여 측정하였다. 시료의 온도 제어장치로서는 온도조절이 가능하게 설계된 항온조를 사용하였으며, 측정온도는 26(°C)에서부터 200(°C)까지로 하였다.

DC 전압-전류 특성과 절연파괴 전계는 같



(a) Electrometer (b) DC H.V Power Supply (c) Temp. Controller  
(d) Specimen (e) Silicon oil (f) Cell

그림 1. 실험장치의 블럭선도

Fig. 1. Block diagram of experimental apparatus.

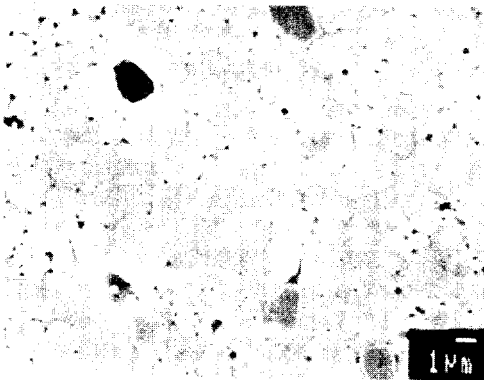
은 조성의 시료에 대해서 5 - 6개의 측정값을 평균하였으며 전극주위의 매질에 의한 연면부분방전을 방지하기 위하여 실리콘오일 (Shin-Etsu Co., Ltd KF-96) 속에 시료를 넣고, 설정된 각각의 온도에 대하여 전압을 500(V/s)의 일정한 속도로 승압하여 Electrometer를 사용하여 전도전류를 측정하였다.

### 3. 실험결과 및 고찰

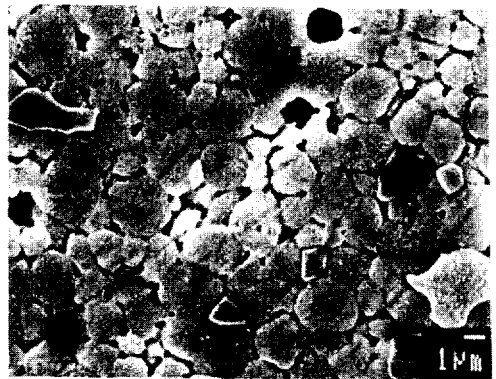
#### 3.1 미세구조 관측

사진 1은  $(1-X)(Sr_{7/9}Pb_{2/9})(1-y)(Ca_{1/5}Mg_{4/5})yTiO_3 - X(Bi_2O_3 \cdot 3TiO_2)$  ( $4 \leq X \leq 8(\text{mol}\%), y = 0.145$ )의 조성에 따른 각 시편의 미세구조를 관찰하기 위해 표면을 연마한후 화학적에칭한 시편의 전자현미경 사진이다.

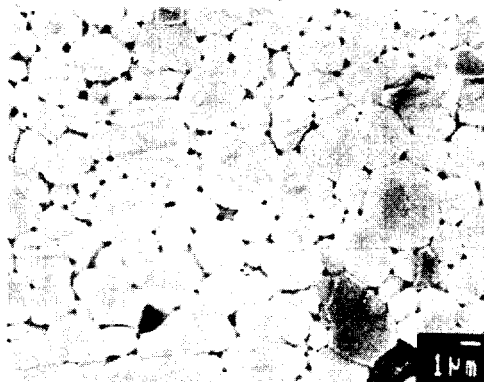
사진 1로 부터,  $Bi_2O_3 \cdot 3TiO_2$ 의 첨가량이 4 [mol%] 일때 기공율이 적고 가장 치밀한 소결체가 얻어졌으며, 그 이상 첨가시에는 결정립은 다소 성장하며 소결밀도는 오히려 저하



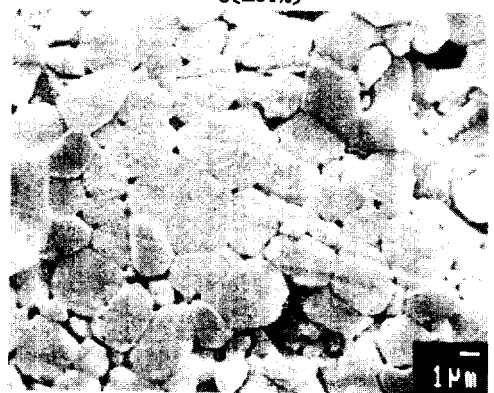
4[mol%]



