

# 熱誘電直接発電に関する研究 (そのIV)

熱誘電素子の大幅電圧および温度に対する特性表示式について

藤本三治\* 松本忠\*\*

## Studies on the Thermodielectric Generator Part IV Expressions for Small and Large Signal Capacitances of the Thermodielectric Element as a Function of the Applied Voltage and the Temperature.

Sanji FUJIMOTO, Tadashi MATSUMOTO

(Received September 30, 1965)

It is well known that the capacitance of ferroelectric capacitor depends largely upon the impressed voltage and the temperature. The expression to the voltage dependence of the small signal capacitance (i. e. the differential capacitance) has been originally given by L. A. Pipes, assuming that the relation between the electric charge  $Q$  and the impressed voltage  $V$  is  $V \propto \sinh aQ$ . For the dependence of the temperature above the Curie temperature, Curie-Weiss' law is well satisfied.

However, in some applications of ferroelectric materials such as the high power ferroelectric limiter and the high voltage generation with the thermodielectric generator, it is needed to know the large signal capacitance as a function of both the impressed voltage and the temperature, where the large signal capacitance is defined as  $C_l = Q/V$  provided that the working point is chosen at the origin on the  $Q-V$  curve.

In this paper, assuming the relation between  $Q$  and  $V$  as  $V = \alpha Q + \beta Q^3$ , the expressions of small and large signal capacitances of ferroelectric capacitor used as the thermodielectric element are given first as a function of two variables—the impressed voltage and the temperature—and their relative relation is shown quantitatively. In general, small signal capacitance can be measured easily, while the measurement of large signal capacitance is rather difficult, in particular, at the alternating impressed voltage. Using our expressions mentioned above, however, we can readily obtain the latter from the data of the measurement of the former. Moreover, the influence of temperature rise due to dielectric loss is considered approximately.

Finally, it is verified with some experiments that the expressions shown herewith are satisfactory and useful not only in the analysis of thermodielectric generator but also in the other applications in which both the impressed voltage and the temperature of ferroelectric ceramic capacitor are changed forcedly and widely,

### 1 緒 言

$BaTiO_3$ 系磁器蓄電器の静電容量は一般に印加電圧にたいして可成りの非直線性を示し、この性質を積極的に応用したものと、同調器、振幅変調器、周波数変調器、増幅器、parametric増

\* 大阪大学工教教授 \*\* 福井大学工学部講師

幅器および parametric 発振器などが良く知られているものである。しかしながら、これらすべての応用は強誘電体素子に小信号電圧を動作させたときの非直線性を利用したものと考えられ、その測定法などについては S. Roberts 氏<sup>(1)</sup>によって詳しく調べられている。

近時、BaTiO<sub>3</sub>系磁器の応用がさらに開発、研究されているが、その際応用の目的によっては上述のような小信号電圧動作時の非直線性を考えていたのではうまく説明できない場合が多いことが報ぜられている。たとえば、M. Cohn および A. F. Eikenberg 両氏<sup>(2)</sup>による大電力用強誘電体振幅制限器などは本質的に強誘電体の大信号電圧動作時の非直線性を利用したものである。また、強誘電体の熱誘電現象を利用して高電圧を発生させる場合にもこの大信号動作時の非直線性を考慮に入れる必要がある。<sup>(3)</sup>しかし、現在までのところこれら大信号電圧動作時の非直線性に関する data は余りないのみならず大信号静電容量の数学的表示式も明らかにされていないようである。

そこで、本文においては Curie 温度以上での動作について温度の因子も考慮に入れながら熱誘電素子としての BaTiO<sub>3</sub>系強誘電性磁器蓄電器にその電荷-電圧特性曲線の原点を中心に大信号電圧を動作させたときの非直線性を検討してゆくことにする。このように大信号電圧を動作させたときの非直線性の中へ温度の因子を考慮する理由は、強誘電体を熱誘電素子として応用する際は特に重要であるためのほかに、一般に周囲温度を一定に保ち印加電圧だけを変える場合でも印加電圧が大きく、かつ、それが高周波電圧であれば素子の温度上昇をきたすため、厳密には必ず温度の因子も考慮しなければならないからである。

## 2 熱誘電素子静電容量の小信号電圧に対する非直線性

まず、対比の便宜上熱誘電素子としての BaTiO<sub>3</sub>系磁器蓄電器に小信号電圧を動作させたときの非直線性について考えることにする。S. Roberts 氏<sup>(1)</sup>は電界  $E$  と電束密度  $D$  の関係を考えてのであるがここでは測定などの便宜を考え、これに等価な電圧  $V$  と電荷  $Q$  の間の関係を基礎仮定式として採用する（これら相互の関係は付録参照）。

いま、この基礎仮定式を

$$V = \alpha Q + \beta Q^3 \quad \dots\dots\dots(1)$$

とする。ここで  $\alpha$  および  $\beta$  は温度だけの関数であって、電圧にたいしては定数である。

さらに、小信号静電容量  $C_s$  を次式で定義する。

$$C_s = \frac{\partial Q}{\partial V} \quad \dots\dots\dots(2)$$

また、d. c. zero bias の状態では(1)式の右辺第2項は無視され  $V = \alpha Q$  となる。したがって、初期静電容量  $C_i$  (すなわち、 $\alpha$ ) として

$$C_i = \left. \frac{\partial Q}{\partial V} \right|_{Q=0} = \frac{1}{\alpha} \quad \dots\dots\dots(3)$$

を得る。次に(1)式を  $Q$  について微分し、その結果を  $C_i$ ,  $\alpha$  および  $\beta$  を用いて  $Q$  について整理すれば

$$Q = \left\{ \frac{\alpha}{3\beta} \left( \frac{C_i}{C_s} - 1 \right) \right\}^{1/2} \quad \dots\dots\dots(4)$$

(4)式を再び(1)式に代入すれば

$$\frac{V}{V_{s, \frac{1}{2}}} = \frac{1}{4} \left( \frac{C_i}{C_s} + 2 \right) \sqrt{\frac{C_i}{C_s} - 1} \quad \dots\dots\dots(5)$$

ここで

$$V_{s, \frac{1}{2}} = 4 \left( \frac{1}{3} \right)^{3/2} \alpha^{3/2} \beta^{-1/2} \quad \dots\dots\dots(6)$$

