

超高電界印加下での積層セラミックコンデンサ内部の  
BaTiO<sub>3</sub> 結晶構造解析  
Structural Study of BaTiO<sub>3</sub> in the Multilayer Ceramic Capacitors under the  
Influence of an Applied Superhigh Electric Field

井上 徳之<sup>a</sup>, 岡本 貴史<sup>a</sup>, 大久保 寿紀<sup>b</sup>, 森吉 千佳子<sup>b</sup>, 吉田 芙美子<sup>b</sup>, 黒岩 芳弘<sup>b</sup>  
Noriyuki Inoue<sup>a</sup>, Takafumi Okamoto<sup>a</sup>, Hisanori Ohkubo<sup>b</sup>, Chikako Moriyoshi<sup>b</sup>,  
Fumiko Yoshida<sup>b</sup>, Yoshihiro Kuroiwa<sup>b</sup>

<sup>a</sup>株式会社 村田製作所, <sup>b</sup>広島大学

<sup>a</sup> Murata Manufacturing. Co., Ltd., <sup>b</sup> Department of Physical Science, Hiroshima University.

高エネルギー放射光粉末回折( $E = 35 \text{ keV}$ )により、高電界を印加した積層セラミックコンデンサ内部の透過測定を行い、積層セラミックコンデンサ内部の誘電体(Ba<sub>0.94</sub>Gd<sub>0.06</sub>(Ti<sub>0.97</sub>Mg<sub>0.03</sub>)O<sub>3</sub> (BGTM)の格子歪みを非破壊で直接観察した。積層コンデンサ内部まで透過した回折パターンが得られ、電界印加により電界方向に格子が伸び、電界に直交する方向に格子が縮む様子を観測できた。

キーワード： X線回折、電歪、積層セラミックコンデンサ

#### 背景と研究目的：

移動体通信機器、デジタル AV 機器など最先端の電子機器に欠かせない積層セラミックコンデンサは全世界での需要も増加の一途を辿っており、近年、更なる電子機器の小型化に対応するために、さらなる薄層小型化と大容量化が求められている。このコンデンサに使用されている BaTiO<sub>3</sub> は、典型的な強誘電体セラミックスである。我々は、数 10 年にわたり誘電体層を薄膜化する技術の開発を進めており、現在ではサブミクロンの層厚の製品を製造する技術を確立している。

このような薄層化のためのナノテク技術革新が進む一方、主に BaTiO<sub>3</sub> からなる誘電体層の厚みが薄くなることで誘電体層に印加される電界強度は年々増加しており、現在では 10 kV/mm を超える非常に高い電界が誘電体に印加された状態でコンデンサが使用されている。本来、高電界下での物性を理解する上では高電界下での精密構造解析を行うべきであるが、10 kV/mm を超えるような非常に高い電界強度下での測定は高電界印加時に電流のリークが生じるため単結晶などで測定を行うことは非常に難しく、これまでに行われた例がほとんどない。従来、唯一評価可能な手段としては、素子厚の薄い積層コンデンサの断面を研磨して露出させ、X 線回折などの構造解析を行う手法があるが、破壊解析であるため応力等も含めた内部状態を反映できず、また 1 kV/mm 程度の電界で電流のリークが発生するため、現状、電子機器で使用されている 10 kV/mm を超えるような電界強度下での構造解析を行えないという大きな問題があった。本研究課題では、高エネルギー(35keV)で高い透過能を有する X 線を使用することが可能な BL02B2 にて、誘電体層が BaTiO<sub>3</sub> からなる積層セラミックコンデンサに高電界を印加して非破壊で直接測定し、実際にコンデンサが使用されている状態下での構造の直接観察を検討した。

#### 実験：

図 1 に示す構造の積層セラミックコンデンサ(誘電体：BGTM, 内部電極：Ni)を作製し、Spring-8 BL02B2 の大型デバイセラーカメラを用いて、高エネルギー放射光粉末回折実験を行った。測定に使用した波長は  $\lambda = 0.357 \text{ \AA}$  ( $E = 35 \text{ keV}$ )である。BGTM の  $T_C$  は 293K であり[1]、立方晶での測定を行うために、測定温度は窒素ガス吹き付け装置で制御し、BGTM が立方晶となる 300K と

