

## 보로노이 네트워크를 이용한 ZnO 바리스터의 전기적 특성 연구

### The Study of Electrical Characteristic of ZnO Varistor with Voronoi Network

황휘동 한양대학교 공대 전기공학과  
 한세원 한양대학교 공대 전기공학과  
 강형부 한양대학교 공대 전기공학과

Hui-dong Hwang Dept. of Electrical Eng, Hanyang University  
 Se-won Han Dept. of Electrical Eng, Hanyang University  
 Hyung-boo Kang Dept. of Electrical Eng, Hanyang University

#### Abstract

A microstructure of realistic ZnO varistor was constructed by Voronoi network and studied via computer simulation. The grain size and standard deviation was calculated with new method and have good agreement with experimental data. In this network, the grain boundary conditions of three different type are randomly distributed. The three electrical boundary conditions : (1) type A junctions (high nonlinearity); (2) type B junctions (low nonlinearity); (3) type C junctions (linear with low-resistivity) are fitted from the experimental measurement. The electrical properties were studied by varying the boundary type concentration and the disorder parameter  $d$ . The shape of  $I$ - $V$  characteristic curve of the network is affected by the type concentration and the disorder parameter has an effect on the double inflected region.

#### 1. 서 론

Zinc Oxide 바리스터는 높은 비선형  $I$ - $V$  특성을 가지는 다결정(multi-component) 세라믹 반도체 소자로 전압 제어 스위칭 소자라 할 수 있다. 이러한 바리스터는 ZnO에 Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>나 MnO<sub>2</sub>, Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub> 등을 혼합, 소결하여 얻어낼 수 있다. 실험적으로 밝혀진 바에 따르면 바리스터는 항복(breakdown) 영역에서  $I = kV^{\alpha}$  ( $\alpha$ 는 비선형계수)인 관계를 가지며, 여기서  $\alpha$ 는 소자의 비선형 정도를 나타낸다.  $\alpha$ 의 값은 인가 전압에 따라 다르지만 보통 50 이상으로 알려져있다.

전기, 전자 회로들은 번개나 정전기등 여러 가지 이유에 의해 발생한 임펄스전압에 의해 손실을 입을 수 있다. ZnO 바리스터는 전류, 에너지 흡수성이 매우 크므로 저압과 고압에서 surge arrester로 폭 넓게 사용되고 있다[1].

바리스터의 항복전압은 실제적인 이용 면에서 아주 중요한 파라미터이다. 바리스터는 다결정 세라믹 소자이고, 항복 전압은 이 입자계면의 장벽과 관계가 있다. 바리스터의 첨가물들은 입계에 이중 쇼트키 장벽(double Schottky barrier)을 형성하고 이 때문에 바리스터의 비선형적인 특성이 나타난

다[2]. 그러나 계면의 미세구조는 불균일하고 각 계면의 전기적 성질 또한 동일하지 않다. 벌크(Bulk) 형태 바리스터는 선형적인 접합과 비선형적인 접합이 임의의 네트워크로 직·병렬 연결된 다양한 집합으로 이루어진다.

각각 다른 형태의 미세접합이 벌크(bulk) 형태의 바리스터에 미치는 기하학적인 영향은 매우 중요하다. 그러나 단지 각각의 입계의 성질을 일률적으로 평균하여 바리스터의 특성을 묘사하는 것은 적절하지 못하다. 따라서 바리스터 내의 각 입자들을 하나의 정사각형 모양의 블럭(block)으로 표현하는 블럭모델을 이용한 시뮬레이션이 행해져 왔다[3]. 그러나 이 모델은 바리스터 특성의 정량적 해석에는 도움이 되지만 실제 소자의 불규칙한 미세구조와는 상당한 차이가 있다. 최근에 이러한 실제소자에 근접하는 통계적인 모델이 소개되었다[4]. 이 모델은 불규칙하게 배열된 2차원 보로노이 네트워크(Voronoi network)로 구성하여 실제 바리스터에 아주 근접한 형상을 구현한 것이다.

