

放電プラズマ焼結による(K, Na)NbO₃-(Bi, Na)TiO₃系強誘電体の 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)NbO₃-(Bi, Na)TiO₃ ferroelectric ceramics prepared by spark plasma sintering

東理大理工, 井手本 康, ○椎熊 寛生, 石田 直哉, 北村 尚斗

Tokyo Univ. of Science, Y. Idemoto, H. Shiikuma, N. Ishida, N. Kitamura

E-mail: 7216639@ed.tus.ac.jp

1.緒言 現在、様々な電子機器に用いられている強誘電材料としてチタン酸ジルコン酸鉛(PZT)が挙げられるが、酸化鉛が毒性を持つことから、非鉛代替材料の開発が盛んに行われている。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、良好な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、比較的低温からアルカリ元素である Na, K が揮発しやすく、電気特性に悪影響を及ぼすこと、焼結性が悪いことが挙げられる。また、当研究室では KNN の他に(Bi, Na)TiO₃(BNT)にも着目し、KNN-BNT 系固溶体の BNT リッチの組成について研究を行ってきた。本研究では、アルカリ元素の揮発抑制、焼結性の改善を目的として放電プラズマ焼結(SPS)を用い、KNN リッチの組成である(1-x)(K_{0.45}Na_{0.55})NbO₃-x(Bi_{0.5}Na_{0.5})TiO₃(x=0.01~0.07)について、BNT 固溶に伴う強誘電特性への影響と結晶構造との関係について検討した。

2.方法 KNN については Na₂CO₃, KHCO₃, Nb₂O₅を出発原料として、BNT については Bi₂O₃, Na₂CO₃, TiO₂を用いて、各々仮焼(BNT:850°C, air, 3h, KNN:900°C, air, 3h)することで合成した。これらの粉末をボールミル(24h)で各々粉碎し、BNT, KNN を所定比で湿式混合した後、一晚乾燥した。さらに 50 MPa で一軸加圧しながら 1050°C, 真空, 5 min で SPS 焼結後、900°C, air, 4 h でアニール処理を行った。各試料について粉末X線回折測定により相の同定と格子定数の算出を行い、金属組成は ICP-AES 及び原子吸光分析により決定した。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。また、放射光 X 線回折データ(BL19B2, SPring-8)を用いた Rietveld 法による結晶構造解析を行い、結晶構造と強誘電特性との関係について検討した。

3.結果 粉末X線回折パターンより、全ての試料は主相を斜方晶 *Amm*2 で帰属することができた。また BNT 置換量が増えるにつれピークのスプリットが不鮮明になり、結晶構造の変化が示唆された。SEM による観察から、SPS で焼結させることでより緻密な焼結体となることが分かった。SPS を用いて焼結させた試料について P-E ヒステリシスループの測定(Fig. 1)を行った結果、BNT を置換することでリーク電流が大幅に抑えられ、抗電界の減少が見られた。また残留分極は x=0.05 で最大となった。以上のような特性の変化を、Rietveld 法による平均結晶構造解析を行い、結晶構造の観点から検討した。

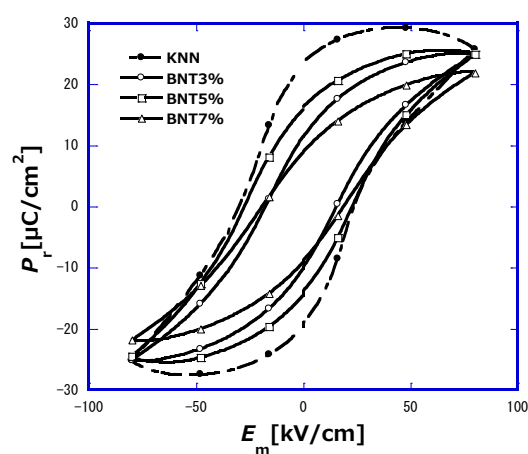


Fig. 1 (K_{0.45}Na_{0.55})NbO₃-x(Bi_{0.5}Na_{0.5})TiO₃ の P-E ヒステリシスループ

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