した。電界は直流安定化電源にて印加し、誘電体素子に  $0 - 30\text{kV/mm}$  の直流電界を印加した。電界に平行な方向およびその直交方向の格子面間隔を調べるために、それぞれ X 線の入射方向、電界印加方向、コンデンサ位置を図 2 の(a),(b)の通り設定し、立方晶の BGTM の(400)面の回折条件を満足する入射角となるようにコンデンサを傾けた条件( $\theta \approx 10.3^\circ$ )にて測定を行った。

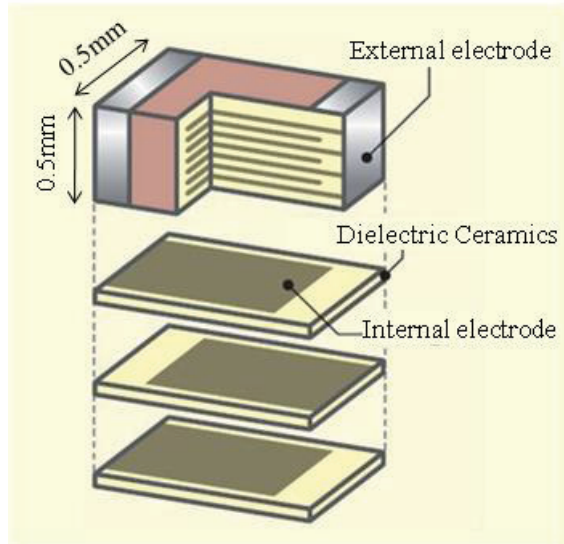


図 1. 積層セラミックコンデンサの構造

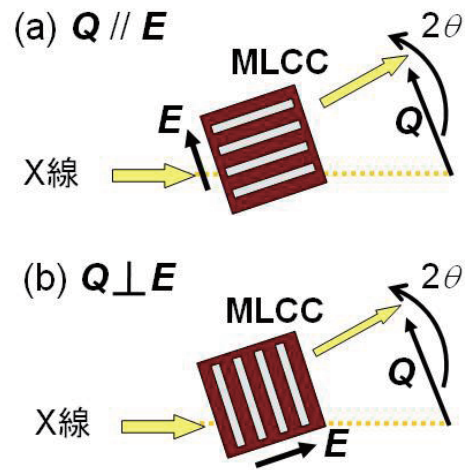


図 2. 電界  $E$ 、散乱ベクトル  $Q$  と X 線入射方向の関係 (a)  $Q // E$ , (b)  $Q \perp E$

#### 結果および考察：

図 2(a)の散乱ベクトルと電界が平行な条件、図 2(b)のように散乱ベクトルと電界が直交する条件いずれについても積層セラミックコンデンサを透過した測定にて(400)面の明瞭な回折パターンが観測され、非破壊で積層セラミックコンデンサ(厚さ： $0.5\text{mm}$ ，誘電体：BGTM，内部電極：Ni)内部の誘電体の結晶構造を測定できることが初めて確認された。

(400)面の回折ピークは散乱ベクトルと電界が平行な条件では電界が高くなるほど低角に、反対に直交する条件では電界が高くなるほど徐々に高角にシフトし、電界印加方向に対して BGTM 結晶の格子が伸び、電界に直交する方向に対して格子が縮むことが確認された。BGTM は  $300\text{K}$  の測定条件下で立方晶であるが、電界により格子が歪んで対称性が低下し正方晶への格子変形が起こっているといえる。(400)面の回折ピーク位置から格子定数を算出し、電界印加方向の格子定数を  $c$ 、電界に直交する方向の格子定数を  $a$  とすると、格子定数  $c$  と  $a$  は電界に対して非線形に変化し、電界強度が  $10\text{ kV/mm}$  を超える領域で飽和する傾向があることが確認された。

#### 今後の課題：

格子定数の測定からさらに詳細な構造解析に踏み込んで、高電界下での精密な原子位置の解析を検討する。

#### 参考文献：

[1] N. Inoue, T. Okamatsu, A. Ando, H. Takagi, T. Hashimoto, C. Moriyoshi, and Y. Kuroiwa, Jpn. J. Appl. Phys. (2009), in press.