본 연구에서는 보로노이 네트워크를 이용하여 실제에 가까운 바리스터의 미세구조를 구현하고, 실험 데이터와의 비교를 통해 기하학적 접근을 시도하였다. 또한, 네트워크에 적용되는 입계조건을

세 종류-A 형태(type A), B 형태(type B), C 형태(type C)-로 나누어 실제 바리스터 입계의 불균일성을 반영하였다. 이렇게 구성된 네트워크를 이용한 시뮬레이션을 통해 다양한 조건에 따른 바리스터의 전기적 특성을 정량적으로 해석하였다.

## 2. 모델링

### 2.1 보로노이 네트워크 모델

보로노이 네트워크에서 각 입자는 다양한 형태와 크기의 다각형으로 표현되고, 각 입자에 이웃한 입자의 수는 각각 다르다. 실제 바리스터의 입계들의 특성은 거의 모든 입자에서 달리 나타난다 [1][2]. 그러나 본 연구에서는 실험 데이터를 기초로 그중 대부분의 비율을 차지하고 있는 조건을 택하여 근사화시켜 보로노이 네트워크를 구성하였고 이를 바탕으로 키르히호프의 법칙을 이용하여 시뮬레이션 하였다.

본 연구에서 사용된 2차원 보로노이 네트워크를 구성하려면 먼저, 완전히 무작위이거나, 어느 정도 연관을 가지는 중심점들을 임의로 정의한다. 각 중심에는 하나의 다각형 모양 cell이 할당된다. 이러한 보로노이 다각형은 이웃한 중심점들을 연결한 직선의 수직이등분선을 교차시킴으로써 만들 수 있다[5].

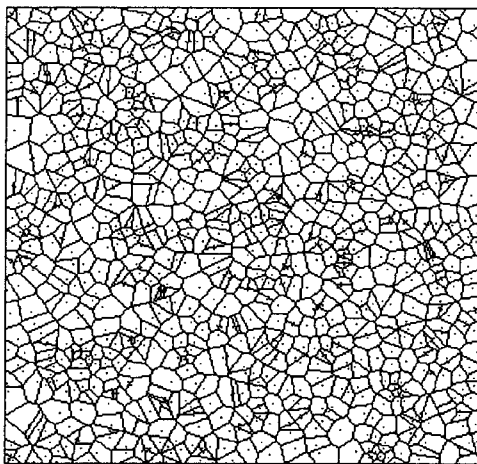


그림 1 보로노이 네트워크  
( $d=5.0$ , 986개의 중심점)  
Fig. 1 Voronoi network  
( $d=5.0$ , 986 seeds)

물리적으로 보로노이 네트워크는 각각의 중심점에서 동시에 시작하는 2차원 성장 과정으로 생각할 수 있다. 이 성장은 같은 속도로 계속되다가 두

성장 면이 서로 만날 때 멈추게 된다. 그러므로 보로노이 네트워크의 기하학적 의미는 임의의 중심점으로부터의 입자 성장과 매우 흡사하다.

규칙적인 삼각격자로 구성된 중심점들로 이루어진 육각형모양의 셀(cell)구조는 무질서도( $d$ )가 증가하면서 점점 불규칙적인 보로노이 네트워크를 구성한다. 각각의 중심점들을 그 점들이 원래 있던 위치를 중심으로 그린 반지름  $d$ 만큼의 원판 내에서 임의의 크기와 방향으로 이동시킴으로써 무질서도가 결정된다. 그림 1은  $d=5.0$ 의 값으로 구성되는 보로노이 네트워크의 형태로 실제 ZnO 바리스터 미세구조와 유사하다.

