

論 文

結晶粒径のばらつきが積層チップバリスタの電気特性に およぼす影響

カビール・ムハムドウル^{*1}, 鈴木雅史*, 吉村昇*

(2004年11月17日受付; 2005年5月11日受理)

Influence of Dispersion of Grains on Electric Characteristics of Multi Layer Chip Varistors

Mahmudul KABIR^{*1}, Masafumi SUZUKI* and Noboru YOSHIMURA*

(Received November 17, 2004; Accepted May 11, 2005)

An influence of non-uniformity of grains on the electric characteristics of a varistor was investigated by equivalent circuit method. We regarded a phase of a multi layer chip varistor and made an equivalent circuit on a uniform Zinc oxide (ZnO) grain of 11.3 μ m size. When a grain is smaller than the average size then more grains are essential to be placed in the same area in comparison of the average grains. As a result, the number of grain boundary increases. Electrically, it causes the breakdown voltage (V_b) larger than the average one. Oppositely, V_b becomes smaller than the average when grains are bigger than the average. We focused on grains of 11 different sizes and calculated their V-I relationship. A simulation model on one phase of a varistor was proposed with three types of normal distribution of the grains. 20 circuits were made automatically on random patterns of ZnO grains for each normal distribution of grains. V-I relationships for each circuit were calculated. The results showed that dispersions of grain size cause a variation in the electrical characteristics of a varistor. e.g. standard deviation of 0.40V for V_b was calculated for a dispersion of 4.42 μ m in the grains.

1. はじめに

近年, 携帯電話に代表される携帯機器の急速な発展に伴い, 静電気やサージなどから電子機器を守るノイズ対策が重要となってきた。また, 携帯機器の小型化も進んでおり, ノイズ吸収用として用いられるバリスタも小型化, 積層化が進んでいる。このため, 電極間に存在するセラミック結晶粒子の数が急速に減少しており, 結晶個々の特性がバリスタの電気特性に与える影響が注目されている。そこで, 我々はセラミックの結晶粒子一つの特性を解析できる等価回路モデルを構築し, 回路シミュレータを用いた回路解析をおこなった¹⁾。その結果, 結晶一個の平均的な電気特性を決定することに成功した。

しかし, バリスタ内の結晶配置は一様ではなく, ばらつきをもっている。そのため, 本論文では, 結晶や粒界のばらつきを先に決定した等価回路モデルに組み入れる手法を考案し, これらのばらつきがバリスタの電圧-電流(V-I)特性に与える影響を計算した。さらに計算結果と実測値の比較より本手法の妥当性を検討した。

結晶配置のばらつきを模擬する際に, 実際の結晶配置のばらつきから新たに等価回路モデルを作製するには限界があり, また結晶配置のばらつきは統計的に考える必要がある。そこで, バリスタ内の結晶配置及び粒径のばらつきによる電気特性への影響を統計的に調べる研究が進んでいる²⁻⁷⁾。

本研究では前報¹⁾で示したように, 粒界の V-I 特性の非線形性は電圧依存型抵抗により表現されている。結晶粒径が小さくなると電極間に存在する結晶数が増加し, 等価回路では電極間の電圧依存型抵抗の数が増加することになる。このため, 電極間に同じ電圧を印加した場合, 一つの電圧依存型抵抗に加わる電圧は低くなる。等価回路の形状を変更せずに, この電気特性を模擬するには, 電流が急増するバリスタ電圧(V_b)が高い方にずれるように電圧依存型抵抗の特性を変化させれ

キーワード: バリスタ, 微細構造, 結晶粒径, 電気特性, シミュレーション解析

* 電気電子工学科, 秋田大学
(010-8502 秋田市手形学園町1-1)