であって、小信号静電容量  $C_s$  が初期静電容量  $C_i$  の  $1/2$  になる電圧である。さらに(6)式より  $\beta$  を求め

れば

$$\beta = \frac{16}{27} \frac{\alpha^2}{V^2 \varepsilon_s^2} = \frac{16}{27} \frac{1}{C_i^3 V^2 \varepsilon_s^2} \quad \dots\dots\dots(7)$$

となる。したがって、 $C_i$  および  $V \varepsilon_s^2$  が実験的に与えられれば  $\alpha$  および  $\beta$  はそれぞれ (3) および (7) 式によって容易に求められる。

以上は S. Roberts 氏<sup>(1)</sup> によって与えられた諸関係式に対応するものであるが、さらに (5) 式より  $C_s$  を印加電圧  $V$  の関数として考えてみる。いま、

$$y_s = \frac{C_s}{C_i} = \frac{\varepsilon_i}{\varepsilon_s} \quad \dots\dots\dots(8)$$

とおけば、(5) 式は

$$y_s^3 + 3 y_s^2 - (4 + 27v^2) = 0 \quad \dots\dots\dots(9)$$

となり、ここで  $\varepsilon_i$  および  $\varepsilon_s$  は初期比誘電率および小信号比誘電率であり

$$\left. \begin{aligned} v &= \frac{V}{K} & (a) \\ K &= \alpha^{3/2} \beta^{-1/2} & (b) \end{aligned} \right\} \quad \dots\dots\dots(10)$$

である。そこで、(9) 式において

$$y_s = Z_s - 1 \quad \dots\dots\dots(11)$$

なる変数変換を行なえば (9) 式は

$$Z_s^3 - 3 Z_s - (2 + 27v^2) = 0 \quad \dots\dots\dots(12)$$

となる。

(12) 式において  $v=0$  のとき明らかに  $Z_{s0}=2$  が零でない実根であることがわかる。また、 $v \geq 0$  なることを考慮すれば (12) 式の判別式は  $v > 0$  にたいして常に負であることがわかる。したがって、このとき (12) 式は 1 つの実根と互い共役関係にある 2 つの虚根をもつ。しかしながら、われわれの望むものはこれらのうち実根であって、このとき

$$\cosh \phi = 1 + \frac{27}{2} v^2 \quad \dots\dots\dots(13)$$

を満足する  $\phi$  を得る。したがって、求める実根は  $\phi$  を用いて

$$Z_{s0} = 2 \cosh \frac{\phi}{3} \quad \dots\dots\dots(14)$$

となる<sup>(4)</sup>。

(14) 式を (11) 式に代入すれば、結局

$$\frac{C_s}{C_i} = \frac{\varepsilon_s}{\varepsilon_i} = \frac{1}{2 \cosh \frac{\phi}{3} - 1} \quad \dots\dots\dots(15)$$

のごとく電圧  $V$  の関数としての小信号静電容量  $C_s$  の表示式が得られる。

一方、(1) 式の基礎仮定式のかわりに

$$V = \frac{1}{C_i a} \sinh a Q \quad \dots\dots\dots(16)$$

なる仮定式を採用すれば<sup>(5)</sup>、(15) 式に対応するものとして

$$\frac{C_s}{C_i} = \frac{\varepsilon_s}{\varepsilon_i} = \frac{1}{\sqrt{1 + (aC_i)^2 V^2}} \quad \dots\dots\dots(17)$$

を得る。ここで、(1) 式と (16) 式が展開近似の意味で等しいと考え、両者の係数の関係を求め (付録参照)、(17) 式を  $v$  を用いて書きかえれば

$$\frac{C_s}{C_i} = \frac{\varepsilon_s}{\varepsilon_i} = \frac{1}{\sqrt{1 + 6v^2}} \quad \dots\dots\dots(18)$$

となる。

(15)および(18)式を $v$ を横軸,  $C_s/C_i$ を縦軸にとって図示, 比較すればFig. 1のとおりである。その結果, (1)式は(16)式を展開し, その第2項目までとった近似式とも考えうるから,  $v$ が大になるほど両者は離れてゆくが,  $v$ の小さい範囲内では, 非常によく一致している。

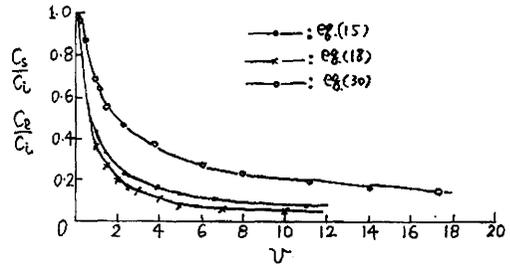


Fig. 1  $C_s/C_i$  and  $C_l/C_i$  as a function of  $v$

### 3 熱誘電素子静電容量の大信号電圧に対する非直線性

この場合も基礎仮定式は(1)式を採用するのであるが静電容量の定義式は(2)式のかわりに $Q-V$ 曲線の原点を中心とした動作を考えたときの大信号静電容量  $C_i$  として

$$C_i = \frac{Q}{V} \tag{19}$$

を用いるのが妥当である<sup>(6)</sup>。

印加電圧が小さい範囲では(1)式の第2項は略されるから初期静電容量  $C_i$  は

$$C_i = \left. \frac{Q}{V} \right|_{q=0} = \frac{1}{\alpha} \tag{20}$$

となつて,  $\alpha$ は小信号, 大信号両方の場合とも等しい。さらに, (1)式の両辺を $Q$ で割り  $C_i$ ,  $\alpha$ および $\beta$ の関数として $Q$ を求めれば(4)式に対応して

$$Q = \left\{ \frac{\alpha}{\beta} \left( \frac{C_i}{C_i} - 1 \right) \right\}^{1/2} \tag{21}$$

を得る。そこで, (21)式を第2章同様(1)式へ代入し, 整理すれば

$$\frac{V}{V_{l\frac{1}{2}}} = \frac{1}{2} \frac{C_i}{C_i} \left( \frac{C_i}{C_i} - 1 \right)^{1/2} \tag{22}$$

ここで

$$V_{l\frac{1}{2}} = 2\alpha^{3/2} \beta^{-1/2} \tag{23}$$

である。この  $V_{l\frac{1}{2}}$  は大信号静電容量  $C_i$  が初期静電容量  $C_i$  の  $1/2$  になるに要する印加電圧であつて, (6)式に対応するものである。

また, (23)式より  $\beta$  を求めると (小信号電圧に対する非直線性の場合の(7)式に対応する式),

$$\beta = \frac{4\alpha^3}{V^2 V_{l\frac{1}{2}}} = \frac{4}{C_i^3 V^2 V_{l\frac{1}{2}}} \tag{24}$$

