

(K,Na,Li)NbO₃ 系強誘電体バルク・薄膜の 強誘電特性、結晶構造の組成依存

Composition dependence of ferroelectric characteristics and crystal structure of (K,Na,Li)NbO₃-based ferroelectric ceramics and thin films

東理大理工, 井手本 康, °水野 健一郎, 石田 直哉, 北村 尚斗

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

E-mail: 7215673@ed.tus.ac.jp

1. 緒言 現在、様々な電子機器に使用されてい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、酸化鉛が毒性を有することから、代替非鉛材料の開発が行われている。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、アルカリ元素の高い揮発性による特性の劣化、難焼結性が挙げられる。本研究では、KNN の緻密性の改善のため、放電プラズマ焼結(SPS)を用いた。また、K,Na 組成を検討するとともに、Na を Li に置換することで、強誘電特性・結晶構造の組成依存を明らかにすることを目的とした。さらに、KNN 薄膜を作製し、結晶構造・配向性の評価と強誘電・圧電特性の検討も行った。

2. 方法 Na₂CO₃、KHCO₃、Nb₂O₅、Li₂CO₃ を湿式混合後、900 °C, air, 2 h で仮焼した。その後ボールミルで試料を粉碎し、真空中で 50 MPa の圧力をかけ 1050 °C, 5 min で SPS 法による焼結を行った後、900 °C, O₂, 4 h でアニール処理を行った。粉末 X 線回折測定により相の同定と格子定数の算出を行い、ICP 及び原子吸光分析により金属組成を求めた。またアルキメデス法により相対密度を求め、SEM により試料の焼結状態を観察した。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。さらに放射光 X 線回折測定(BL02B2, SPring-8)を行い Rietveld 法による結晶構造解析(RIETAN-FP)を行った。薄膜については、(K_{0.5}Na_{0.5})NbO₃ ゴルゲル溶液を用いて Pt/Ti/SiO₂/Si 基板上にスピコートを行い、250°C, 2min で乾燥、450°C, 2min で焼成したのちに 600~750°C, O₂ 中で RTA 処理を行うことで目的試料を得た。バルクと同様の特性評価に加えて、圧電特性の評価と X 線による極点図測定による配向性の検討を行った。

3. 結果 (K_{1-x}Na_x)NbO₃ (x=0.5~0.6)バルクについて粉末 X 線回折測定を行った結果、全ての試料は主相を斜方晶 *Amm2* で帰属することができたが、第二相として K₂O が若干見られた。SEM による観察と密度測定により試料は十分緻密であることが分かった。*P-E* ヒステリシスループの測定 (Fig. 1)を行い、x=0.55 において残留分極の増加が見られた。このような特性の変化を、Rietveld 法による結晶構造解析を行い、結晶構造の観点から検討した。また、薄膜については、極点図測定から面内配向したエピタキシャル薄膜であり、SEM による観察から欠陥や亀裂のない均一な膜が得られたことがわかった。

参考文献

- 1) Y. Saito, H. Takao, T. Tani, T. Nonoyama, K. Takatori, T. Homma, T. Nagaya, and M. Nakamura, *Nature*, **432**, 84 (2004).

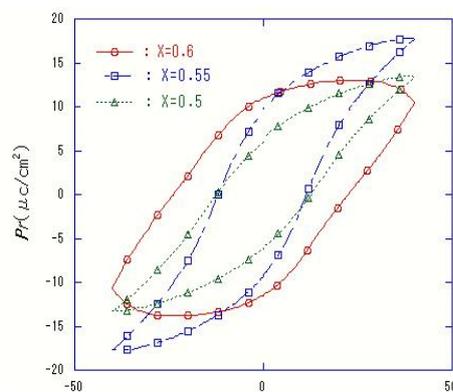


Fig.1 SPS を用いた(K_{1-x}Na_x)NbO₃ の *P-E* ヒステリシスループ