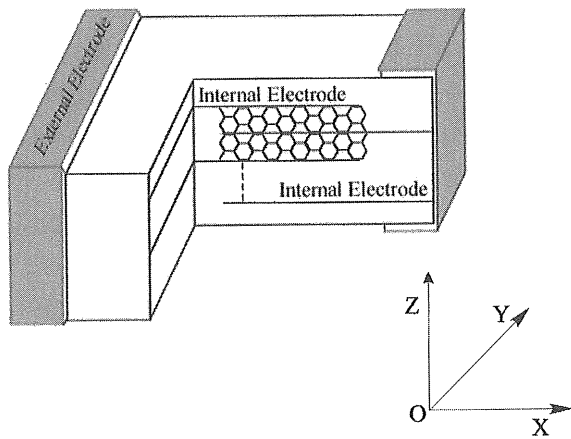
Department of Electrical and Electronic Engineering, Akita University, 1-1 Tegata Gakuen Chou, Akita 010-8502, Japan.

¹ kabir@kc6.ee.akita-u.ac.jp

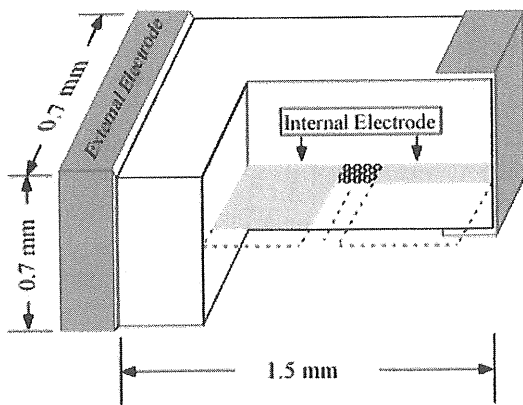
ばよい。そこで、本研究では結晶粒径のばらつきを模擬するために、平均的な結晶の特性を中心に V_b の異なる 11 種類の電圧依存型抵抗を考えた。そして、結晶配置のばらつきを統計的に考慮するため、この 11 種類の特性を持った電圧依存型抵抗を正規分布に従って配置した等価回路を考えた。なお、正規分布に従った電圧依存型抵抗の配置は、正規乱数を用いることにより自動的に行われた。

2. 等価回路

図 1 (a) は実際の積層チップバリスタの概略図で、(b) は前報¹⁾ で用いた実験用に作製された特殊な試料の概略図である。前報では図 1 (b) に示す試料の電気特性及び誘電特性より



(a) 一般的な積層チップバリスタ



(b) 結晶の特性を調べるため作られたバリスタ

図 1 一般的な積層チップバリスタと本研究で用いたバリスタの概略図

Fig.1 Schematic diagrams on ordinary varistor and sample used in experiment.

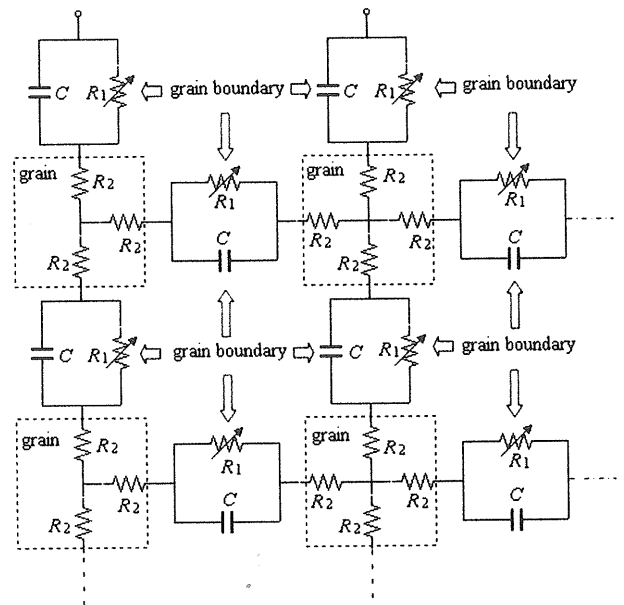


図 2 積層チップバリスタの一層を模擬した等価回路
Fig.2 Equivalent circuit for a phase of chip varistor.