となる。

さらに, (22)式より  $C_i/C_i$  を  $V$  の関数として求めよう。いま,

$$y_i = \frac{C_i}{C_i} = \frac{\epsilon_i}{\epsilon_i} \tag{25}$$

とおけば(22)式は

$$y_i^3 - y_i^2 - v^2 = 0 \tag{26}$$

となる。ここで  $\epsilon_i$  は大信号比誘電率である。さらに

$$y_i = Z_i + \frac{1}{3} \tag{27}$$

なる変数変換を行なえば(26)式は

$$Z_i^3 - \frac{1}{3}Z_i - \left(v^2 + \frac{2}{27}\right) = 0 \tag{28}$$

となる。(28)式の判別式Dは

$$D = \frac{4}{27} - 27 \left(v^2 + \frac{2}{27}\right)^2$$

であるから、 $v=0$ のとき $D=0$ 、 $v>0$ のとき $D<0$ であるから第2章同様に考えて

$$\cosh \phi = 1 + \frac{27}{2}v^2 \tag{29}$$

なる $\phi$ が存在し( $\phi$ は小信号の場合に一致する)、実根 $Z_{i0}$ はこの $\phi$ を用いて

$$Z_{i0} = \frac{2}{3} \cosh \frac{\phi}{3} \tag{29}$$

と与えられる。(29)式を(27)式に代入し、 $\frac{C_i}{C_i} = \frac{\epsilon_i}{\epsilon_i}$ について整理すれば

$$\frac{C_i}{C_i} = \frac{\epsilon_i}{\epsilon_i} = \frac{3}{2 \cosh \frac{\phi}{3} + 1} \tag{30}$$

を得る。(30)式を $v$ を変数として図示すれば Fig. 1 の印のごとくである。

基礎仮定式(16)式を考える場合、このままの形では(19)式の大信号静電容量の定義式にしたがって議論をすすめることはできないため、(17)式に対応するものは得られない。したがって、第2章でものべたごとく、(1)式と(16)式が展開近似の意味で等価と考えるならば、大信号電圧動作時の非直線性の場合(16)式で与えられる基礎仮定式にたいする表示式は近似的に(30)式であるとみなしうる。そのさい両者の差異は Fig. 1 の(15)および(18)式の程度であることがいえる。

それゆえ、大信号電圧動作時の非直線性の場合、(1)および(16)両式の基礎仮定式に優劣の差がないときは無条件に(1)式によった方が都合がよいことがわかる。

#### 4 熱誘電素子の小信号および大信号静電容量の比較

上述した小信号静電容量(または、小信号誘電率)の場合と大信号静電容量(または、大信号誘電率)の場合とを比較、検討することしよう。

ここで、小信号静電容量 $C_s$ というのは(2)式で定義されるものであるから、直流 bias 電圧の大きさにより動作点に変化し、それぞれの動作点における $Q-V$ 曲線の傾斜として与えられるのに反し、大信号静電容量 $C_l$ は(19)式で定義されるもので、つねに $Q-V$ 曲線の原点を中心に大振幅電圧を動作させたときの静電容量を考えていることになり、任意直流 bias 電圧のもとで交番電圧を大振幅動作させるとき定まる大信号静電容量(ただし、この場合前述の小信号静電容量の表示式で $V$ を改めて交番電圧も含めたものと考えれば、近似的に用いることができる)とは意味を異にしている。したがって、この定義によれば強誘電体素子を大振幅直流電圧で動作させるときや、直流零 bias の状態で大振幅交番電圧を印加するときの静電容量は大信号静電容量となる。そ

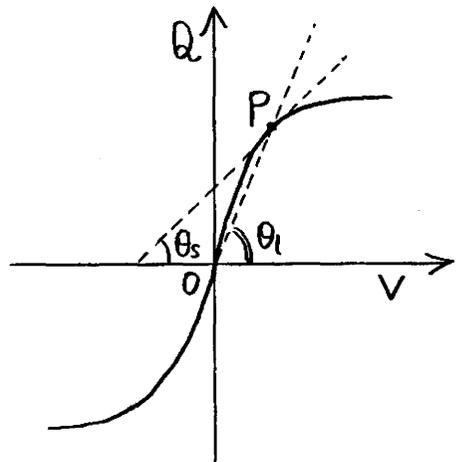


Fig. 2 Explanation of small and large signal capacitances.

れゆえ、Fig. 2 の曲線上の 1 点 P で考えれば小信号静電容量  $C_s$  および大信号静電容量  $C_i$  は、それぞれ

$$C_s = \tan \theta_s,$$

$$C_i = \tan \theta_i$$

のように表現されることになる。

以上のように、小信号または大信号というのは Fig. 2 のような Q-V 曲線のどの部分に動作点が決められ、かつ着目するかによって決まってくるのであるが、それらの比較の基準として  $\alpha$  と  $\beta$  を用いればよい。何となれば、Q-V 曲線は  $\alpha$  と  $\beta$  の値で決まり、それを(1)式で表現するとき強誘電体素子の温度が一定である限り、 $\alpha$  および  $\beta$  は大信号で決めても小信号で決めても同一値となるべきからである。

第 2 および 3 章でのべたごとく、小信号静電容量  $C_s$  の測定結果を用いて  $\alpha$  および  $\beta$  を決定する式はそれぞれ(3)および(7)式、大信号の場合は(20)および(24)式であって、初期静電容量  $C_i$  および  $C_i$  がそれぞれ半分になるために必要な電圧  $V_{s\frac{1}{2}}$  および  $V_{i\frac{1}{2}}$  で決まる。一方、Fig. 1 の変数  $v = V/K$  の  $K$  は大信号、小信号に対してともに(10・b)式で与えられ次元は電圧である。

Fig. 1 より大信号静電容量  $C_i$  の電圧依存性は小信号静電容量  $C_s$  のそれより小さい。このことは Fig. 2 から明らかであるが、以上の解析の結果さらに定量的な裏付けを与えたことになる。また Fig. 2 より  $\alpha$  は大信号、小信号を問わずその値は等しいが、 $\beta$  は  $V_{i\frac{1}{2}}$  および  $V_{s\frac{1}{2}}$  に関する係数の値が異なることもうなづけよう。

以上のことがらより

(i) 大信号静電容量の電圧依存性は 測定  
の比較的容易な 小信号静電容量の測定結果より  
(3)および(7)式を用いて計算される  $\alpha$ ,  $\beta$  を  
(20)式に代入して求めることができる。

