

(K,Na)(Nb,W)O₃系強誘電体の 強誘電特性、平均・局所構造解析

Ferroelectric characteristics, average and local structure analyses of

(K,Na)(Nb,W)O₃-based ferroelectric ceramics

東理大理工, °中島 健太郎, 石田 直哉, 北村 尚斗, 井手本 康

Tokyo Univ. of Science, °K. Nakajima, N. Ishida, N. Kitamura, Y. Idemoto

E-mail: 7214663@ed.tus.ac.jp

1. 緒言 現在、電子機器に応用される強誘電体材料として、チタン酸ジルコン酸鉛(PZT)が挙げられるが、原料に含まれる鉛が毒性を持つことから、非鉛材料の開発が求められている。非鉛材料の中でも、K_{0.5}Na_{0.5}NbO₃(KNN)は高いキュリー温度をもち、PZT と同等の圧電特性を有することが知られている¹⁾。しかし KNN の問題点として、作製段階でアルカリ金属が揮発しやすく、電気特性に悪影響を及ぼすことが挙げられ、その点を改善する研究が盛んに行われてきた。これまで当研究室では、KNN の Nb サイトへ高価数の W を置換させ、特性の改善を図ってきた。本研究では、(K,Na)(Nb,W)O₃系強誘電体について、中性子線回折を用いて結晶構造解析を行い、W の置換による強誘電特性の変化を結晶構造の観点から検討した。また、X 線吸収微細構造(XAFS)測定を行い、電子状態や、Rietveld 法による解析では評価できない局所構造について明らかにし、強誘電特性との関連を検討することを目的とした。

2. 方法 200 °C, air, 12 h で乾燥した Na₂CO₃ と、KHCO₃、Nb₂O₅、WO₃を湿式混合後、900 °C, air, 2 h で焼成した。その後ボールミルで粉碎し、放電プラズマ焼結(SPS)を用いて、真空中で 50 MPa の圧力をかけながら、900 °C, 5 min で焼結した。そして得られた焼結体について 900 °C, air, 4 h でリカバリーアニール処理を行い、目的の試料を得た。各試料について、アルキメデス法による相対密度の算出、SEM による断面形態の観察を行った。強誘電特性については、P-E ヒステリシスループ、比誘電率・誘電損失の温度依存性、キュリー温度および相転移温度を測定した。さらに中性子回折データ(iMATERIA, J-PARC)を用いて Rietveld 法による結晶構造解析(Z-Rietveld)を行い、XAFS 測定(BL01B1, Spring-8)から電子状態、局所構造を明らかにし(Athena)、強誘電特性との関係について検討した。

3. 結果 アルキメデス法による相対密度、SEM による観察から、いずれの試料も緻密な焼結体を得られたことが分かった。P-E ヒステリシスループの測定からは、W を置換することで残留分極の増加、抗電界の減少といった特性の向上が見られた。中性子回折測定による結晶構造解析からは、W を置換することで酸素欠損が抑制されたことが示され、このことが強誘電特性向上の一因となったと考えられる。Fig. 1 に、ドナーとして置換した W の XANES スペクトルを示す。この図から、KNN に固溶した W は、WO₃の状態とほぼ同様の電子構造を持つことが分かった。さらに Nb の XAFS スペクトルから、Nb 周辺の局所構造を明らかにし、強誘電特性との関連を検討したので報告する。

1) Y. Saito, et al., *Nature*, 432, 84 (2004).

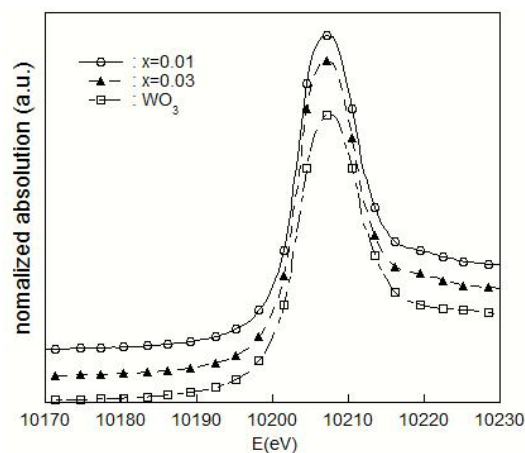


Fig. 1 (K_{0.5}Nb_{0.5})(Nb_{1-x}W_x)O₃における
W-L_{III}吸収端スペクトル