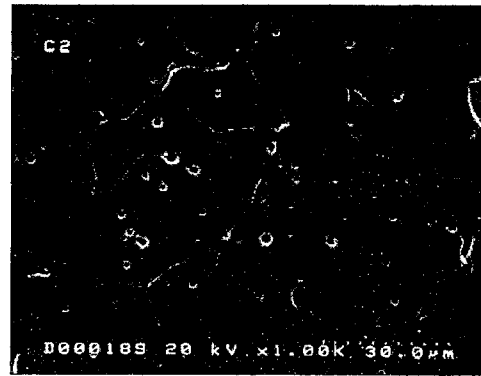


그림 2 ZnO 바리스터의 SEM조직사진  
Fig. 2 SEM micrograph of ZnO varistor

그림 2는 1200℃로 2시간 소결시켜 제조된  $B_{2}O_{3}$ 계 ZnO 바리스터의 SEM 조직사진이다. 이 조건에서는 약  $10\mu m$ 크기의 ZnO 입자와  $B_i$  절연층이 입계를 구성하고 있다. 실제적으로 ZnO 입자의 크기는 소결온도, 시간 그리고 첨가물의 종류에 따라 변화하고, 상업용으로는 주로  $10\sim 30\mu m$ 크기의 ZnO 입자를 만들어 바리스터를 제조한다.

바리스터에서 입자 크기 분포는 소자의 전기적 특성과 밀접한 관계를 가지는 것으로 알려져 있다 [6]. 그러나 입자의 크기를 정확하게 측정할 수 없기 때문에 주로 반복적인 방법을 이용해 근사적으로 구하여 왔다. 그 중 2차원 구조에 주로 사용된 방법-본 연구에서 이용된 네트워크가 2차원-linear intercept method이다. 이러한 방법을 이용하면 같은 샘플이라도 측정하는 방법에 따라 상당한 오차가 생긴다. 그러나 컴퓨터를 이용한 시뮬레이션에서는 입자의 면적을 정확히 구할 수 있으므로 본 논문에서는 다음과 같은 방법으로 입자의 크기를 계산하였다.

그림 3의 6각형은 네트워크의 다각형을 나타낸다. 이 다각형의 면적을 구하여 그 면적과 같은 값

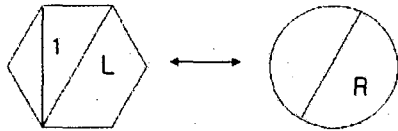


그림 3 입자 크기 계산

Fig. 3 calculation of grain size

을 가지는 원을 가정하면, 원은 한 개 입자를 의미하고 원의 지름은 입자의 크기가 된다[7]. 이렇게 해서 구한 입자 크기의 평균값이 1이 되도록 수정하여 분포를 구하였다.

## 2.2 시뮬레이션

ZnO 바리스터의 비선형성은 입계의 비선형적인 성질에 의해 결정된다. 그러나 각 입계가 모두 같은 성질을 가지는 것은 아니다. 본 연구에서는 이런 점을 반영하기 위해 입계의 특성을 세가지로 나누어 네트워크내에 임의로 분포시켰다[8].

A 형태 입계의 특성은 다음과 같은 식으로 나타낼 수 있다.

$$J(V) = \begin{cases} \frac{V}{R_g} \left( 1 + \frac{V^{50}}{(V_B)^{50}} \right) & , V \leq V_{0g} \\ \frac{V}{R_g} \left( 1 + \frac{(V_{0g})^{50}}{(V_B)^{50}} \right)^{7/2} \left( 1 + \frac{(V_{0g})^{70}}{(V_B)^{50} V^{20}} \right)^{-5/2} & , V > V_{0g} \end{cases} \quad (1)$$

여기서,  $J(V)$ 는 2차원 전류밀도이고,  $V$ 는 계면에 걸리는 전압이다. 또한  $R_g$ 는 입계의 단위 면적당 누설저항을 나타내고, 그 값은  $10^9$ 으로 하였다.  $V_B$ 는 접합의 항복전압으로 3[V]의 값을 갖는다.  $V_{0g}$ 는 비선형계수가 그 최대 값의 반에 이를 때의 전압이다. 식 (1)은 특성곡선의 항복 전압영역과 항복영역을 나타낸다. 변수  $V_{0g}$ 에서 두 영역이 연결되고, 그 값은 약 3.467[V]정도이다. 이러한 변수들에 의해 비선형계수의 최대값  $\alpha_{max}$ 는 51로 정해진다

B 형태 입계 역시 비슷한 식에 의해 그 특성이 다음식과 같이 모델화된다.