(ii)  $V_{s\frac{1}{2}}$  および  $V_{i\frac{1}{2}}$  は(6)式と(23)式より

$$\frac{V_{s\frac{1}{2}}}{V_{i\frac{1}{2}}} = \frac{3}{2} \sqrt{3} = 2.6 \dots\dots\dots (31)$$

の関係にある。また、 $\frac{C_i}{C_s}$  および  $\frac{C_s}{C_i}$  が他の  
割合になるに要する電圧値  $V_i\%$  と  $V_s\%$  の関係  
は Q-V 曲線の非直線性のため変化する。いま(31)式と同様にこれらを求めれば Fig. 3 のようである。

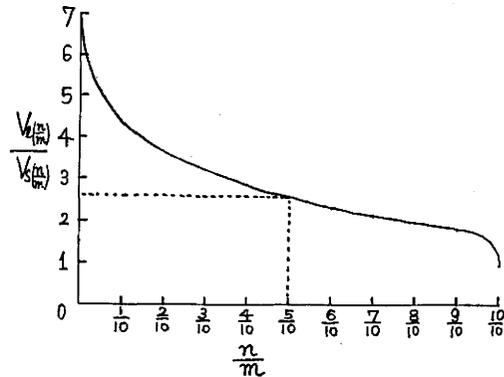


Fig. 3 Relation between  $V_i\%$  and  $V_s\%$  at the various values of  $\frac{n}{m}$

### 5 熱誘電素子の温度および電圧依存性

以上では BaTiO<sub>3</sub> 系強誘電性磁器よりなる熱誘電素子の静電容量の電圧依存性について大信号および小信号電圧動作時の表示式を与え、それらの関係を明らかにしたが、静電容量の他の重要な parameter として温度がある。

一般に、小信号電圧動作に基づく応用では小信号静電容量  $C_s$  は電圧だけの関数と考えて(7)式を用いれば充分目的にかなう場合が多かったが、厳密には  $C_s$  を電圧および温度の関数として扱わねばならないことは言を待たないことである。しかし、小信号動作でも電圧と同様に温度も強制的に変化させる場合および大信号動作に基づく応用を考えると必ず温度および電圧を考慮しなければなら

らない。そこで、本章においては前述の一般式(15)および(16)両式に温度の効果を考慮に入れて検討をすすめることにする。

基礎仮定式(1)式で温度依存性を持つ parameter は  $\alpha$  および  $\beta$  であり、このうち  $\alpha$  は Curie 温度以上の動作温度では周知の Curie-Weiss の法則をよく満足して

$$\alpha = \frac{1}{C_s} = \frac{d(T-T_c)}{A\epsilon_0 c_0^*} \quad \dots\dots\dots(32)$$

で与えられる。ここで熱誘電素子は平行平板形蓄電器を考慮しており、

- $\epsilon_0$ [F/m] : 自由空間の誘電率
- $T$ [°K] : 素子の動作温度
- $T_c$ [°K] : 素子の Curie 温度
- $c_0^*$ [°K] : 素子の Curie 定数
- $A$ [m<sup>2</sup>] : 素子の面積
- $d$ [m] : 素子の厚さ

である。(32)式からわかるように Curie の定数  $c_0^*$  は  $\alpha$  と  $(T-T_c)$  が比例していることより、その勾配から容易に求められる。なお、この  $c_0^*$  は電圧にも温度にたいしても無関係な定数であることはいうまでもない。

一方、 $\beta$  は Curie 温度以上の温度ではほぼ一定と考えられるが<sup>(4)</sup>、材質によっては温度が上昇するにつれて多少減少するものもある。このような場合直線近似で十分な場合が多く、Fig. 4 のように基準温度  $T_r$  を定め、そのときの  $\beta$  を  $\beta(T_r)$  とすれば、任意の温度  $T$  のときの値  $\beta(T)$  は

$$\begin{aligned} \beta(T) &= \beta(T_r) + \frac{d\beta}{dT} \Delta T \\ &= \beta(T_r) - \Delta\beta \Delta T \quad \dots\dots\dots(33) \end{aligned}$$

とおける。ここで

$$\frac{d\beta}{dT} = -\Delta\beta, \quad \Delta\beta \geq 0 \quad (a)$$

$$\Delta T = T - T_r \quad (b) \quad \dots\dots\dots(34)$$

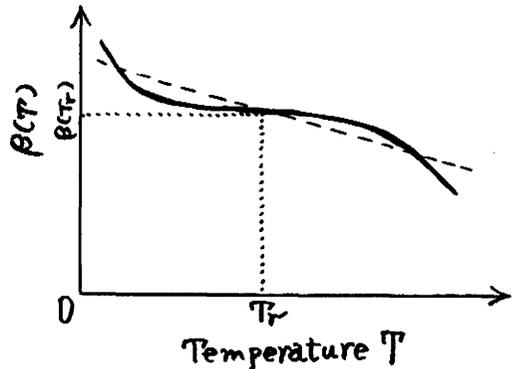


Fig. 4 Linear approximation of temperature dependence of  $\beta(T)$  :  $T_r$  is reference temperature.

であり、 $\beta$  の温度依存性がないときは  $\Delta\beta=0$  の場合である。 $T_r$  はその目的に応じて都合のよいように選定すればよい。

したがって、(15)式の  $\alpha$  および  $\beta$  に(32)および(33)式を代入すれば小信号静電容量  $C_s$  の Curie 温度以上の温度および電圧にたいする依存性を同時に明示する表示式が得られ、

$$C_s = \frac{\epsilon_0 c_0^* A}{d} \cdot \frac{1}{(T-T_c)(2 \cosh \frac{\phi}{3} - 1)} \quad \dots\dots\dots(35)$$

$$\phi = \cosh^{-1} \left\{ 1 + \frac{27}{2} \frac{V^2}{K^2} \right\} \quad \dots\dots\dots(36)$$

$$K = \left\{ \frac{\epsilon_0 c_0^* A}{d(T-T_c)} \right\}^{-3/2} \left\{ \beta(T_r) - \Delta\beta \Delta T \right\}^{-1/2} \quad \dots\dots\dots(37)$$

となる。

大信号静電容量  $C_i$  についても同様にして

$$C_i = \frac{\epsilon_0 c_0^* A}{d} \cdot \frac{3}{(T - T_c) \left( 2 \cosh \frac{\phi}{3} + 1 \right)} \quad \dots\dots\dots(38)$$