ZnO 結晶と粒界の平均的な電気特性を決定した。本報ではこれらの研究成果を利用し、図 1 (a) の積層チップバリスタにおいて Y 軸方向の結晶配置は均一であると仮定し、XZ 平面について考えることにする。また、前報では ZnO 結晶が六角形であることを考慮し等価回路モデルを作成したが、走査型電子顕微鏡(SEM)による観察より実際に六角形の結晶は極めて少なかったため、結晶形状を等価回路構成の簡単な正方形で仮定し、粒内を低抵抗(R_2)で、粒界を電圧依存型抵抗(R_1)とキャパシタンス(C)の並列回路で表した^{8~11)}。従って、積層バリスタの XZ 平面を示す等価回路は図 2 のようになる。この回路のパラメータは PSpice 回路シミュレータによる回路解析によって求めた。決定したパラメータを表 1 にまとめる。これらのパラメータを使い、V-I 特性を算出し、実測値と比較した結果が図 3 である。図の実線で示す実測値は同一条件で作製した試料 5 個の V-I 特性を平均したものであり、エラーバーは最大値と最小値の幅を示す。図より、V-I 特性の計算値が試料の実測値と一致することがわかる。また、このとき、 V_b の値は 13.4V であった。

表 1 回路パラメータの値

Table 1 Circuit parameters for the sample.

$R_2[\Omega]$	C [pF]	Input voltage dependant resistance $R_1[\Omega]$
0.1	7.6	Calculated by PSpice simulator as to satisfy with V-I relationship of the sample.

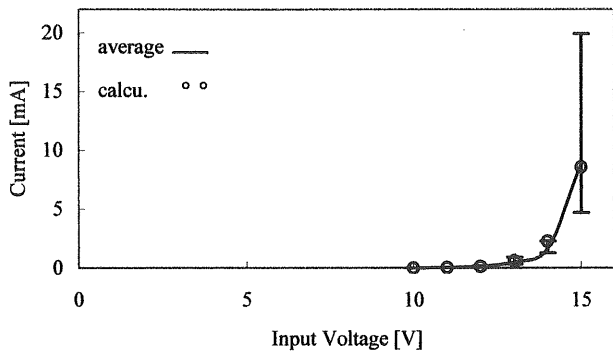


図3 V-I 特性の実測値と計算値の比較
Fig.3 Comparison between measurement and calculation value of V-I relationship.

試料の結晶粒子の粒径分布を測定するため、チップバリスタの表面を研磨し、電極間の ZnO 結晶の様子を SEM で観察した。異なる試料 7 個の SEM 画像より ZnO 結晶 300 個の粒径を測定し、その平均と粒径分布を求めた。ZnO 結晶の粒径の平均値は 11.3 μm であった。図 4 は ZnO 結晶粒径の分布を示す。結晶の粒径は 4.3~38.7 μm の幅広い分布を持ち、観察した 300 個の結晶粒径の標準偏差は 3.66 μm であった。なお、4 μm 以下の非常に小さい粒子は正確に計測することができなかった。

次に図 2 のように決定された等価回路モデルに図 4 に示したような結晶粒径のばらつきを組み入れる手法について示す。

粒径のばらつきに合わせて回路形状を変更するのは複雑で実用的ではないため、本研究では以下のようにばらつきを考慮した等価回路モデルを考えた。粒径が変化すると図 5 に示したように電極間の結晶粒子数が変化することになる。例えば粒径が小さくなった場合は電極間の結晶粒子数が増加するため、電極間の電圧依存型抵抗が増加することになり、粒径が大きくなった場合は結晶粒子数が減少するために電圧依存型