$$J(V) = \begin{cases} \frac{V}{R_b} \left( 1 + \frac{V^{50}}{(V_B)^{50}} \right)^{1/5} & , \text{for } V \leq V_{0b} \\ \frac{V}{R_b} \left( 1 + \frac{(V_{0b})^{50}}{(V_B)^{50}} \right)^{11/5} \left( 1 + \frac{(V_{0b})^{55}}{(V_B)^{50} V^5} \right)^{-2} & , \text{for } V > V_{0b} \end{cases} \quad (2)$$

$R_b$ 는 B 형태 입계의 단위 면적당 누설저항을 나

타내고, 그 값은  $10^7$ 으로 A 형태 입계보다 100배 정도 작다. 그리고  $V_B$ 는 A 형태 입계와 같은 의미와 크기를 가지도록 설정하였고, 두 부분이 연결되는  $V_{0b}$ 의 값은 3.622[V]로 두었다. 이에 의해 결정되는 비선형계수의 최대값  $\alpha_{max}$ 는 11이 된다. 그리고 그 특성곡선은 항복영역에서 완만한 변화를 보인다.

마지막으로 C 형태 입계는 선형적인 특성을 가진다.

$$J(V) = \frac{V}{R_0} \quad (3)$$

$R_0$ 는 입계의 단위면적당 저항으로 여기서는  $2 \times 10^5$ 으로 고정시켰다.

본 네트워크에서는 B 형태 입계는 진한 선으로 나타내고 C 형태 입계를 두줄로 나타내었다. 그외 다른 모든 입계는 A 형태 입계를 의미한다.

외부 전압은 네트워크의 양쪽 가장자리를 가로질러서 인가된다. 바닥에서는 0, 제일 위에는  $V$ 의 고정된 전압을 각각 인가한다.

각 cell들의 퍼텐셜  $V_i$ 는 키르히호프의 법칙을 이용해서 구할 수 있다.

$$\sum_j I_{ij} J(V_i - V_j) = 0 \quad (2)$$

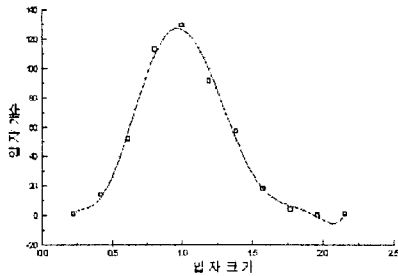
식(2)에서  $j$ 는 입자  $i$ 와 이웃한 모든 입자들을 나타내고,  $I_{ij}$ 는 입자  $i$ 와  $j$ 가 맞닿는 변의 길이이다. 그리고 전류밀도  $J(V_i - V_j)$ 는 식(1)-(3)중에서 해당입계의 식을 이용해 계산한다.

## 3. 결과 및 고찰

그림 4(a)는 충분히 무질서하게 분포된 중심점 ( $d=5.0$ )들에 의해 생성된 보로노이 네트워크의 입자 크기 분포이다. 그리고 이 결과는 실제 실험에서 linear intercept method를 이용해 구한 분포와 일치하고 있다[9].

그림 4(b)는 무질서도를 변화시켰을 때 네트워크의 표준편차를 구한 그래프이다. 표준편차는  $d$ 가 3.0보다 커지면 일정한 범위 내에서 변한다는 것을 알 수 있다. 그러므로  $d$ 가 5.0정도가 되면 중심점들은 충분히 무질서하게 분포되었고 이때의 네트워크는 실제 모델을 구현하였다고 볼 수 있다.

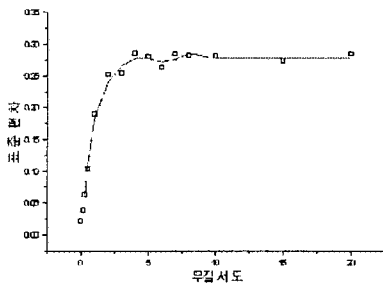
그림 5(a)에 실제 모델에 가까운 입계조건을 가진 네트워크를 무질서도의 변화에 따라 시뮬레이션한 결과를 보였다. 이는 실제 바리스터에서 입자의 크기 효과를 보기 위한 것으로 점선은  $d$ 가 0.18



(a)

일 때의  $I-V$  곡선이고 파선은  $d=1.0$ 일 때, 그리고  $d$ 가 실제에 가까운 5.0일 때의 곡선을 실선으로 나타내었다. 그림을 보면 곡선의 모양은 크게 차이가 나지 않는다. 그러므로 무질서도가 네트워크  $I-V$  곡선의 모양에는 크게 영향을 미치지 않음을 알 수 있다.