6[mol%]



7[mol%]



8[mol%]

사진 1.  $Bi_2O_3 \cdot 3TiO_2$ 의 첨가량에 따른 전자현미경 사진(x4,000)  
Photo. 1 SEM photo, with contents of  $Bi_2O_3 \cdot 3TiO_2$

하였다. 이것은 Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>·3TiO<sub>2</sub>의 과잉첨가에 의하여 석출장해가 일어나 입계의 이동도가 감소하여 기공율이 높아지기 때문이다.

소결밀도는 Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>·3TiO<sub>2</sub>의 첨가량이 4(mol%)일때 5.40(g/cm<sup>3</sup>)으로 가장 높았으며, 첨가량이 증가됨에 따라 소결밀도는 다소 저하하였으나 평균 소결밀도가 5.37(g/cm<sup>3</sup>)으로 이론밀도의 90% 이상을 나타냈다.

한편, YAMAMOTO 등(2)은 Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>·3TiO<sub>2</sub>가 5(mol%) 첨가된 (Sr·Pb)TiO<sub>3</sub>-Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>·3TiO<sub>2</sub>계 세라믹에서 분석전자현미경을 사용하여 미세구조를 관찰한 결과, 입계층은 존재하지 않던가 존재한다고 하여도 그 두께는 10(nm) 이하로 얇기 때문에 상유전성을 나타내는 전기적 특성은 입계 보다는 결정립의 영향을 주로 받는다고 하였다.

### 3.2 전압-전류 특성

시료 양단에 DC전압을 인가하여 500(V/s)의 일정한 속도로 승압하면서 Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>·3TiO<sub>2</sub>가 각각 4, 6, 7, 8(mol%) 첨가된 시편의 전압-전류특성을 측정하였다. 그 결과 각 첨가(mol%)에서 비슷한 결과가 얻어 졌으므로 Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>·3TiO<sub>2</sub>가 4(mol%) 첨가된 시편에 대한 전압-전류곡선만을 그림 2에 나타냈다.

그림에서 알 수 있는바와 같이 측정온도가 상승함에 따라 누설전류는 점진적으로 증가하였으며, 약 15(kV/cm)이하의 전계가 시료 양단에 인가 되었을 때 누설전류는 거의 직선적으로 증가 하였다. 그러나 그 이상의 전계에서 누설전류는 급격히 비직선적으로 증가하여 최종적으로 절연파괴에 이르고 있음을 알 수 있다.

한편, Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>·3TiO<sub>2</sub>를 4 - 8(mol%) 첨가한 시편에 대해 상온(26°C)에서 관측한 전압-전류특성을 그림 3에 나타냈다. 그림에서와 같이 Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>·3TiO<sub>2</sub>의 첨가량이 증가함에 따라 전도전류는 전체적으로 증가 하였으며, 전계가 약 15 - 40(kV/cm)의 범위에서는 포화화다가 그 이상에서는 전계의 2승에 비례하여 증가하였다.

그림에서와 같이 인가전계가 15(kV/cm)이하인 제 I 영역과 15(kV/cm) - 40(kV/cm)사이의 제 II 영역 및 40(kV/cm) 이상의 제 III 영역으로 나눌 수 있는데, 이들 각 영역의 전도기구에 대하여 고찰하여 보면 다음과 같다.

