

## C05 NaNbO<sub>3</sub>系無鉛圧電セラミックスの作製と電気的特性評価

名古屋大学 未来材料・システム研究所

○藪内 直人・林 幸彦朗・坂本 渉・余語 利信

E-mail: yabuuchi.naoto@e.mbox.nagoya-u.ac.jp

### 【諸言】

現在、実用化されている圧電材料には優れた電気的特性を有する Pb(Zr,Ti)O<sub>3</sub>系化合物が主流となっている。しかし、主成分として鉛が多く含まれるため環境汚染が懸念されており、これらを代替する新規無鉛圧電材料に世界的な注目が集まっている。本研究では、比較的高い Curie 温度を有する NaNbO<sub>3</sub>系化合物に注目した。NaNbO<sub>3</sub>は室温において反強誘電性を示すが、少量の BaTiO<sub>3</sub>あるいは LiNbO<sub>3</sub>と固溶体を形成することで強誘電体となることが報告<sup>1,2)</sup>されている。しかし、これまで KNbO<sub>3</sub>との固溶体以外の NaNbO<sub>3</sub>系セラミックスに関する研究例はあまり多くはない。一方、多価イオンとなりうる Mn は各種誘電体セラミックスの電気的特性を向上する機能元素として知られている。ここでは、特に Mn のドーブが NaNbO<sub>3</sub>-BaTiO<sub>3</sub>系セラミックスの電気的特性に与える影響を中心に検討を行った。

### 【実験方法】

出発原料として NaNbO<sub>3</sub>, BaTiO<sub>3</sub>, MnCO<sub>3</sub> を選択し、これらの混合粉末を酢酸ブチル（溶媒）、ポリビニルブチラール（バインダー）、ジブチルフタレート（可塑剤）を混合したビヒクル中に分散させてスラリーを調製した。調製したスラリーをドクターブレード法によりテープキャストしてグリーンシートを作製した。このグリーンシートを積層、圧着することにより成形体を作製し、空气中 500°C での脱バインダー後、大気雰囲気中 1250 °C, 2 h で焼結させた。作製した試料については XRD による結晶相解析、誘電特性、*P-E* ヒステリシスおよび電界誘起歪み特性、共振-反共振法（分極処理条件：20 kV/cm, 120°C, 20 min）による圧電特性の評価を行った。

### 【結果】

XRD 測定結果より、NaNbO<sub>3</sub>と BaTiO<sub>3</sub> との固溶体である (Na<sub>1-x</sub>Ba<sub>x</sub>)(Nb<sub>1-x</sub>Ti<sub>x</sub>)O<sub>3</sub> (NNBT-*x*; 0 ≤ *x* ≤ 0.15) セラミックスは、作製した全ての組成の試料においてペロブスカイト単相であることが確認された。また、Mn を 0.5 mol% ドープした各組成の試料の比誘電率の温度依存性から BaTiO<sub>3</sub>の固溶量が増加するにつれて Curie 温度が低温度側にシフトし、その相転移挙動がブロード化することもわかった。電界誘起歪み特性、共振-反共振法による圧電特性の評価を行ったところ、NNBT-0.1 (*x* = 0.1) 組成において最も良好な圧電定数の値が得られた (Fig. 1)。この組成でのキュリー温度は約 240°C であり、NNBT-0.1 は比較的高キュリー温度の圧電材料として期待できる。さらに、NNBT-0.1 において Mn のドーブ量を変化させた NNBT-0.1-*y*Mn (NNBT-0.1 量に対して、*y* = 0, 0.1, 0.2, 0.5, 1.0, 2.0 mol%) 試料を作製し、Mn ドープ効果について検討した。得られた焼結体の密度および抵抗率を測定したところ、0.5 mol% 以上の Mn ドープにより、特に電気抵抗率が改善されることがわかった。これは、ドーブ元素の Mn がその価数変化によって導電性キャリアを効果的にトラップすることができるためと考えられる。また、*P-E* ヒステリシスループ測定結果より、Mn ドープ試料では強誘電体特有の良好なループ形状を示すことがわかった。

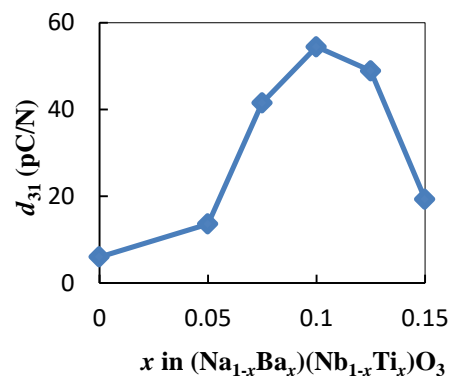


Fig. 1 Piezoelectric coefficient *d*<sub>31</sub> of 0.5 mol% Mn-doped (Na<sub>1-x</sub>Ba<sub>x</sub>)(Nb<sub>1-x</sub>Ti<sub>x</sub>)O<sub>3</sub> ceramics.

### 【参考文献】

- 1) T. Nitta, *J. Am. Ceram. Soc.*, **51**, 626-629 (1968).
- 2) J. T. Zeng *et al.*, *J. Am. Ceram. Soc.*, **89**, 2828-2832 (2006).