ナノ／マクロ複合ドメイン構造を有するBi系圧電材料の欠陥低減を目指した新規作製方法の検討

Development of Defect-less Bi-based Piezoelectric Materials with Nano/Macro Complex Domain Configuration

○飯塚 涼[1]、上野 慎太郎[1]、中島 光一[1]、藤井 一郎[2]、和田 智志[1]
(1. 山梨大、2. 龍谷大)
°Ryo Iizuka[1], Shintaro Ueno[1], Kouichi Nakashima[1], Ichiro Fujii[2], Satoshi Wada[1]
(1.Univ. of Yamanashi, 2.Ryukoku Univ.)
E-mail: swada@yamanashi.ac.jp

現在、環境問題の観点から、$Pb(Zr,Ti)O_3$ (PZT)系セラミックスに代わる高性能な鉛フリー圧電材料の開発が急務となっている。我々は、強誘電体の持つマクロなドメイン構造をナノサイズに微細化し、高い圧電性の起源とされるドメイン壁密度を増加させることで、優れた圧電特性を有する鉛フリー圧電材料の開発に取り組んできた。これまでに、リラクサー挙動を示す $BaTiO_3$-$Bi(Mg_{0.5}Ti_{0.5})O_3$ (BT-BMT)と強誘電体である $BiFeO_3$ (BF)の固溶体である BT-BMT-BF セラミックスを固相法により合成し、その晶系とドメイン構造を観察した結果、擬立方晶ペロブスカイト構造を有する0.3BT-0.1BMT-0.6BFセラミックスにおいてナノドメインの存在が透過型電子顕微鏡観察により確認された。また、同組成の仮焼粉に形成体を埋め込み、焼結を行うことにより、S_{max}/E_{max} = 799 pm/V (E_{max} = 50 kV/cm, 0.1 Hz)の巨大な電界誘起歪を示すセラミックスが作製された。[1]しかし、Bi 揮発に起因する種々の欠陥生成により、リーク電流やドメインピニングが生じ、圧電定数は PZT に及んでいない。

そこで、本研究ではドメインピニングを緩和するため、0.3BT-0.1BMT-0.6BF セラミックスのアニール時にクエンチ処理を施すことによって特性の向上を試みた。出発原料として、Bi_2O_3、TiO_2、MgO、$BaTiO_3$、$BiFeO_3$ 粉末をボールミルにて混合し、900 °C 、6 h で仮焼した後、絶縁性能を改善するため MnO_2 を 0.05 wt%添加し、エタノール中で 16 h、ボールミルによる粉砕・混合を行った。この仮焼粉にバインダーを 3 wt %添加し、250 MPa で一軸加圧成型することで成型体を作製した。700 °C にて脱脂した後、1000 °C、2 h で焼結を行った。焼結体を加工し、800℃、20 h のアニール後にクエンチ(室温への急冷処理)を行った。その後、金電極形成を行い、圧電性能の評価を行った。クエンチを実施することにより、残留分極が 20.0 μC/cm^2 から 34.9 μC/cm^2 に増加し(Fig.1)、ドメインピニングが緩和された。しかし、高温、長時間の焼結では、Bi 揮発由来の欠陥が多く生成し、リーク電流が増大するため、現在は、低温かつ短時間で焼結が可能な SPS(Spark plasma sintering)法による試料の作製を試みている。

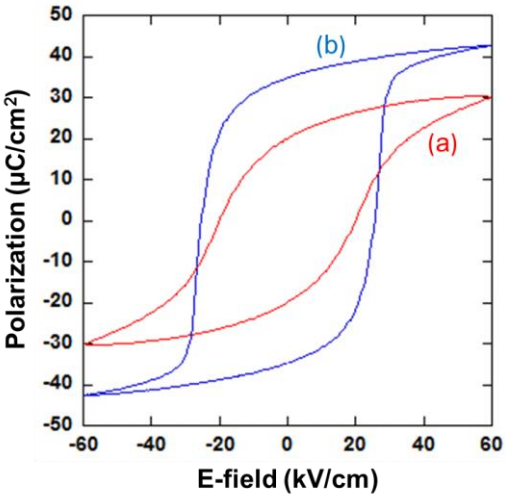

Fig.1 *P-E* hysteresis loops of (a) the non-quenched and (b) the quenched 0.3BT-0.1BMT-0.6BF ceramics measured at 25℃ at 0.1Hz.

[1] I.Fujii, R.Mitsui, K.Nakashima, N.Kumada, H.Yabuta, M.Shimada, T.Watanabe, K.Miura, and S.Wada, J.Ceram.Soc.Jpn., 121, 589-592 (2013).

© 2015年 応用物理学会