#### ① 제 I 영역

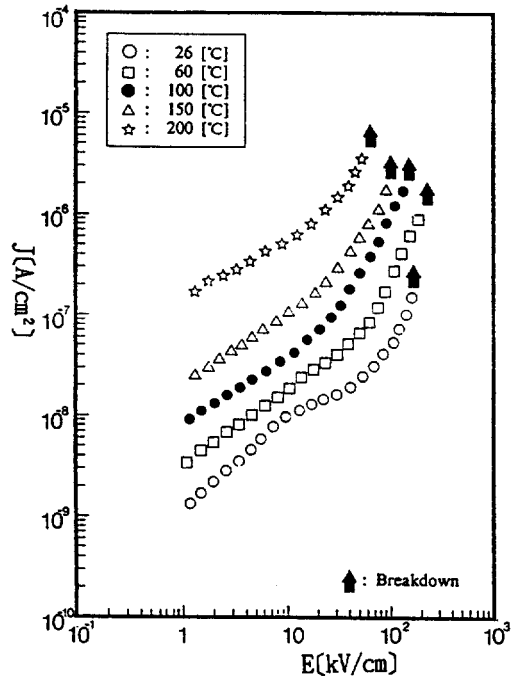


그림 2. 온도변화에 따른 전압-전류곡선 (4(mol%))

Fig. 2. Characteristics of conduction current vs. electric field with variation of temperature (4(mol%))

일반적으로 유전세라믹스의 전도현상은 그 구조의 복잡성과 함께 캐리어가 주로 이온과 전자의 혼합형태이기 때문에 정확한 캐리어의 기원을 밝히는 데 어려움이 많다.

그림 3과 같이 시료 양단에 인가된 전압이 15(kV/cm)이하인 저전계영역(제 I 영역)에서는  $J = ena\nu \cdot \exp(-U/kT) \cdot eEa/kT$  인 이온전도전류가 홀러 오옴의 법칙(Ohm's law)이 성립하는 것으로 생각된다(6). 여기서, n: 전하밀도, a: 이온의 도약거리,  $\nu$ : 이온의 진동수, k: 볼츠만상수, E: 인가전계이다.

이와같은 이온들은 시료제작시 첨가된 각종 불순물의 영향으로 나타나게 되는데 이들 이온들의 전도기구는 Bi<sup>3+</sup> 이온이 Sr<sup>2+</sup>, Pb<sup>2+</sup> 및 Ca<sup>2+</sup> 이온과의 부분치환에 의한 격자결함을 매개체로 저전계, 고온에서 이동 활성화 되는 것으로 생각된다(7).

한편, 이온전도는 이온이 이동할 수 있는 격자결함의 존재에 의존하여 인가전계 방향으로 계속해서 구조적결함을 통하여 이동한다고 하였으며(8), 이온물질의 전기전도성은

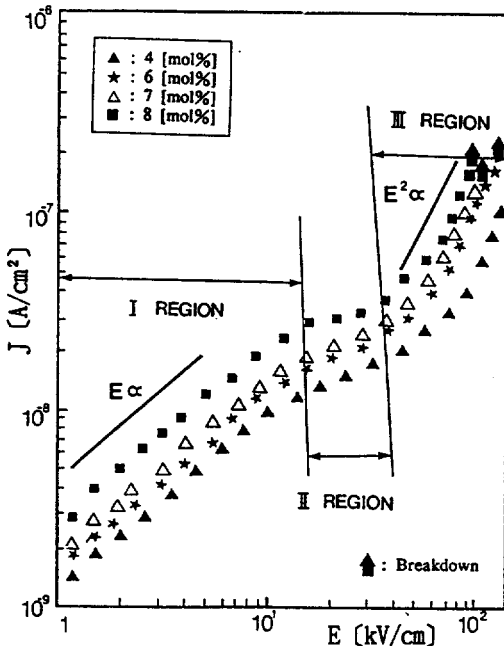


그림 3. 26(°C)에서의 Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>·3TiO<sub>2</sub>의 첨가량에 따른 전압-전류곡선  
 Fig. 3. Characteristics of conduction current vs. electric field with contents of Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>·3TiO<sub>2</sub> at 26(°C)

주로 결함구조와 이온의 이동성으로 설명된다고 하였다[9]. 또한, 이 영역에서는 불순물의 영향을 강하게 받는다고 알려져 있다[6].

그림 4는 15(kV/cm)의 전계에 있어서 ln σ와 1/T를 Arrhenius plot 하여 얻었다. 각 시편마다 도전율의 값은 거의 같으며 150(°C)를 경계로하여 직선의 기울기가 변하고 있는데 이들 온도영역에서 직선의 기울기로부터 Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>·3TiO<sub>2</sub>의 첨가량에 따라 구한 활성화 에너지는 표 1과 같다.

