

放電プラズマ焼結を用いて作製した $(\text{Bi}_{0.5}\text{K}_{0.5})\text{TiO}_3\text{-BiFeO}_3\text{-K}(\text{Nb}_x\text{Ta}_{1-x})\text{O}_3$
強誘電体の強誘電特性と結晶構造の組成依存性

Composition dependency of ferroelectric characteristics and crystal structure of
 $(\text{Bi}_{0.5}\text{K}_{0.5})\text{TiO}_3\text{-BiFeO}_3\text{-K}(\text{Nb}_x\text{Ta}_{1-x})\text{O}_3$ 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】

近年、環境負荷低減の考え方から、鉛を主成分に含む強誘電体 $\text{Pb}(\text{Zr,Ti})\text{O}_3$ (PZT)系材料に代わる非鉛強誘電体材料の開発が望まれている。 $0.4\text{Bi}_{0.5}\text{K}_{0.5}\text{TiO}_3\text{-}0.6\text{BiFeO}_3$ (BKTBF)は PZT と同様に正方晶一菱面体晶の結晶相境界(MPB)を持ち、良好な強誘電・圧電特性を示すことが知られている¹⁾。しかしながら、BKTBF 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 BKTBF 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 Nb:Ta 比の影響を明らかにするため、 $\text{K}(\text{Nb}_x\text{Ta}_{1-x})\text{O}_3$ を固溶した $0.375\text{Bi}_{0.5}\text{K}_{0.5}\text{TiO}_3\text{-}0.6\text{BiFeO}_3\text{-}0.025\text{K}(\text{Nb}_x\text{Ta}_{1-x})\text{O}_3$ に着目した。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。さらに、 $\text{K}(\text{Nb}_{1-x}\text{Ta}_x)\text{O}_3$ 固溶量による強誘電特性の変化の要因を検討するため、それぞれの試料で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。通常焼結では、各酸化物、炭酸水素塩を出発原料として、仮焼(750 °C, air, 3 h)後、バインダーを添加(PVA 2.5 wt%)してペレット成型、脱バインダー(600 °C, air, 2 h)、本焼(1000 °C, air, 4 h)することにより試料を得た。また、SPSによる焼結では、事前に仮焼を行った試料を乳鉢で粉砕し、焼成(1000 °C, air, 4 h)して、得られた粉末を再度粉砕し、カーボンダイスに充填し加圧(50 MPa)しながら 800 °C, 真空中, 5 min の条件で焼結した。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。さらに、EDS を用いて元素マッピングを行った。強誘電特性については $P\text{-E}$ 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、粉末 X 線回折測定を行い、Rietveld 解析(RIETAN-FP) を用いて結晶構造解析を行った。

【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。これらの試料について比誘電率の温度依存性を測定した結果、通常焼結に比べ SPS では T_m 、比誘電率の増加が見られた。また、 $P\text{-E}$ ヒステリシスにおいて SPS を使用した試料では残留分極の増加が見られた。また、Nb:Ta 比が減少するにつれ残留分極が増加する傾向が見られた。これらの結果から強誘電特性に違いが見られたため、長時間粉末 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).
- 3) Y. Idemoto, T. Mizoguchi, N. Kitanura, T. Itoh, *Jpn. Soc. Powder Powder Metallurgy*, **58**, 703-709 (2012).

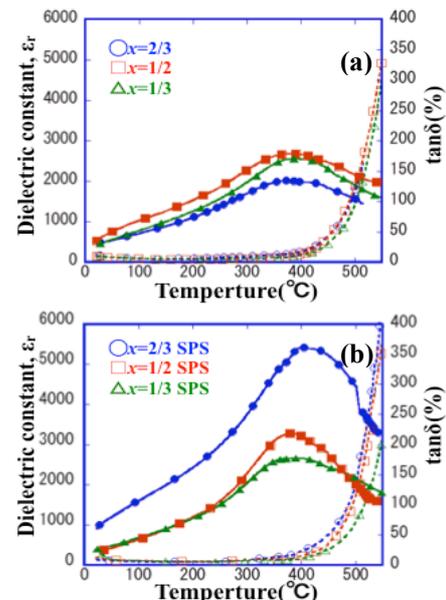


Fig.1 Temperature dependence of dielectric constant ϵ_r and dielectric loss $\tan\delta$ of normal sintered sample (a) and prepared by the spark plasma sintering (SPS) (b).