

(K, Na, Li)NbO₃系強誘電体の強誘電特性、結晶構造の K, Na 組成比依存および Cu, Zn 置換効果K, Na composition dependence of ferroelectric properties and crystal structures of (K,Na,Li)NbO₃ based ferroelectrics, and Cu, Zn substitution effect東理大理工,^o小幡 和登, 石橋 千晶, 石田 直哉, 北村 尚斗, 井手本 康

Tokyo Univ. of Science, K. Obata, C. Ishibashi, N. Ishida, N. Kitamura, Y. Idemoto

E-mail: idemoto@rs.tus.ac.jp

1. 目的 現在、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、環境負荷低減の観点から非鉛材料の開発が盛んに行われている。このような材料として、当研究室では高いキュリー温度をもち、良好な圧電特性を有するペロブスカイト型構造の K_{0.5}Na_{0.5}NbO₃(KNN)に注目してきた^{1,2)}。しかし KNN の問題点として、比較的低温でアルカリ元素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。そこで本研究では、焼結性の改善を目的として、スパークプラズマ焼結 (SPS) を用い、また KNN に Li を 5mol%置換した試料をベースとし、K, Na 比を変化させ、さらに Cu, Zn 置換をすることにより圧電特性の向上を目指した。また、Cu, Zn が電気特性に与える影響を、量子ビームを用いた結晶構造解析により検討した。

2. 実験 Cu 置換体(K_{0.45-x}Na_{0.5}Li_{0.05}Cu_x)NbO₃(x=0.005,0.01), (K_{0.45}Na_{0.5-y}Li_{0.05}Cu_y)NbO₃(y=0.005,0.01), Zn 置換体(K_{0.45-z}Na_{0.5}Li_{0.05}Zn_z)NbO₃(z=0.005, 0.01)を固相法により合成した。Na₂CO₃, KHCO₃, Nb₂O₅, Li₂CO₃, CuO, ZnO を湿式混合後、850 °C, air, 3h で仮焼し、その後ボールミルを 3h 行った。真空中で 50 MPa の圧力をかけながら 1050 °C, 5 min で SPS 後、980 °C, O₂, 4 h でリカバリー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を行い、ICP 発光分光分析により金属成分の組成を検討した。また、真密度測定と SEM により試料の焼結状態を評価した。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を測定した。放射光 X 線回折測定(BL19B2, SPring-8)のデータより結晶構造を解析した(Rietan-FP)。

3. 結果と考察 粉末 X 線回折パターン(Fig. 1)より、全ての試料は主相を直方晶 *Amm*2 で帰属することができ、SEM による観察と密度測定から緻密な焼結体が得られたことが分かった。*P-E* ヒステリシスループの測定(Fig. 2)より、K に Cu を 0.5mol% (KCu005), Na に Cu を 1mol%置換した試料(NaCu010)は残留分極の大幅な増加が見られ、K に Cu を 0.5mol%置換した試料(K_{0.445}Na_{0.5}Li_{0.05}Cu_{0.005})NbO₃ で最も良好な強誘電特性が得られた。以上の特性の変化を、Rietveld 法による結晶構造解析を行い、結晶構造の観点から検討した。その結果、A-site(K,Na)を Cu で置換することにより Nb-O₆ 八面体の歪みが増大し、強誘電特性を向上させることが分かった。

参考文献

- 1) Y. Saito, *et al.*, *Nature*, 432, 84 (2004).
- 2) 平沢 良明, 平成 30 年度東京理科大学修士論文, (2018).

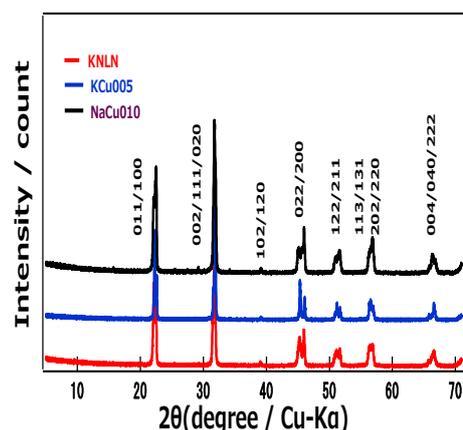
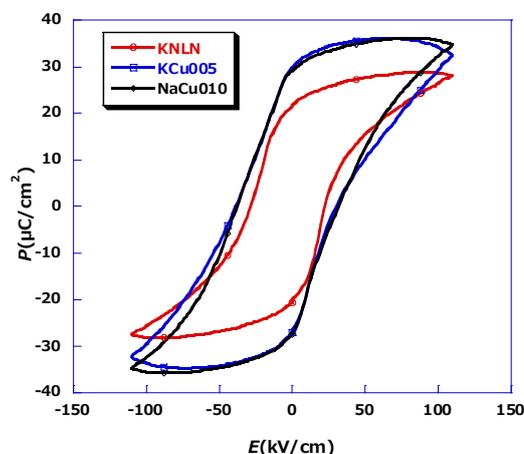


Fig. 1 各試料の粉末 X 線回折パターン

Fig. 2 各試料の *P-E* ヒステリシスループ