일반적으로 활성화에너지의 값은 캐리어의 종류와 이동도에 관계하게 되므로, 활성화에너지의 값이 다른 고온영역과 실온영역에 있어서는 전기전도기구가 다를것으로 생각된다.

실온영역에 있어서는 활성화에너지가 약 0.2(eV)로 비교적 작은 값을 나타내므로 이온성전도 외에 전자성전도도 포함 되었으리라 생각되며, 고온영역에 있어서는 활성화에너지가 각 시편에 따라서 0.54 - 0.80(eV)로 실온영역보다 비교적 큰 값을 나타내는

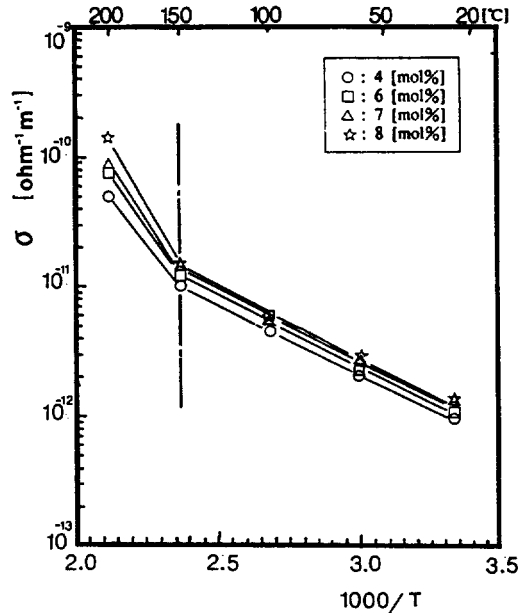


그림 4. 오옴영역에서의 활성화 에너지 곡선  
 Fig. 4. Plot of activation energy with contents of Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>·3TiO<sub>2</sub> in Ohmic region

것으로 부터 전기전도에 기여하는 캐리어는 이온이라고 생각된다.

② 제 II 영역

이 영역에서의 전도전류는 전계의 증가에 따라 증가비율이 둔화하여 포화하고 있다. 이러한 현상은 모든 시편에서 나타났으며, 자발분극을 갖는 강유전체의 전압-전류특성에서 흔히 볼수있는 특징이다[10].

본 실험에서 사용된 시편과 같은 (Sr·Pb)TiO<sub>3</sub>계 세라믹에 있어서 Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>·3TiO<sub>2</sub>가 첨가 되었을때 나타나는 현상으로서 DC전계가 인가되면 전계에 강요된 강유전상이 나타난다고 보고하고 있으며[11], 또한, S.Nishigaki등[12]도 같은 조성의 시편에서 DC전계의 인가에 의하여 큐리온도의 뚜렷한 증가를 보고하고 있다.

따라서, 본 시편에서 전압-전류특성의 포화현상은 실온에서 전계가 약 15(kV/cm) - 40(kV/cm)까지 인가된 경우 큐리온도가 측정온도 이상으로 이동하여 (이미 보고된 유전특성에서 비유전율 피크에 의해 관측된 큐리온도는 -30(°C) 부근이었다[13].) 자발분극을 갖는 강유전체로 변이되며, 자발분극의 배열에 따른 강유전분극에 의하여 생기

표 1. 오음영역에서의 활성화에너지  
Table 1. Activation energy in Ohmic region

온도영역	Bi <sub>2</sub> O <sub>3</sub> ·3TiO <sub>2</sub> 의 첨가량			
	4[mol%]	6[mol%]	7[mol%]	8[mol%]
26[°C]~150[°C]	0.21[eV]	0.22[eV]	0.21[eV]	0.2[eV]
150[°C]~200[°C]	0.54[eV]	0.62[eV]	0.66[eV]	0.8[eV]

는 반전계(depolarizing field) 때문에 전기전도에 기여하는 하전입자에 가해지는 실효전계는 인가전계에 비례하지 않기 때문이다. 그러나 60[°C]이상의 경우에 있어서 이러한 전류포화현상이 나타나지 않는 것은 S. Nishigaki 등이 보고한 바와 같이 전계에 의한 큐리온도의 증가가 60[°C] 이상으로는 되지 않기 때문으로 생각된다.