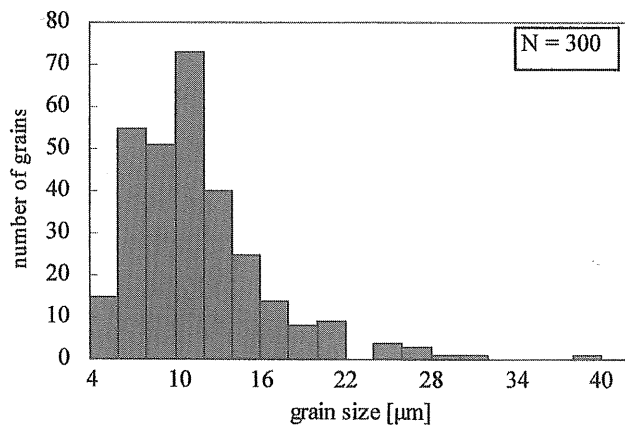


図4 試料の ZnO 結晶の粒径分布
Fig.4 Grain size distribution of sample.

抵抗の数が減少することになる。電極間に同じ電圧を印加した場合、直列接続された電圧依存型抵抗の個数が増加すると、一つの電圧依存型抵抗に印加される電圧は低下する。これを電圧依存型抵抗の個数を変えずに、つまり等価回路の形状を変えずに表現するには、図 6 のように、電流が急増する V_b を上げればよく、逆に粒径が大きくなった場合は V_b を下げればよい。

本研究で使用したバリスタの結晶の平均的なサイズは 11.3 μm であった。このサイズを中心に大小 5 種類ずつ、合計 11 種類のサイズの ZnO 結晶を考慮することとし、その際の結晶に使用する電圧依存型抵抗の特性を図 7 のように仮定した。図中の 100% は結晶の平均的なサイズである 11.3 μm のとき

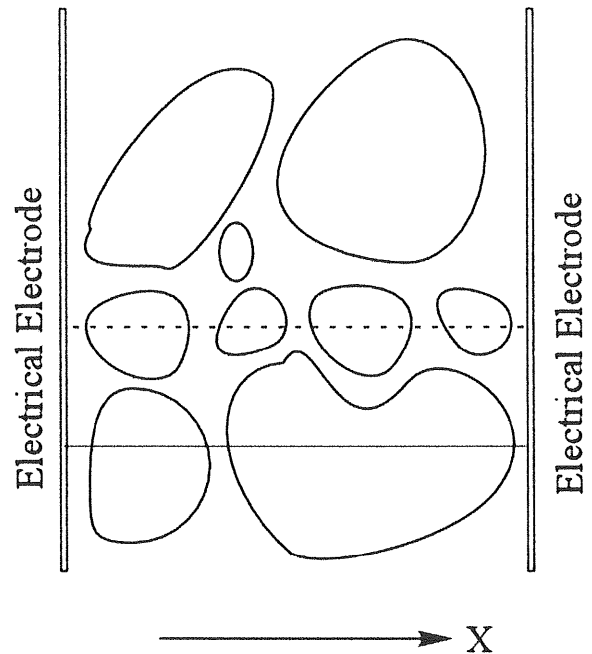


図5 結晶粒径の変化に伴う粒界数の変化
Fig.5 Change of numbers of grain boundary with grain size.

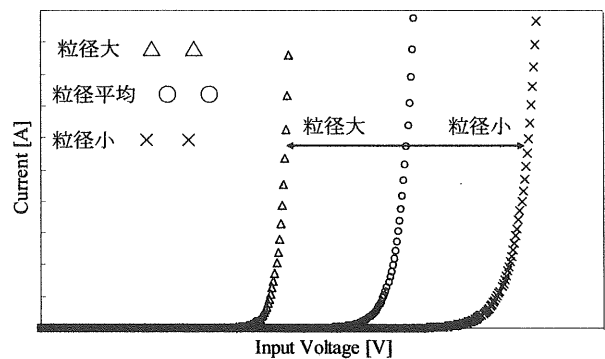


図6 結晶粒径の変化に伴う V-I 特性の変化
Fig.6 Change of V-I characteristics with grain size.