となり、 $\phi$  および  $K$  はそれぞれ(36)および(37)式と同じである。

また、小信号動作のとき(38)式に(32)および(33)式を代入すれば

$$C_s = \frac{\epsilon_0 c_0^* A}{d} \cdot \frac{1}{(T - T_c) \left\{ 1 + 6 \frac{V^2}{K^2} \right\}^{1/2}} \quad \dots\dots\dots(39)$$

なる媒介変数  $\phi$  を用いない温度および電圧の陽の関数表示式を得る。

したがって、温度および印加電圧を変化させて強誘電体を応用するときは小信号および大信号動作に応じて(35)および(38)式で種々特性を検討すればよい。

## 6 実験結果および検討

**6・1 実験方法および結果** この節においては  $A=17 \times 27(\text{mm}^2)$ ,  $d=0.4(\text{mm})$  の  $(\text{BaTiO}_3 + \text{CaSnO}_3)$  系平行平板形磁器蓄電器の小信号静電容量をまず測定して  $\alpha$ ,  $\beta$  および  $c_0^*$  を求め、これらの数値を前述の理論式に代入して得られる結果と実測値を比較・検討することにする。

前記素子の小信号静電容量を測定するに当っては小信号動作を満足せしめるよう測定電圧を 1kc, 0.5V に選んで万能 bridge で測定した。

このときの  $\alpha$  および  $\beta$  の温度特性は Fig. 5 のごとくであり、まず、 $\alpha$  の温度依存性より Curie 温度  $T_c$  および Curie 定数  $c_0^*$  は

$$\left. \begin{aligned} T_c &= 292(^{\circ}\text{K}) \\ c_0^* &= 1.82 \times 10^5 (^{\circ}\text{K}) \end{aligned} \right\} \quad \dots\dots\dots(40)$$

と求める。しかし本試料では  $60^{\circ}\text{C}$  以上の温度範囲では多少 Curie-Weiss の法則からのずれがみられる。また  $\beta$  は  $20 \sim 70^{\circ}\text{C}$  付近まではほぼ一定とみなし

$$\beta = 9.9 \times 10^{15} (\text{F}^{-3}\text{V}^{-2}) \quad \dots\dots\dots(41)$$

と定める。

一方、同じく 1 kc, 0.5V の測定電圧のもとで、万能 bridge を用いて得られた小信号静電容量  $C_s$  の温度および直流 bias 電圧特性は Fig. 6 および 7 の点線で示すとおりである。

これに対し、(40)および(41)式を(35)式に代入して得られる理論値は同図実線で与えられる。さらに、素子の電圧および温度依存性を明示するために Fig. 6 および 7 を描きかえれば、Fig. 8 のごとくであり、たとえば  $T=30^{\circ}\text{C}$ ,  $V=100\text{V}$  のときの  $C_s$  の値は約  $0.09\mu\text{F}$  であるが、温度および電圧ともに増して  $T=60^{\circ}\text{C}$ ,  $V=500\text{V}$  となると  $C_s$  の値は約  $0.03\mu\text{F}$  である。

大信号静電容量  $C_i$  についても同様に(40)および(41)式を(38)式に代入し、その温度および電圧に対する変化を図示すれば Fig. 9 および 10 の実線のごとくである。また、大信号動作を満足するよう実験を行なうため Fig. 11 のように Ballistic Galvanometer 法で行なった実測結果は同図点線のごとくである。さらに、Fig. 8 と同様の目的で Fig. 9, 10 を描きかえれば Fig. 12 を得る。

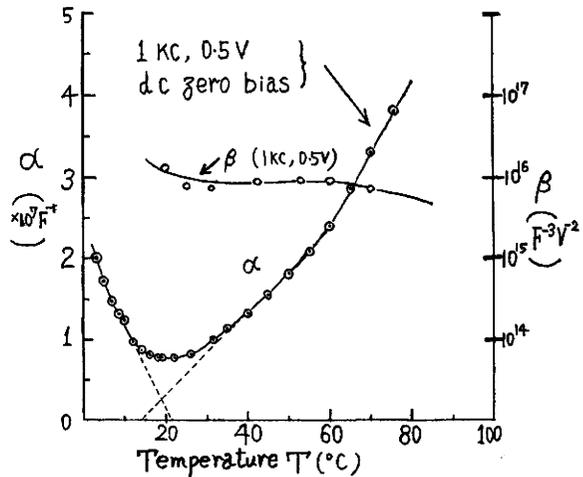


Fig. 5  $\alpha$  and  $\beta$  as a function of temperature  $T$ .

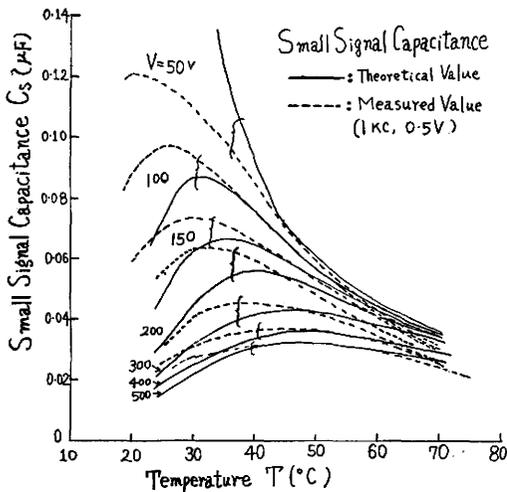


Fig. 6 Small signal capacitance  $C_s$  as a function of temperature  $T$  under the various d. c. bias voltage  $V$ .

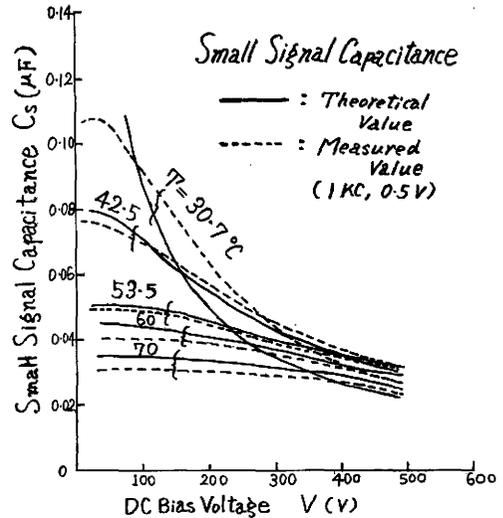


Fig. 7 Small signal capacitance  $C_s$  as a function of d. c. bias voltage  $V$  under the various temperature  $T$ .