### ③ 제 III 영역

전계가 40[kV/cm] 이상 인가된 이 영역에서의 전도전류는 전계의 2승에 비례하여 비직선적으로 증가하다가 최종적으로 사용 시편에 있어 절연파괴가 일어남을 알 수 있다. 고체 유전체에 있어서 저전계전도는 이온성 전도성분이 주체를 이루는 경우가 많지만 전계가 상승하여 이와 같이 고전계 영역에 들어서면 전자성전도가 급증하여 절연파괴에 이르는 경우가 많게 된다(6).

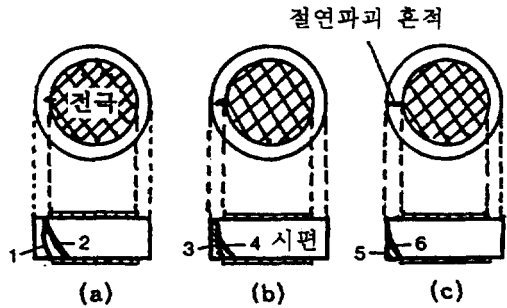
이 영역에서 인가전계에 따라 전류가 비직선적으로 급증하여 가는 것은 캐리어밀도가 전계에 의하여 증가하는 것에 기인하며 고전계에서 자유전자 밀도는 일반적으로 유전체 bulk 내의 전자전류 I<sub>e</sub>와 전극으로부터의 주입전류 I<sub>i</sub>와의 평형으로 결정된다.

이때 저전계 일때는 I<sub>e</sub> < I<sub>i</sub>가 성립되어 양(兩) 전극을 중심으로 헤테로(hetero) 전하층이 형성되고, 비교적 고전계일때는 I<sub>e</sub> > I<sub>i</sub>로 되어 양(兩) 전극을 중심으로 호모(homo) 전하층이 유기되는데 이 제 III 영역의 전도기구체는 고전계하에서 음극으로부터 전자의 주입이 이루어져 이 주입된 호모 공간전하에 의하여 전도전류는 제한되고, 결국 차일드의 법칙(Child's law)인 전계의 2승에 비례하여 증가하다가 파괴에 도달하는 것으로 사료된다.

또한, 이러한 사실들은 岡崎清 등(10)이 보고한 BaTiO<sub>3</sub> 세라믹의 연구결과와도 잘 일치하고 있다. 즉, 큐리온도 이상과 이하의 온도에서 절연파괴가 일어날 때까지의 전압

### 3.3 절연파괴 특성

세라믹의 절연파괴 전압은 전극의 형상, 시편의 결정구조 및 주변매질에 많은 영향을 받으며 그림 5와 같은 절연파괴경로를 갖는다.



1 ~ 6 : 절연파괴 흔적

그림 5. 절연파괴시 파괴경로의 종류  
Fig. 5. Types of breakdown traces

전류 특성을 측정된 결과 서로 상이한 결과를 얻었는데, 큐리온도 이상의 상유전성 영역에서는 이온이나 공격자점등의 완만한 이동에 의한 공간전하분극의 영향을 받아 고전계 영역에서의 전류는 전계의 증가와 함께 비직선적으로 증가하여 파괴되고, 큐리온도 이하의 강유전성 영역에서는 공간전하분극은 형성되지 않고 자발분극의 반전계에 의하여 전도전류는 포화하다가 즉각적인 파괴가 일어남을 보고하고 있다.

한편, Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>·3TiO<sub>2</sub>의 첨가량이 증가함에 따라 도전율이 상승하는 것은 미세구조에서 알 수 있는 바와같이 소결밀도의 감소로 기공율이 높고, 결정립이 성장함에 따라 고저항성분인 입계가 줄어들므로 시편의 체적저항율이 감소하기 때문으로 생각된다.

