

(K,Na,Li)NbO₃系強誘電体の強誘電特性、結晶・電子構造の組成依存

Composition dependence of ferroelectric characteristics,

crystal and electronic structures of (K,Na,Li)NbO₃-based ferroelectric ceramics

東理大理工 °水野 健一郎, 石田 直哉, 北村 尚斗, 井手本 康

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

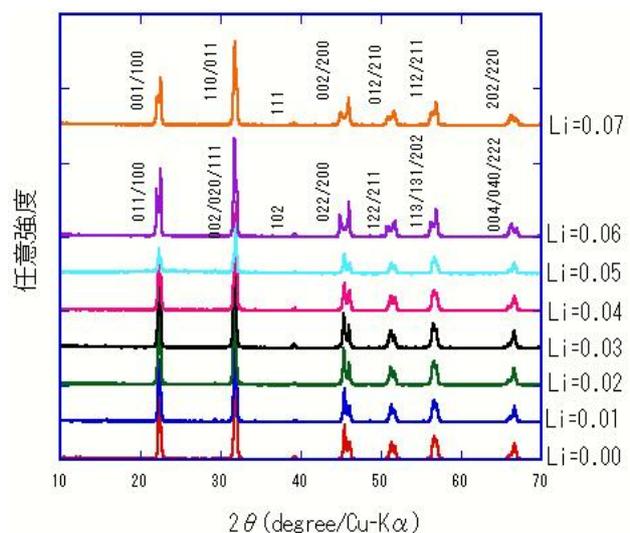
E-mail: 7215673@ed.tus.ac.jp

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。PZT が優れた特性を示す要因の 1 つはモルフォトロピック相境界(MPB)であると考えられるため、MPB に類似した相境界を持つペロブスカイト構造の(K_{0.5}Na_{0.5})NbO₃(KNN) が有望な非鉛材料として期待されている。実際、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が、相境界における特性、結晶構造については未だ未解明な部分が多い。本研究では、ペロブスカイト構造 ABO₃ の A サイトへ Li を置換することにより KNN の正方晶への相転移を誘導し、相境界における強誘電特性、結晶・電子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、相境界を有する組成の B サイトへ Ta、V の置換を行い、置換が強誘電特性に与える影響について検討を行った。

2. 方法 Na₂CO₃、KHCO₃、Li₂CO₃、Nb₂O₅、Ta₂O₅、V₂O₅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砕し、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, 4h 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と比誘電率・誘電損失の温度依存性を測定し、圧電特性は *d*₃₃ メーターを用いて評価した。さらに放射光 X 線回折測定 (BL02B2, BL19B2, SPring-8) から得られたデータから Rietveld 解析 (RIETAN-FP) と MEM (Dysnomiya) による結晶構造解析を行い、結晶・電子構造と強誘電特性の関係について検討した。

3. 結果 (K_{0.45}Na_{0.55-x}Li_x)NbO₃(*x*=0~0.07)はいずれの試料もペロブスカイト構造の単一相が得られた (Fig. 1)。また、Rietveld 法による結晶構造解析を行った結果、*x*=0.04~0.07 の組成において、斜方晶 *Amm*2 と正方晶 *P4mm* の二相解析で良好なフィッティングが得られ、相境界を有することが示された。SEM による観察と真密度測定により全ての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、比誘電率・誘電損失ではともに *x*=0.05~0.07 組成において残留分極、キュリー温度の増大、誘電損失の低下が見られた。このような特性の変化を、Rietveld 法による結晶構造解析、MEM による電子構造解析から検討した。さらに、相境界を有する組成の B サイトへ Ta、V の置換を行い、強誘電特性への影響を検討した。

参考文献

1) Y. Saito et al., *Nature*, **432**, 84 (2004).Fig.1 (K_{0.45}Na_{0.55-x}Li_x)NbO₃ の X 線回折パターン