그림 5(b)는 무질서도가 5.0인 네트워크에서 각 입계조건의 비율을 변화시켰을 때의  $I-V$  곡선이다. 이는 입계가 바리스타의 특성에 미치는 영향을



(b)

그림 4 (a)입자 크기 분포( $d=5.0$ )와 (b)무 질서도에 따른 표준편차. 입자의 크기는 평균값이 1이 되도록 표준화되었다.

Fig. 4 (a) distribution of grain size( $d=5.0$ ) (b) standard deviation with disorder. The average grain size is normalized to 1

고려하기 위한 것으로 각 입계의 특성은 앞에서 설명하였다. 그림 5(b)에서 실선은 100%의 입계가 모두 A 형태 조건을 가질 때이고 파선은 50%의 A 형태 입계와 50%의 B 형태 입계가 임의로 분포된 네트워크의  $I-V$  곡선이다. 그리고 50% A 형

태 입계, 30% B 형태 입계, 20% C 형태 입계인 분포를 가지는 네트워크의  $I-V$  곡선을 점선으로

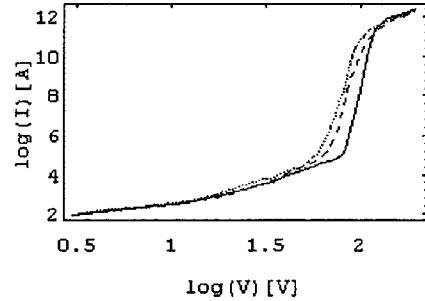


그림 5 (a) 실제와 가까운 입계 구성 (50%-30%-20%)에서 무질서도의 변화에 따른  $I-V$  곡선, 점선은  $d=0.18$ , 파선은  $d=1.0$ , 실선은  $d=5.0$

Fig. 5 (a)  $I-V$  curve with different disorder parameter at 50%A-30%B-20%C,  $d=0.18$ (dotted),  $d=1.0$ (dashed),  $d=5.0$ (solid)

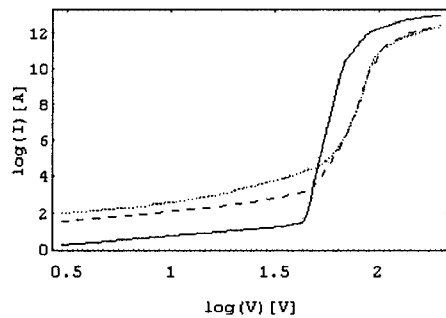


그림 5 (b)  $d=5.0$ 일 때 입계 조건에 따른  $I-V$  곡선, 100% A 형태 입계(실선), 50%-50%(파선), 50%-30%-20%(점선)

Fig. 5 (b)  $I-V$  curve with different boundary condition at  $d=5.0$  100% type A(solid), 50%A - 50%B (dashed), 50%A - 30%B - 20%C(dotted)

나타내었다.그림을 보면 알 수 있듯이 모두 A 형태 입계일 때 곡선은 비선형 구간에서 아주 급격한 변화를 보이고 B 형태 입계나 C 형태 입계가 첨가되면 완만하게 변한다.

네트워크를 통한 전류의 전도 현상을 더 심도있

게 고려하기 위해 cell 구조의 전류분포를 계산하였다. 그림 6에 그 결과를 보였는데, 이는 그림 1의 네트워크에서 제일 위는 100V, 바닥에는 0V의 전압을 인가한 경우이다. 그림에서 각 입자의 전류 밀도는 흰색에서 검은색까지의 스펙트럼을 이용한 것으로 흰색이면 전류가 흐르지 않고, 검은색일 때