の粒界を代用する電圧依存型抵抗による V-I 特性を示し、64~90%及び 113~219%の数値はそれぞれ平均的な結晶粒径との粒径の比率を表わしており、これらの V-I 特性は以下のように決定される。例えば、粒径が 100%から 90%になると、電極間と同じ電圧(V_i)を加えた場合に結晶粒界 1 個に加わる電圧は 10%低下、つまり $0.9V_i$ となる。従ってこの時に 90%モデルに流れる電流は、基準となった 100%モデルにおいて、 $0.9V_i$ を印加した際の電流に等しい。このようにして基準となった 100%モデルを基に 90%モデルの V-I 特性は決定された。同様にして図 7 に示す他のモデルの V-I 特性も決定された。なお、結晶分布のばらつきは統計的には正規分布に従うと考えられるので、正規乱数を用いて図 2 の電圧依存型抵抗(R_1)の位置に図 7 に示した特性の異なる電圧依存型抵抗(R_1)を自動的に配置した。また、結晶配置のばらつきは統計的に決まるため、同じ正規乱数を用いて計 20 例の等価回路を作製した。本研究では、結晶粒径のばらつきを考慮するため、粒界の電圧依存型抵抗(R_1)のみを変化させた。本来、粒径の変化に伴い粒界のキャパシタンス(C)および粒内の低抵抗(R_2)も変化すると思われる。しかし、本研究においては直流電圧を印加した場合の V-I 特性の変化に注目したので C の変化は無視した。また、 R_2 は R_1 に比べて V-I 特性への影響が小さいため、今回計算した電流領域では、 R_2 の変化を無視し、一定とした。よって、本実験では、結晶粒径分布の変化による V-I 特性への影響は R_1 のみを変化させ、回路解析をおこなうことによって調べた。

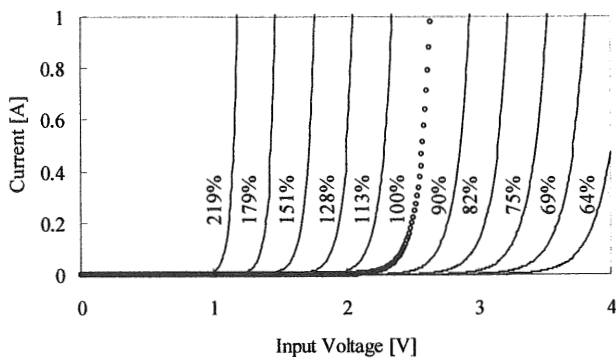


図 7 粒径が変化した場合の 1 つの粒界の V-I 特性の変化
Fig.7 Change of V-I characteristics of one grain boundary with grain size.

3. 結晶粒径のばらつきを考慮した場合の

電圧—電流特性の変化

前述の方法で結晶粒径の平均および標準偏差を実際のバリ

スタと同じくそれぞれ $11.3\mu\text{m}$ 、 $3.66\mu\text{m}$ とした等価回路モデルを 20 例作製し、それぞれにおいて V-I 特性を算出した。これを図 8 に示す。図より、結晶粒径にはばらつきがあるため V-I 特性にもばらつきがあることがわかる。バリスタ電圧 (V_b) でみると、標準偏差で 0.35V 程度のばらつきが見られた。この値は実際のサンプルで測定された値 (0.31V) とほぼ一致している。よって、本研究で提案した粒径のばらつきを考慮に入れた等価回路解析手法は妥当であったと考えられる。

