

(K, Na, Li)NbO₃系強誘電体の強誘電特性、平均・局所構造の K, Na 組成比依存および Cu, Zn 置換効果

K, Na composition dependence of ferroelectric properties, and average and local 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、強誘電材料としてチタン酸ジルコン酸鉛(PZT)が幅広く用いられているが、環境負荷低減の観点から、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非鉛材料として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、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、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置換をすることで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平均・局所構造解析により検討した。

2. 実験 (K_{0.45}Na_{0.5}Li_{0.05})NbO₃を母体として、Cuを置換した(K_{0.45-x}Na_{0.5}Li_{0.05}Cu_x)NbO₃(x=0.005, 0.01)および(K_{0.45}Na_{0.5-y}Li_{0.05}Cu_y)NbO₃(y=0.005, 0.01)と、Kの一部をZnで置換した(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 °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, 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、放射光X線・中性子回折測定(BL19B2, iMATERIA)のデータを用いたRietveld法(Rietan-FP, Z-code)による平均構造解析、放射光X線全散乱測定(BL04B2)のデータを用いたPDF解析(PDFgui)、XAFS測定(BL14B2)のデータを用いた局所・電子構造解析(Athena, Artemis)を行った。

3. 結果と考察 粉末X線回折パターンより、全ての試料は主相を直方晶 *Amm2*で帰属することができた。*P-E*ヒステリシスループの測定より、x=0.005, y=0.01置換した試料では残留分極の大幅な増加が見られ、(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、平均・局所構造の観点から検討した。Fig. 1にy=0.01の試料のRietveld解析パターンを、Fig. 2に同試料のPDF解析パターンを示す。その結果、A-site(K,Na)をCuで置換することにより局所的にNb-O₆八面体の歪みが大幅に増大する部分があり、強誘電特性を向上の一因と考えられる。

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).

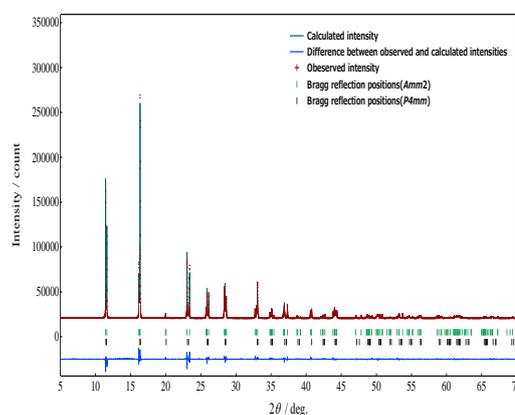


Fig. 1 y=0.01 の Rietveld 解析パターン

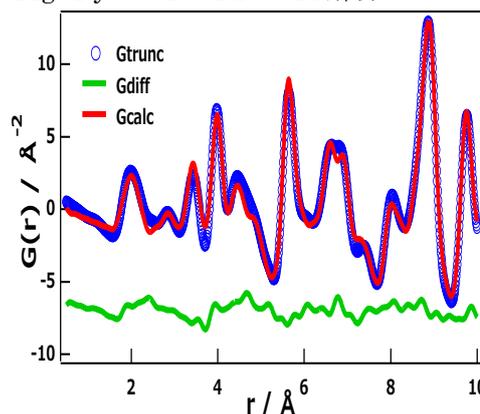


Fig. 2 y=0.01 の PDF 解析パターン