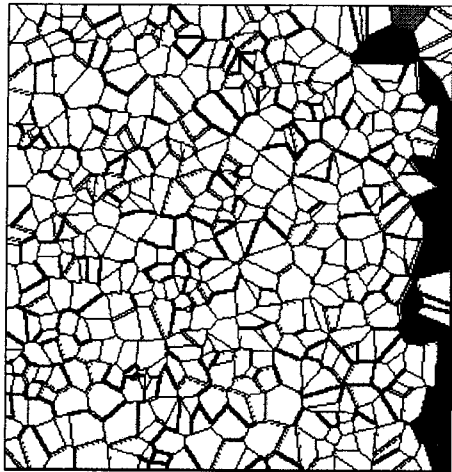


그림 6  $d=5.0$ , 50%-30%-20%일 때 항복영역에서의 전류 분포

Fig. 6 current distribution in breakdown region at  $d=5.0$ , 50%-30%-20%

최대전류가 흐른다.

그림 6에서 네트워크의 양 끝을 연결하는 한 개의 경로가 형성된다. 이 경로를 이루는 입자에는 모두 항복전압보다 높은 전압이 인가되어 있다. 따라서 네트워크가 항복영역에 들어가면 한 경로를 통하여 거의 모든 전류가 흐름을 알 수 있다. 즉, 전류의 분포가 국부적으로 집중된다. 이 사실은 바리스터의 열화에서 puncture가 나타나는 현상을 잘 설명해 준다.

네트워크의 무질서도를 증가시켜서 일정한 값이상이 되면 표준 편차는 실제와 비슷한 분포를 보이고 무질서도를 충분히 크게하여 발생시킨 네트워크의 입자 크기 분포는 실험에서 얻어진 분포와 유사한 모양을 나타낸다. 이 점에서 역시 보로노이 네트워크의 신뢰성을 발견할 수 있다.

모든 입계를 A 형태 입계로 설정하면 전체 특성은 A 형태 입계의  $I-V$  곡선과 유사한 모양을 나타내고 이 곡선의 모양은 이상적인 바리스터의 특성곡선의 모양과 비슷하다. 여기에 B 형태 입계나 C 형태 입계의 첨가 비율을 증가시키면 따라 곡선의 모양이 점점 완만해지고 그 비율이 매우

커지면 전체  $I-V$  곡선은 많은 비율을 차지하는 종류의 입계 곡선에 가까워진다. 그러므로 바리스터의 비선형적인 특성을 향상시키기 위해서는 입자의 크기와 형태보다 입계의 구성에 더 주목하여야 한다.

#### [참 고 문 헌]

- [1] Kazuo Eda, "Zinc Oxide Varistors", IEEE Electrical Insulation Magazine. 5(6), 28, 1989
- [2] G. D. Mahan, L. M. Levinson, and H. R. Philipp, "Theory of conduction in ZnO varistors", J. Appl. Phys. 50(4), 2799, 1979
- [3] T. K. Gupta, "Application of Zinc Oxide Varistors", J. Am. Ceram. Soc. 73(7), 1817, 1990
- [4] M. Bartkowiak, G. D. Mahan, F. A. Modine, M. A. Alim, "Influence of ohmic grain boundaries in ZnO varistors", J. Appl. Phys. 79(1), 273, 1996
- [5] D. Weaire, N. Rivier, "Soap, Cells and Statistics-Random Patterns in Two Dimensions", Contemp. Phys. 25(1), 59, 1984
- [6] G. Y. Sung, C. H. Kim, M. H. Oh, "Effect of Grain-Size Distribution on the Barrier Voltage of ZnO Varistors", Adv. Ceram. Mater. 2(4), 841, 1987
- [7] C. W. Nan, D. R. Clarke, "Effect of Variations in Grain Size and Grain Boundary Barrier Heights on the Current-Voltage Characteristics of ZnO Varistors", J. Am. Ceram. Soc. 79(12), 3185, 1996
- [8] H. Wang, W. Li, and J. F. Cordaro, "Single Junctions in ZnO Varistors Studied by Current-Voltage Characteristics and Deep Level Transient Spectroscopy", Jpn. J. Appl. Phys. 34(4A), 1765, 1995
- [9] Ze-Chun Cao, Ru-Jun Wu and Run-Sheng Song, "Ineffective grain boundaries and breakdown threshold of zinc oxide varistors", Mater. Sci. Eng. B22, 261, 1994