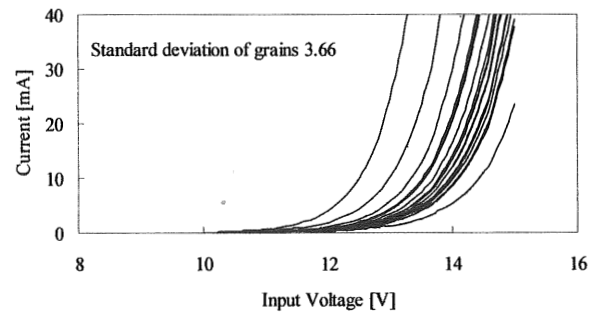


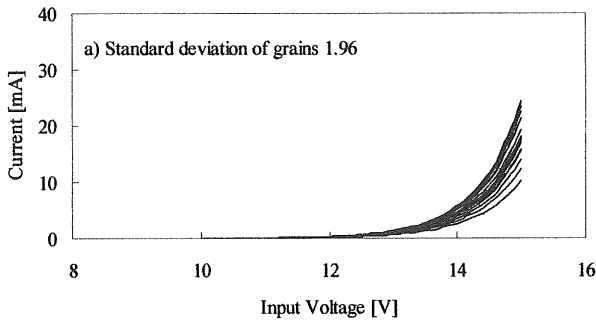
図 8 粒径の平均が $11.3\mu\text{m}$ 標準偏差が $3.66\mu\text{m}$ の場合の V-I 特性

Fig.8 Calculated V-I characteristics on basis of measured value of dispersions of grains.

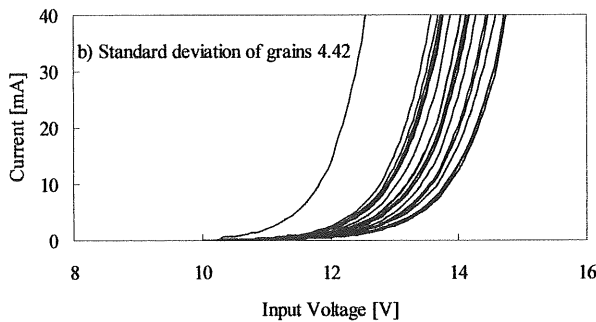
一般に、より高品質で特性の安定したバリスタを製造するには粒径をできるだけ均一にすることが望ましいと思われる。そこで、次に結晶粒径のばらつきを抑えた場合、どの程度 V-I 特性のばらつきが抑えられるのか、結晶粒径のばらつきが増大すると V-I 特性のばらつきがどの程度増大するのかを検討した。図 9(a) に結晶粒径の平均は $11.3\mu\text{m}$ と実測結果と同一にし、標準偏差を 1.96 と小さくした場合の V-I 特性を示す。また、結晶粒径の平均を $11.3\mu\text{m}$ 、標準偏差を 4.42 とばらつきを大きくした場合の V-I 特性を図 9(b) に示す。なお、等価回路モデルの作製方法は先の場合と同様である。

図 9(a) の計算結果より、粒径のばらつきが小さいと 20 例のモデルバリスタの V-I 特性のばらつきも小さくなるのがわかる。この場合、バリスタ電圧 (V_b) のばらつきは小さく、標準偏差は 0.13V にまで抑えられる。一方、結晶粒径のばらつきが大きい図 9(b) の V-I 特性にも大きなばらつきが見られ、その計算結果は図 9(a) の結果とは対照的である。特に電流が急増する電圧には大きなばらつきが見られ、これら 20 例において各々のバリスタ電圧 (V_b) を計算すると最大値 12.37V ~ 最小値 10.61V まで変動した。このとき、バリスタ電圧 (V_b) の標準偏差を計算すると 0.40V となった。

これらのシミュレーション結果から算出したバリスタ電圧 (V_b) 及び非直線係数 α の値を表 2 にまとめる。



(a) 標準偏差が 1.96 の時の V-I 特性の計算値



(b) 標準偏差が 4.42 の時の V-I 特性の計算値

図9 結晶粒径のばらつきを考慮した V-I 特性の計算結果
Fig.9 Calculated V-I characteristics on basis of dispersions of grains.

