

高濃度 KF 置換による六方晶 BaTiO₃ の低温焼成Sintering of hexagonal-type BaTiO₃ at a low temperature

by substituting high concentration KF

島根大 教育 ○別木政彦, 塚田真也, 秋重幸邦

Fac. Edu. Shimane Univ. Masahiko Bekki, Shinya Tsukada, Yukikuni Akishige

E-mail: E129209@matsu.shimane-u.ac.jp

現在、広く普及しているセラミックコンデンサには比誘電率の高い立方晶ペロブスカイト型のチタン酸バリウム(p-BaTiO₃: p-BT)を主体とした物質が使われている。近年、セラミックコンデンサの容量向上のために誘電体層の薄層化が検討されている。誘電体層の薄層化を実現するためには誘電体粒子の粒径は小さいものが求められる。しかし p-BT の場合、粉末を微細化するとサイズ効果によって比誘電率が低下してしまう。そこで比誘電率の高い物質として六方晶型チタン酸バリウム(h-BaTiO₃: h-BT)が注目されている。h-BT は、本来比誘電率の小さな物質であるが、h-BT に酸素欠損を導入した単結晶や p-BT とのコアシェル構造をもつセラミックスでは、非常に大きな誘電率が広い温度域において見出されている[1, 2]。

純粋な h-BT は 1460°C 以上に安定相が存在し、室温では準安定として存在する。したがって h-BT を得るには 1460°C 以上の高温から急冷する必要がある。しかしこの場合、h-BT 粒子は粒成長し、得られる粒子は粗大なものになってしまう。急冷法で作製された粗大粒ではコンデンサの薄層化に対応できない。この問題に対して、Mn や Ga を Ti サイトにドーブした BaTiO₃ は h-BT への相転移温度が 1100°C まで低下し、1μm 以下の微細粒の取得に成功している[3]。

今回、ゾルゲル法によって作製される KF 置換 BaTiO₃ (Ba_{1-x}K_xTiO_{3-xF_x}: KFBT/x) [4] の製造工程を詳細に検討したところ x=0.50 の高濃度置換によって 600°C の低温でも六方晶が単相として存在できることが明らかになった。図 1 に XRD パターンを示す。54<2θ(°)<58 において立方晶(211)面反射と六方晶(108)面反射の比が KF 置換率 x の増加によって変化していることがわかる。また KF 置換率 x と焼成温度 T_S(°C) の関係を詳しく調べたところ、0<x<0.50、400<T_S(°C)<1050 の範囲において、立方晶単相、立方晶・六方晶混相、六方晶単相の 3 領域が存在することが明らかになった(図 2)。なお作製された粒子は 1μm 以下の微細粒であり、KF 置換率 x と焼成温度 T_S(°C) の関係によって繊維状

粒や棒状粒、平板状粒など特徴的な形を示す。さらに SPS 法[5]によって KFBT/x 粉末を用いて作製されたセラミックスは高密度であり、比誘電率は約 60、tanδ・温度依存性の小さな材料である。

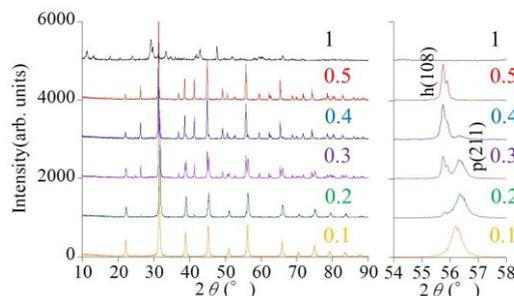
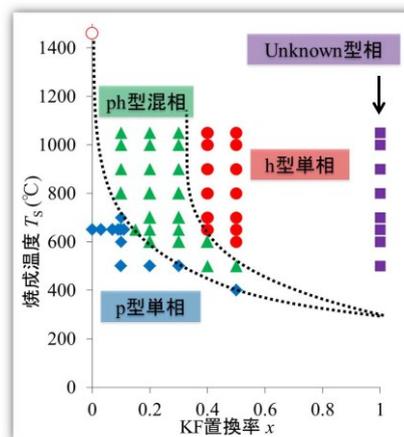


図 1. KFBT/x, 600°C 焼成時の XRD パターン。

図 2. KFBT/x 系物質の KF 置換率と焼成温度 T_S(°C) に関する相図。

REFERENCES

- [1] 余野建定, 石川毅彦, 伊藤満, 符徳勝: 新結晶・新物質 **41** (2006) 39.
- [2] 特願 2010-222704: TDK 株式会社, 独立行政法人宇宙航空研究開発機構.
- [3] H. Natsui, C. Moriyoshi, F. Yoshida, Y. Kuroiwa, T. Ishii, O. Odawara, J. Yu, and S. Yoda: Appl. Phys. Lett. **98** (2011) 132909.
- [4] Y. Akishige, et. al.: Jpn. J. Appl. Phys. **49** (2010) 081501.
- [5] Y. Akishige, K. Honda, and S. Tsukada: Jpn. J. Appl. Phys. **49** (2010) 09MC03.