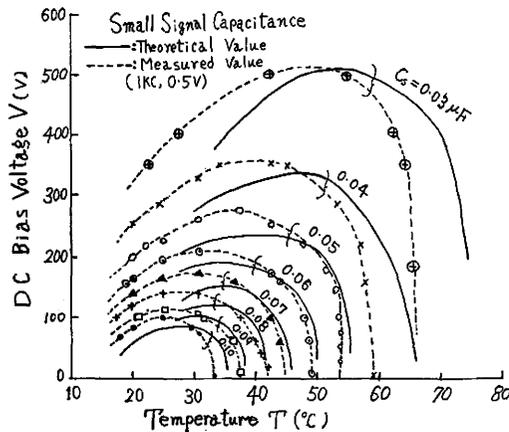


Fig. 8 Small signal capacitance as a function of d. c. bias voltage and temperature.

以上に得られた理論値と実測値を比較すれば、小信号静電容量および大信号静電容量ともその傾向はよく一致しているといえよう。ただ、小信号静電容量の Curie 温度に近づくにつれてかなりずれてくるのはまず、(2)式で仮定した Curie-Weiss の法則そのものが動作温度  $T$  が  $T_0$  に漸近するにつれて非常に大きな静電容量を与え、 $T = T_0$  では無限大になることが第 1 の原因であり (Fig. 6, 9 で印加電圧が小さくなるにつれて、この効果が大きく効いてくる)、その他、Fig. 5 の  $\alpha-T$  曲線より  $c_0^*$  を決めるさい、本素子については図示の接線の傾斜から簡単のため求めたが、その値は  $30 \sim 60^\circ\text{C}$  の温度範囲ではよく満足するものであるが、Curie 温度近傍ではもっと大きな値

になり、 $60^\circ\text{C}$  以上ではこれより小さな値となることによる。

また、高温領域におけるずれも上述の  $c_0^*$  による影響が大きいことがいえる。しかしながら、理論のところでも述べたように理想状態では  $c_0^*$  は温度および電圧に対して一定であるべきであるが、本実験のごとく温度を広範囲に変化させるときこの条件を満足することを実際の素子に要求するのは無理である。ただ実際の応用を考えるさい、大抵の場合はこのように大幅に温度変化を与えることはないから (比較的溫度変化の大きい熱誘電直接発電の場合でも約  $25 \sim 60^\circ\text{C}$  位である)、その目的とする動作温度の平均値を中心に各定数を決定して用いれば以上の問題は心配する必要はない。

他方、大信号静電容量  $C_i$  は上述の理由で多少高温領域では同じくずれが大きくなるが、Curie 温度近くでは  $C_s$  とはことなり、それほど大きくずれていない。これは  $C_s$  および  $C_i$  の定義式を考え

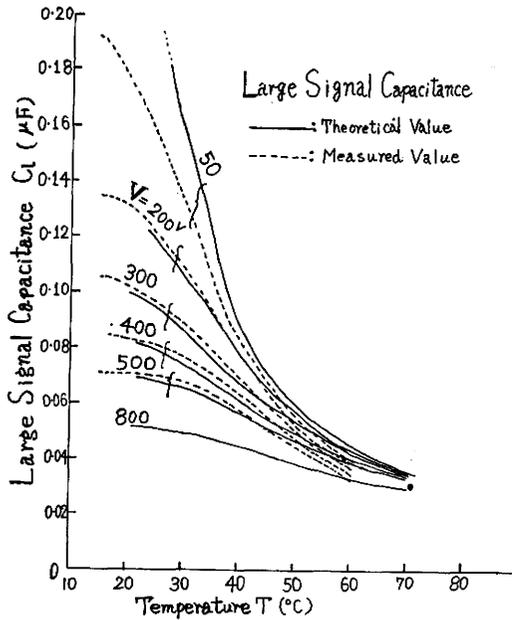


Fig. 9 Large Signal Capacitance  $C_i$  as a function of temperature  $T$ : applied d. c. voltage  $V$  as the parameter.

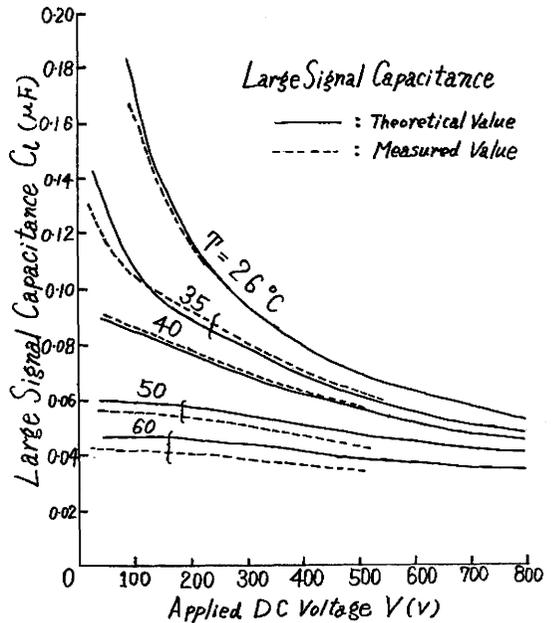


Fig. 10 Large Signal capacitance  $C_i$  as a function of applied d. c. voltage  $V$ : temperature  $T$  as the parameter.

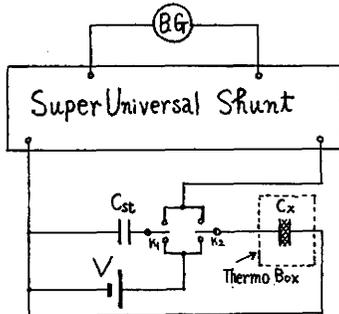


Fig. 11 Measuring circuit of the large signal capacitance.