また、シミュレーション結果から結晶粒径のばらつきとバリスタの重要なパラメータであるバリスタ電圧(V_b)及び非直線係数 α の関係を求めた。図 10 はこれらの関係を示す。この図から、結晶粒径の標準偏差(結晶粒径のばらつき)が大きくなると V_b 及び α の標準偏差(ばらつき)が大きくなるのがわかる。また、これらは結晶粒径のばらつきの増加につれ直線的に増加していることがわかる。結晶粒径のばらつきがさらに大きくなると、 V_b や α にも大きなばらつきが予測され、特性の安定したバリスタの作製においては、結晶粒径をできるだけ均一にすることが大切である。

表2 算出された V_b と α の値

Table2 Calculated value of V_b and α .

Standard deviation of grains [μm]	V_b [V]	α
1.96	12.79~13.30	18.08~18.54
3.66	11.22~12.84	18.46~20.20
4.42	10.61~12.37	18.40~20.29

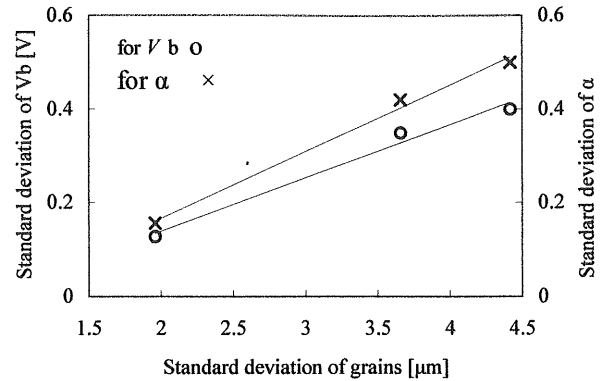


図10 結晶粒径の標準偏差と V_b 及び α の標準偏差の関係

Fig.10 Calculated relations of standard deviation of V_b and α with dispersion of grains.

4. まとめ

本研究では、バリスタの結晶粒径のばらつきを考慮した等価回路モデルを考案するとともに、これがバリスタの電圧—電流(V-I)特性におよぼす影響について検討した。以下に本論文で得られた結論をまとめる。

- (1) 粒径の変化に伴う電気特性の変化を、等価回路の形状を変更せずにシミュレーション解析できる等価回路モデルの作製方法を提案し、回路解析を行った結果、計算結果と実測値の間に矛盾はなく、本手法の妥当性が示された。
- (2) シミュレーションにより、結晶粒径のばらつきがバリスタの電気特性に及ぼす関係が解明され、バリスタの製造に不可欠な条件である結晶粒径に関する製造仕様的一端が示唆された。

参考文献

- 1) M.Kabir, M.Suzuki and N.Yoshimura: J. Electrostatics Jpn., **28** (2004) 304
- 2) P.R. Emtage: J. Appl. Phys., **50** (1979) 6833
- 3) C.Z. Chun and S.R. Sheng: J. Europ. Ceram. Soc., **6** (1990) 85
- 4) M.Bartkowiak and G. D. Mahan: Phys. Review B, **51** (1995) 10825
- 5) M.Bartkowiak, G.D. Mahan, F.A. Modine and M.A. Alim: J. Appl. Phys., **79** (1996) 273
- 6) M.Bartkowiak, G.D. Mahan, F.A. Modine, M.A. Alim, R. Lauf and A.McMillan: J. Appl. Phys., **80** (1997) 6516
- 7) S.Boggs and H.Andoh: IEEE. Trans. Power Delivery, **16** (2001) 604
- 8) L.M. Levinson and H.R. Phillip: J. Appl. Phys., **47** (1976) 1117
- 9) P.R. Emtage: J. Appl. Phys., **48** (1977) 4372
- 10) L.M. Levinson and H.R. Phillip: IEEE. Trans. Parts, Hybrids and Packaging, **13** (1977) 338
- 11) P. L. Hower and T.K. Gupta: J. Appl. Phys., **50** (1979) 4847