(a)는 전극의 갭(gap)이 클때 1과 2의 경로를 통하여 파괴되며, (b)는 갭이 크고 비유전율이 크게 될때 전극단으로 부터 갭의 중간까지 방전이 진전하여 3과 4의 경로를 통해 관통파괴 한다. (c)는 갭이 없거나 있어도 작은 경우 또는, 비유전율이 작고 파괴전압이 높은 경우 5와 6의 경로를 통해 연면방전 혹은 일부 관통파괴가 일어나게 된다. 특히, 시편내부에 공공과 같은 구조적 결함이 있을때는 그곳을 통해 낮은 전계에서 쉽게 파괴되므로 정확한 절연파괴 전계값을 얻는 데는 더욱 어려움이 있다.

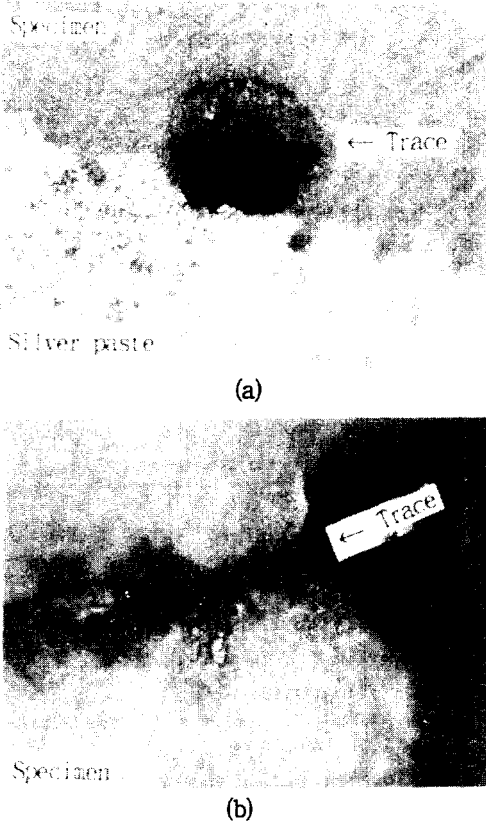


사진 2. 절연파괴 트랙의 광학 현미경  
Photo. 2 Optical micrograph of breakdown trace

그러므로 사진 2는 연면방전을 방지하고 전계의 집중에 의한 단효과(edge effect)에 의하여 실제적인 절연파괴 전계값이 감소하는 것을 막기 위하여 전극의 갭을 최적화하여 1.5(mm)로 하였을 때 광학현미경을 이용하여 관측한 절연파괴흔적이다.

사진 (a)는 전계강도가 가장 큰 전극의 가장자리에서 관통파괴가 일어난 모습이며 사진 (b)는 시편 내부를 관통하는 절연파괴 경로를 보여주고 있다.

각 조성의 시편에 대한 DC 절연파괴 전압을 온도에 따라 관측하여 그림 6에 나타냈다. 그림에서와 같이 모든 시편은 상온에서 100[°C]까지 절연파괴 전계값이 거의 일정하였으며, 그 이상에서는 급격한 감소를 나타내었다. 또한 Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>·3TiO<sub>2</sub>의 첨가량이 증가됨에 따라 절연파괴 전계값은 다소 감소하였다. 절연파괴강도의 온도의존성은 절연

파괴기구를 결정하는 직접적인 요인이 되므로 그림에서와 같이 100[°C]이하의 A영역과 100[°C]이상의 B영역으로 나누어 생각할 수 있는데, 이들 영역에 대한 절연파괴의 기원은 다음과 같다.

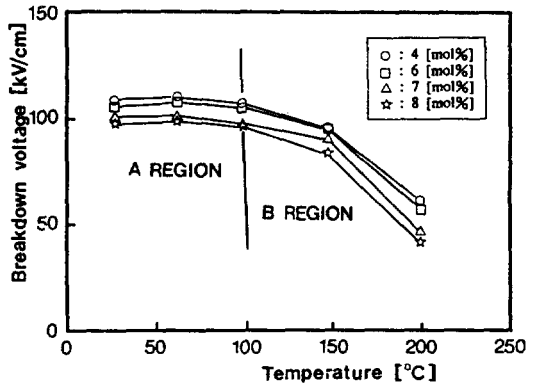


그림 6. Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>·3TiO<sub>2</sub>의 첨가량에 따른 절연파괴전압의 온도의존성

Fig. 6. Breakdown voltage with contents of Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>·3TiO<sub>2</sub> as a function of temperature.