れば明らかなように  $C_s$  は微分容量値であるのに対し  $C_i$  は平均的な値であるためである。すなわち、 $C_i$  の場合は電圧の余り小さくない範囲では定数  $c_0^*$  および  $\beta$  の選定はそれほど大きく影響してこないことがわかる。

以上の結果、強誘電体の Curie 温度以上の任意の温度および任意の電圧のときの静電容量は小信号および大信号動作に対してそれぞれ(35)および(38)式を用いて計算してよいことが明らかである。特に交番電圧のときの 大信号静電容量の測定が困難であることを考えれば、上述のごとく測定の比較的容易な小信号特性の data から  $C_i$  を求めることができることは都合のよいことといえよう。

**6・2 誘電損失による温度上昇の影響** 素子の温度は一定に保っておき、印加電圧による静電容量の非直線性を利用する場合、印加電圧の駆動範囲が小信号動作とみなせるときは素子の温度上昇は無視できる場合も多いが、印加電圧の周波数が高く、かつ大信号動作になればたとえ周囲温度を一定に保つようにつとめても素子温度は一定と考えられない場合がある。本節ではこのような状況を検討しよう。

この印加電圧による温度上昇は強誘電体を理想的なものと考え conduction loss を無視すれば dielectric loss だけを問題にすればよい。また、温度上昇は定常的なものである必要があるから次のように考えられる。すなわち、dielectric loss によって生じる energy と周囲媒質へ放散される energy を考え、これらが平衡したとき素子温度は定常値になる。しかし、これらを厳密に考えるためには素子の温度分布ならびに表面に近い媒質のそれを知る必要があり解析は困難であるか

ら、ここでは素子の温度分布は均一であり、周囲媒質の熱容量は無有限大であると仮定する。すると単位時間に放散する energy を  $N_2$  (J/sec) とすれば

$$N_2 = -\lambda(T - T_a)S \quad \dots\dots\dots(42)$$

で与えられる。ここで、 $\lambda$  [J/(m<sup>2</sup>.sec.°K)] は正の放散係数、 $T_a$  (°K) は周囲媒質の温度、 $T$  (°K) は任意時刻における素子温度および  $S$  (m<sup>2</sup>) は素子の表面積である。

一方、体積  $\Omega$  (m<sup>3</sup>)、複素比誘電率  $\epsilon^*$  なる素子に角周波数  $\omega$  の電界

$$\mathbb{E} = \mathbb{E}_0 \cos \omega t$$

を印加したとき生ずる単位時間当りの dielectric loss  $N_1$  (J/sec) は

$$N_1 = \frac{\omega \Omega}{2\pi} \int_0^{2\pi/\omega} \mathbb{E} \cdot \frac{\partial \mathbb{D}}{\partial t} dt = \frac{\omega \Omega}{2} \epsilon_0 \epsilon' |\mathbb{E}_0|^2 \quad \dots\dots\dots(43)$$

と与えられる。ここで、 $\epsilon'$  は  $\epsilon^*$  の虚数部、 $\epsilon$  は実数部であって

$$\epsilon^* = \epsilon - j\epsilon' \quad \dots\dots\dots(44)$$

の関係にある。

したがって、定常状態における素子温度  $T_e$  は

$$N = N_1 + N_2 = 0 \quad \dots\dots\dots(45)$$

を満足する  $T$  をとればよい<sup>(7)</sup>。しかしながら、 $\epsilon'$  は一般に周波数、印加電圧および温度によって変化するから、(45)式より  $T_e$  を求めるためにはこれらを含んだ関数として与えられなければならない。

BaTiO<sub>3</sub>系磁器の損失率  $\tan \delta = \epsilon'/\epsilon$  は Curie 温度以上で温度の単調減少関数である場合が多い<sup>(9)</sup>。このことは温度の増大に対して  $\epsilon'$  の方が  $\epsilon$  より急激に減少することを意味している<sup>(11)</sup>。いま、ある角周波数  $\omega$  および印加電界  $|\mathbb{E}_0|$  のもとでの  $\epsilon'$  の温度依存性を

$$|\epsilon'(T)|_{|\mathbb{E}_0|} = \epsilon'(T_r) - \gamma \Delta T \quad \dots\dots\dots(46)$$

で近似させれば、(42)、(43)および(45)式から

$$T_e = \frac{\epsilon_0 \omega \Omega \{ \epsilon'(T_r) + \gamma T_r \} \cdot \frac{|\mathbb{E}_0|^2}{2} + \lambda S T_a}{\lambda S + \frac{\epsilon_0 \omega \Omega \gamma |\mathbb{E}_0|^2}{2}} \quad \dots\dots\dots(47)$$

が得られる。ここで、 $T_r$  は基準温度であり  $\gamma = -\frac{\partial \epsilon'}{\partial T}$  である。

つぎに、周囲温度  $T_a$  および角周波数  $\omega$  を一定にしたままで、印加電界  $|\mathbb{E}_0|$  を  $\Delta |\mathbb{E}_0|$  ( $\Delta |\mathbb{E}_0| \ll |\mathbb{E}_0|$ ) だけ増加したため、素子温度が  $\Delta T_e$  ( $\Delta T_e \ll T_e$ ) 高まったと考えれば、(45)式で  $N(T_e) = 0$  なることを考慮して

$$\frac{\partial N(T)}{\partial T} \Delta T_e = \frac{\epsilon_0 \omega \Omega}{2} \left\{ \left[ \Delta |\mathbb{E}_0| (|\mathbb{E}_0|^2 + 2\Delta |\mathbb{E}_0| |\mathbb{E}_0|) \frac{\partial \epsilon'}{\partial |\mathbb{E}_0|} + 2 \epsilon' \Delta |\mathbb{E}_0| |\mathbb{E}_0| \right] + \left[ \frac{\partial \epsilon'}{\partial T} (|\mathbb{E}_0|^2 + 2\Delta |\mathbb{E}_0| |\mathbb{E}_0|) - \frac{\epsilon'}{T_e - T_a} |\mathbb{E}_0|^2 \right] \Delta T_e \right\}$$

を得る。さらに、(45)式より  $\partial N(T)/\partial T$  を求めれば、

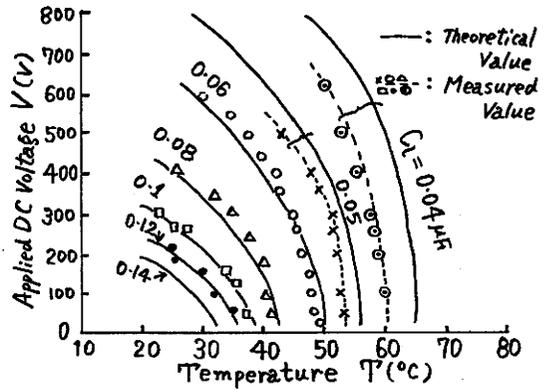


Fig. 12 Large signal capacitance as a function of applied d. c. voltage and temperature.

