

(K, Na)NbO₃系強誘電体の強誘電特性、結晶構造の組成依存および他元素置換効果Composition dependence of ferroelectric properties and crystal structure of (K,Na)NbO₃ based ferroelectrics, and other elements substitution effect東理大理工,^o小幡 和登, 石田 直哉, 北村 尚斗, 井手本 康

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

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

1. 目的 近年、チタン酸ジルコン酸鉛を代替する非鉛材料の探索が精力的に行われている。本研究では、非鉛材料の中で、高いキュリー温度と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)に注目した¹⁾。これまで当研究室では、KNNの合成条件を検討することにより焼結体の密度の改善、またLiを置換することにより圧電特性の向上を報告してきた²⁾。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比を変化させてCu,Zn置換をすることによる強誘電特性の向上を目的とした。さらにCu,Znが電気特性に与える影響を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=0.005,0.0075,0.01), (K_{0.45}Na_{0.5-y}Li_{0.05}Cu_y)NbO₃(y=0.005,), 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。出発原料を湿式混合後、850℃, air, 3hで仮焼した。その後ボールミルを3hかけた。真空中で50MPaの圧力をかけながら1050℃, 5minでSPS後、980℃, O₂, 4h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と格子定数の算出を行った。また、真密度測定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、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線回折測定(BL19B2, SPring-8)と中性子回折測定(iMATERIA, J-PARC)のデータよりRietveld法(Rietan-FP, Z-Rietveld)を用いて結晶構造解析を行った。

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 $Amm2$ で帰属することができた。SEMによる観察と密度測定からSPSを用いることで、緻密な焼結体を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、Cu0.5mol%,0.75mol%置換体は残留分極の増加が見られ、KにLi5mol%,Cu0.5mol%置換した試料(K_{0.45}Na_{0.5}Li_{0.05}Cu_{0.005})NbO₃(KCu005)で最も良好な強誘電特性が得られた。誘電率測定ではLi置換体、Cu置換体、Zn置換体はキュリー温度には大きな変化が見られなかったが比誘電率の増加がみられた。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。

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).

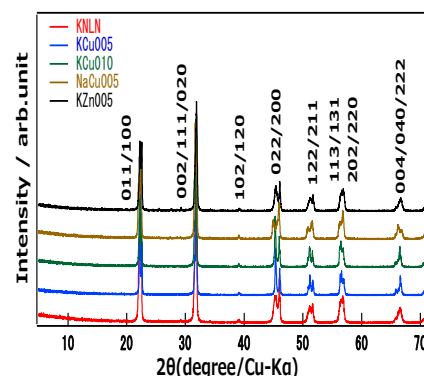


Fig. 1 各試料の粉末X線回折パターン

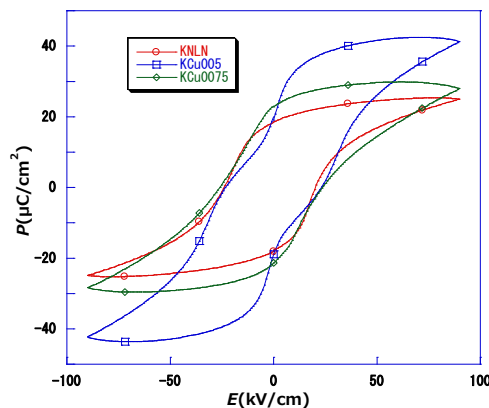


Fig. 2 各試料のP-Eヒステリシスループ