① A 영역

이 영역은 비교적 실온에서 관측되는  $\partial E_{BD}/\partial T \geq 0$ 인 영역으로 전자의 거동에 의한 전자적파괴(Electronic Breakdown)가 일어나는 영역으로 알려져 있다(9). 전자적 절연파괴에 있어서 전도전자는 전계에 의하여 가속되어 에너지를 받음과 동시에 다른 전자나 격자와의 충돌을 통해서 에너지를 잃고 평형하게 된다. 이때 내부전자는 충돌에 의하여 더욱 많은 수의 전자를 방출하고 전계에 의하여 가속된다. 이 과정이 가속도적으로 진행되어 전자의 급격한 흐름을 불러일으키고 결국 절연파괴에 이르게 된다.

한편, 吉村昇等(14)은 세라믹의 절연파괴에 있어서 기공을 많이 포함하는 만큼 절연파괴전계는 감소하며 기공내에서의 기중방전이 파괴의 원인이 된다고 하였다. 또,  $\partial E_{BD}/\partial T \geq 0$ 인 영역에서는 온도의 상승과 함께 세라믹 유전체내에 존재하는 기공내의 기압이 상승하고 도전율이 상승하는 것으로 부터 기중방전의 개시전압이 높아지기 때문이라고 하였다.

본 실험에 사용된 시편에 있어서 Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>·3

TiO<sub>2</sub>의 첨가량이 증가됨에 따라 절연파괴 전계값이 감소하는 것은 사진 1에서 본 바와 같이 세라믹 내부의 공공이 증가하고, 결정립의 성장에 따라 단위체적당 결정립의 수가 감소하여 저항이 높은 입계의 수가 줄어들기 때문인것 같다.

### ③ B 영역

$\partial E_{BD}/\partial T \leq 0$ 인 이 영역에서는 전자적인 파괴 외에 전도전류의 국부적 가열과 유전손실에 의한 열적파괴가 고려되어진다. 이는 전기적 에너지손실이 온도를 상승시키고, 높은 주위온도로 인하여 전도도가 증가되고 나아가서는 전류의 통로를 만들어 절연파괴 전계는 온도가 증가함에 따라 감소되는 것으로 생각된다.

## 4. 결 론

본 논문에서는 (1-x)(Sr<sub>7/9</sub>Pb<sub>2/9</sub>)(1-y)(Ca<sub>1/5</sub>Mg<sub>4/5</sub>)yTiO<sub>3</sub> - X(Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>·3TiO<sub>2</sub>) (4 ≤ X ≤ 8 [mol%], y=0.145) 세라믹의 전기전도 및 절연파괴특성을 분석한 결과 다음과 같은 결론을 얻었다.

- 1) 전계가 15[kV/cm]이하의 영역에서는 전계에 비례하는 이온성 전도전류가 흘렀으며 상온에서는 전자성전도의 기여도 보여졌다.
- 2) 온도 26[°C], 전계 15 - 40[kV/cm]의 영역에서는 전계에 의해 강요된 강유전성 분극의 반전계(depolarizing field)에 기인하여 전류의 포화현상이 나타났다.
- 3) 전계가 40[kV/cm]이상의 영역에서는 전극으로 부터 주입된 공간전하에 기인한 전도전류가 전계의 2승에 비례하여 비직선적으로 증가 하였다.
- 4) (Sr·Pb)TiO<sub>3</sub> 세라믹에 Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>·3TiO<sub>2</sub>의 첨가량이 증가함에 따라 전도전류는 점진적으로 증가하였다.
- 5) 100[°C]이하의 온도범위에서 모든 시편의 절연파괴전계는 온도의 증가에 따라  $\partial E_{BD}/\partial T \geq 0$ 인 전자적인 파괴를 나타냈다.
- 6) 100[°C] - 200[°C]의 온도범위에서, 절연파괴전계는 온도의 증가에 따라 감소하는 열적파괴가 나타났다.
- 7) (Sr·Pb)TiO<sub>3</sub> 세라믹에 Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>·3TiO<sub>2</sub>의 첨가량이 증가함에 따라 절연파괴 전계는 감소하였다.