$$\frac{\partial N(T)}{\partial T} = \frac{\epsilon_0 \omega \Omega}{2} \left( |\mathbb{E}_0|^2 \frac{\partial \epsilon'}{\partial T} - \frac{\epsilon'}{T_e - T_a} |\mathbb{E}_0|^2 \right)$$

したがってこれを上式へ代入すれば  $\Delta T_e$  は

$$\Delta T_e = \frac{(2 \Delta |\mathbb{E}_0| + |\mathbb{E}_0|) \frac{\partial \epsilon'}{\partial |\mathbb{E}_0|} + 2 \epsilon'}{2 \tau} \dots\dots\dots(48)$$

と求められる。

したがって、(47)式の  $T_e$  に(48)式の  $\Delta T_e$  を加えたものを改めて  $T_e$  とおけば、さらに電界を増大させたときの素子温度上昇も同様に求めることができる。なお、 $\partial \epsilon' / \partial |\mathbb{E}_0|$  は動作温度の近傍で実験的に求めておけばよい。

このようにして得られた素子温度を(8)および(30)式の  $T$  へ代入すれば、素子温度上昇の効果も考慮した  $C_e$  および  $C_i$  を得ることができる。

## 7 結 言

以上に BaTiO<sub>3</sub> 系磁器を用いた熱誘電素子の非直線性に小信号および大信号電圧を動作させたときの静電容量を論じ、その両者についての一般表示式を与え、さらに、それらの相互関係を明らかにした。また、Curie 温度以上での熱誘電素子静電容量の温度依存性を電圧依存性と同時に表示する式を与え、実験結果と比較、検討しそれらは満足すべきものであることを示した。したがって、素子の温度を大幅に変化させることによって、その端子電圧も相作用しあって大きく変化する熱誘電直接発電による高電圧発生器の電圧の効果も考慮した解析がこれら関係式を用いれば容易になされる(この詳細は別の機会にゆずる)。

また、本文で詳述した諸関係式は強誘電体一般についてもいえるから、印加電圧以外に素子の温度を変化させて使用するような他の強誘電体応用機器の解析にも大いに有用性がある。

最後に随時御指導、御忠言を賜わっている大阪大学熊谷教授に謝意を表する。

### 文 献

- 1) S. Roberts : Phys. Rev., **71**, 890 (1947-6)
- 2) M. Cohn & A. F. Eikenberg : IEEE trans. MTT, **13**, 47 (1965-1)
- 3) 藤本, 松本 : 電学誌, **84**, 1836 (1964-11)
- 4) L. A. Pipes : Applied Mathematics for Engineers and Physists, 118, McGraw-Hill (1958)
- 5) 熊谷, 藤本 : 第3回応物大会, 5-Vp-2 (1956-4)
- 6) S. R. Hoh : Proc IEEE, **51**, 838 (1963-5)
- 7) V. Dvorák et. al : Jour. Appl. Phys., **35**, 1875 (1964-6)
- 8) 田中 : チタン酸バリウムとその応用, 89, 97 オーム社 (1955)
- 9) 田中 : ibid., 69.

### 付 録 各種基礎仮定式の相互関係

基礎仮定式としてQ-V関係に着目した(1)および(16)式の他にD-E関係としてとらえた(A-1)<sup>(1)</sup>および(A-2)<sup>(2)</sup>式もよく用いられる。すなわち

$$\mathbb{E} = \alpha'_1 \mathbb{D} + \beta' \mathbb{D}^3 \tag{A-1}$$

$$\mathbb{E} = \alpha'' \sinh \beta'' \mathbb{D} \tag{A-2}$$

ここで、 $\alpha'$ ,  $\beta'$ ,  $\alpha''$  および  $\beta''$  はすべて温度だけに依存する定数である。さらに  $\mathbb{D} = \frac{Q}{A}$ ,  $\mathbb{E} = \frac{V}{d}$  なることおよび(1)と(16)式の関係と同様、(A-1)式は(A-2)式を展開近似した意味において等しいと考えるならば、

それぞれの仮定式の係数の間には Table A-1 の関係が成立する。したがって、本文にのべたことがらはこの表を利用すれば容易に他の仮定式に適用できる利点がある。

|                                |   |  |   |   |
|--------------------------------|---|--|---|---|
|                                | $V = \alpha Q + \beta Q^3$  | $V = \frac{1}{C_i a} \sinh aQ$   | $E = \alpha' D + \beta' D^3$  | $E = \alpha'' \sinh \beta'' D$  |
| $V = \alpha Q + \beta Q^3$     |   | $\alpha = \frac{1}{C_i}$<br>$\beta = \frac{1}{6} \frac{a^3}{C_i}$                | $\alpha = \frac{d}{A} \alpha'$<br>$\beta = \frac{d}{A^3} \beta'$                            | $\alpha = \frac{d}{A} \alpha'' \beta''$<br>$\beta = \frac{d}{A^3} \alpha'' \beta''^3$ |
| $V = \frac{1}{C_i a} \sinh aQ$ | $C_i = \frac{1}{\alpha}$<br>$a = \sqrt{\frac{6\beta}{\alpha}}$                                      |  | $C_i = \frac{A}{d} \frac{1}{\alpha'}$<br>$a = \frac{1}{A} \sqrt{\frac{6\beta'}{\alpha'}}$   | $C_i = \frac{A}{d} \frac{1}{\alpha'' \beta''}$<br>$a = \frac{\beta''}{A}$             |
| $E = \alpha' D + \beta' D^3$   | $\alpha' = \frac{A}{d} \alpha$<br>$\beta' = \frac{A^3}{d} \beta$                                    | $\alpha' = \frac{A}{d} \frac{1}{C_i}$<br>$\beta' = \frac{A}{6d} \frac{a^3}{C_i}$ |   | $\alpha' = \alpha'' \beta''$<br>$\beta' = \frac{\alpha'' \beta''^3}{6}$               |
| $E = \alpha'' \sinh \beta'' D$ | $\alpha'' = \frac{1}{d} \sqrt{\frac{\alpha}{\beta}}$<br>$\beta'' = A \sqrt{\frac{\alpha \beta}{A}}$ | $\alpha'' = \frac{1}{d} \frac{1}{C_i a}$<br>$\beta'' = A a$                      | $\alpha'' = \sqrt{\frac{6\beta'}{\alpha'}}$<br>$\beta'' = \sqrt{\frac{\alpha'^3}{6\beta'}}$ |   |

Table A-1 Relations in the assumed fundamental equations of nonlinearity.

(昭和40年9月30日受理)