

放電プラズマ焼結による $(0.4-y)\text{Bi}_{0.5}\text{K}_{0.5}\text{TiO}_3-y\text{BiFeO}_3-y\text{K}(\text{Nb}, \text{Ta})\text{O}_3$ 強誘電体の組成変化に伴う強誘電特性と結晶・電子構造

Ferroelectric characteristics and crystal and electronic structure depend on composition of $(0.4-y)\text{Bi}_{0.5}\text{K}_{0.5}\text{TiO}_3-\text{BiFeO}_3-y\text{K}(\text{Nb}, \text{Ta})\text{O}_3$ ferroelectric materials prepared by spark plasma sintering

○岩渕 徹・石田 直哉・北村 尚斗・井手本 康 (東京理科大学)

○Toru Iwabuchi, Naoya Ishida, Naoto Kitamura, Yasushi Idemoto (Tokyo Univ. of Science)

Email: 7215610@ed.tus.ac.jp

【緒言】

現在、強誘電体として鉛を主成分に含む $\text{Pb}(\text{Zr}, \text{Ti})\text{O}_3$ (PZT) 系材料が主に使用されているが、環境負荷低減の観点から PZT に代わる非鉛強誘電体材料の開発が望まれている。このような材料の 1 つとして PZT と同様に正方晶－菱面体晶の結晶相境界 (MPB) を持ち、良好な強誘電・圧電特性を示す $0.4\text{Bi}_{0.5}\text{K}_{0.5}\text{TiO}_3-0.6\text{BiFeO}_3$ (BKTFB) 系材料が着目されている¹⁾。しかしながら、BKTFB に更に別の強誘電体を固溶した報告は少ない。そこで当研究室では MPB 組成である BKTFB をベースとして、 KNbO_3 あるいは KTaO_3 を固溶した材料を合成し、強誘電特性と結晶構造の関係を検討してきた²⁾。本研究では新たに $\text{K}(\text{Nb}_x\text{Ta}_{1-x})\text{O}_3$ を固溶した $(0.4-y)\text{Bi}_{0.5}\text{K}_{0.5}\text{TiO}_3-0.6\text{BiFeO}_3-y\text{K}(\text{Nb}_x\text{Ta}_{1-x})\text{O}_3$ に着目し、 $\text{K}(\text{Nb}_{1-x}\text{Ta}_x)\text{O}_3$ の固溶量及び Nb:Ta 比による強誘電特性の変化及びその要因について検討した。また、この系は難焼結性であるため、放電プラズマ焼結 (SPS) により試料を作製し、その強誘電特性について検討した。これらの試料について放射光 X 線回折を用いた構造解析を行い、強誘電特性と平均・局所構造、電子密度分布の関係について検討することを目的とした。

【方法】

試料は通常焼結あるいは SPS による焼結を適用した固相法により合成した。得られた試料について粉末 X 線回折測定により相の同定を行い、ICP 発光分光・原子吸光分光法により金属成分組成を求めた。また、焼結性を検討するため、アルキメデスによる密度測定と SEM による形態観察を行った。強誘電特性については P - E ヒステリシス測定および誘電率・誘電損失の温度依存性を測定した。さらに結晶構造と強誘電特性の関係を検討するため、放射光 X 線回折測定 (BL19B2, SPring-8) から得られたデータを用いて Rietveld 法 (RIETAN-FP, Z-Rietveld) による結晶構造解析、MEM (Dysnomia) による電子密度分布解析、X 線吸収微細構造 (XAFS) 測定 (BL14B2, SPring-8) から得られたデータから電子状態、局所構造の解析 (Athena, Artemis) を行った。

【結果】

粉末 X 線回折より、全試料の主相が $\text{B}_{0.5}\text{K}_{0.5}\text{TO}_3$ と同じ空間群 (S.G.: $P4mm$) のペロブスカイト型構造に帰属された。また、アルキメデス法、SEM による形態観察から得られた試料はある程度緻密なバルク体であることが確認された。これらの試料において P - E ヒステリシス測定を行ったところ、SPS を使用した試料では $y=0.05$ の時に最も大きな残留分極が得られた (図 1)。そこで固溶量を $y=0.05$ で固定し、Nb:Ta 比を変化させ、試料を作製し、 P - E ヒステリシスを測定した結果、 $x=0.75$ で若干リーク電流が見られるが大きな残留分極が得られた (図 2)。このような強誘電特性に違いが見られたため、放射光 X 線回折測定から得られたデータをもとに結晶構造解析を行い、結晶構造と強誘電性の関係について検討した。

【参考文献】

- 1) H. Matsuo et al., *J. Appl. Phys.*, **108**, 104103 (2010).
- 2) 宮崎 浩輔, 石田 直哉, 北村 尚斗, 井手本 康, 日本セラミックス協会 2014 年年会予稿集, 1P042 (2014).

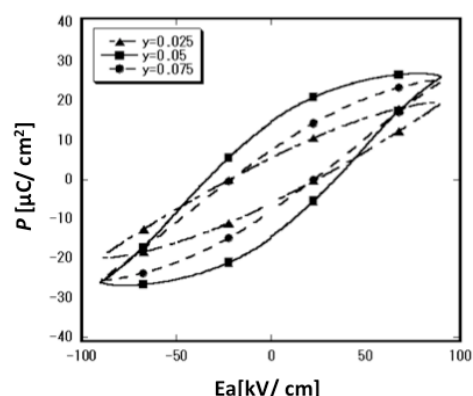


Fig 1 P-E hysteresis curves of changing the solid-solution ratio y for $(0.4-y)\text{BKT}-0.6\text{BF}-y\text{K}(\text{Nb}_{0.5}\text{Ta}_{0.5})\text{O}_3$ (SPS).

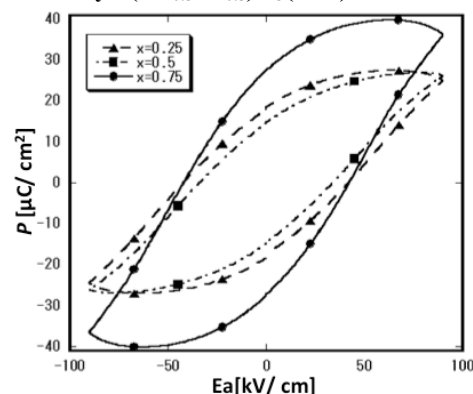


Fig 2 P-E hysteresis curves of changing the Nb / Ta ratio x for $0.35\text{BKT}-0.6\text{BF}-0.05\text{K}(\text{Nb}_x\text{Ta}_{1-x})\text{O}_3$ (SPS).