이상의 결론으로부터, 본 실험에 사용된 (Sr·Pb)TiO<sub>3</sub>계 세라믹은 실온 영역에서 100

[kV/cm]이상의 절연파괴 전계값을 갖는 고압용 세라믹캐패시터로서 응용 가능성이 기대된다.

## 참 고 문 헌

- 1) 綜合技術出版 編輯委員會 編, "コンデンサ最近技術と材料 '86年版", 綜合技術出版, pp. 1-11, (1985)
- 2) 山本博孝, 小笠原 正, "高誘電率 (Sr·Pb)TiO<sub>3</sub>系 誘電體 セラミックス材料の開発" 日本セラミックス協會學術論文誌, 97[6], pp. 619-22, (1989)
- 3) 山本博孝, 小笠原 正, "高誘電率 (Sr, Ca, Pb)TiO<sub>3</sub>系 誘電體 セラミックス材料の開発" 日本セラミックス協會學術論文誌, 97[7], pp. 706-9, (1989)
- 4) N. Yamaoka and T. Matsui, "Properties of SrTiO<sub>3</sub>-based boundary layer capacitors", Advan. Ceram., 1, p. 232, (1981)
- 5) J. M. Herbert, "Ferroelectric Transducer and Sensors", Gordon and Breach Science Publishers, Inc., (1982)
- 6) 日本電氣學會, "誘電體現象論", ホム社, pp. 240 - 242, 220, (1988)
- 7) W. Johnson, L. E. Cross, and F. A. Hummel, "Dielectric Relaxation in Strontium Titanates Containing Rare-Earth Ions, J. Appl. Phys., 41[7], 2828-33, (1970)
- 8) A. J. Moulson and J. M. Herbert, "Electroceramics", Chapman and Hall, pp. 43-46, (1990)
- 9) W. D. Kingery, H. K. Bowen, and D. R. Uhlmann "Introduction to Ceramics", John Wiley & Sons, p. 852, (1975)
- 10) 岡崎 清, セラミックス 誘電體工學, 學獻社, pp. 200-204, (1983)
- 11) J. M. Herbert, "Ceramic Dielectrics and Capacitors", Gordon and Breach Science Publishers, Inc., p. 165 (1985)
- 12) S. Nishigaki, K. Murano and A. Ohkoshi, " Dielectric properties of ceramics to the system (Sr<sub>0.50</sub>Pb<sub>0.25</sub>Ca<sub>0.25</sub>)TiO<sub>3</sub>-Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>·3TiO<sub>2</sub> and their applications in a high voltage capacitor", J. Amer. Ceram. Soc., 65, pp. 554-60, (1982)
- 13) 이 준용, 김 충혁, 최 윤식, "주파수 및 온도변화에 따른 (Sr·Pb)TiO<sub>3</sub>계 세라믹의 유전특성", 대한전기학회, 40권, 12

- 호, PP. 1252 - 1261 (1991)  
 14) 吉村 昇, 伊藤 淳, 船木重浩, 小笠原 正  
 “誘電體 セラミックス の 電氣傳導 と  
 絶緣破壞に 及ぼす 氣孔の 影響”, 日  
 本電氣學會誌 A, 108(4), pp. 155-61, (19  
 88). (1992년 8월 24일 접수)



**정일형**

1967년 12월 8일생. 1990년 2월  
 광운대학교 전기공학과 졸업. 1  
 992년 2월 광운대학교 전기공학  
 과 석사. 1992년 현재 광운대학  
 교 전기공학과 박사과정.



**김충혁**

1959년 9월 27일생. 1986년 2월 광  
 운대 전기공학과 졸업. 1988년 9월  
 광운대 전기공학과 석사. 1992년  
 광운대 전기공학과 현재 박사과정  
 수료



**이준웅**

1940년 10월 24일생. 1964년 2월  
 한양대 전기공학과 졸업. 1970년  
 2 월 한양대 전기공학과 석사.  
 1979년 3월 France국립 Montpell  
 ler 전기공학과(공박). 1990년 1~  
 12월 미국 미시시피 주립대 교환  
 교수. 1992년 현재 광운대 전기공학과 교수.