

課題番号 :2016B-E08  
 利用課題名 (日本語) :XAFS と PDF を併用した圧電材料  $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3$  の局所構造解析  
 Program Title (English) :Local Structure Analysis by XAFS and PDF on  $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3$  Piezoelectric Material  
 利用者名(日本語) :永田 肇<sup>1)</sup>, 村松 啓貴<sup>1)</sup>, 米田安宏<sup>2)</sup>  
 Username (English) :H. Nagata<sup>1)</sup>, H. Muramatsu<sup>1)</sup>, Y. Yoneda<sup>2)</sup>  
 所属名(日本語) :1) 東京理科大学 理工学部、2) 日本原子力研究開発機構  
 Affiliation (English) :1) Faculty of Science and Technology, 2) Japan Atomic Energy Agency.  
 キーワード: 非鉛圧電セラミックス、局所構造解析、

## 1. 概要 (Summary)

クエンチ(急冷)処理を施した( $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3$ (BNT) セラミックスの脱分極温度  $T_d$  の高温化メカニズムの探るため、SPring-8 BL14B1 において X 線回折実験および局所構造解析(PDF 解析)を行った。その結果、クエンチした BNT セラミックスの菱面晶歪が通常のものより大きくなっていることがわかった。また、局所構造においてはクエンチの効果が Bi/Na と Ti のカチオン間の相関に顕著に現れていることがわかった。すなわち、BNT の  $T_d$  高温化メカニズムにおいて、自発分極に最も effective な A-site 周辺の局所構造が室温付近における菱面晶相の安定化に寄与したものと考えられる。

## 2. 実験(目的,方法) (Experimental)

近年、環境保全に対する意識の高まりを受け、非鉛圧電材料の研究・開発が進められている。表題の ( $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3$ (BNT) やその固溶体系セラミックスは、比較的良好的な圧電性能を示すことから、その候補材料として注目されている<sup>[1, 2]</sup>。しかしながら、圧電性が消失する温度(脱分極温度  $T_d$ ) が  $100\sim 170^\circ\text{C}$  程度と低く<sup>[3]</sup>、応用上の大きな足かせとなっている。著者らはこれまでに、BNT セラミックスを  $1000^\circ\text{C}$  程度から急冷(クエンチ)して作製することにより、優れた圧電性を損なうことなく脱分極温度  $T_d$  を従来の  $T_d$  より  $50^\circ\text{C}$  程度上昇させられることを実験的に見出してきた<sup>[4]</sup>。この結果は応用上たいへん有用な結果であると考えられる。しかしながら、クエンチ過程による  $T_d$  の高温化メカニズムが现阶段で不明で、メカニズム解明に向けた取り組みが求められている。そこで本実験では、通常焼成とクエンチした BNT セラミックスを準備し、SPring-8 BL14B1 において X 線回折実験およ

び局所構造解析(2 体相関分布関数法, atomic pair-distribution function: PDF)を行い、比較検討を行った。

## 3. 結果と考察 (Results and Discussion)

X 線回折実験の結果、室温に置ける結晶構造は菱面体晶構造や単射晶構造単独では良いフィットが得られず、これら 2 相共存を仮定したところ Fig. 1 に示すような結果が得られた。通常の結晶構造解析では 2 つの構造の Bragg 反射がほぼ同じ位置に重畳するため、リートベルト解析は困難である。リートベルト解析を行った同じデータセットを用いて PDF 解析を行うことができる。通常焼結した BNT と  $1100^\circ\text{C}$  から急冷した BNT の局所構造を比較したのが Fig. 2 である。局所構造においては急冷の効果が Bi/Na と Ti のカチオン間の相関に顕著に現れて

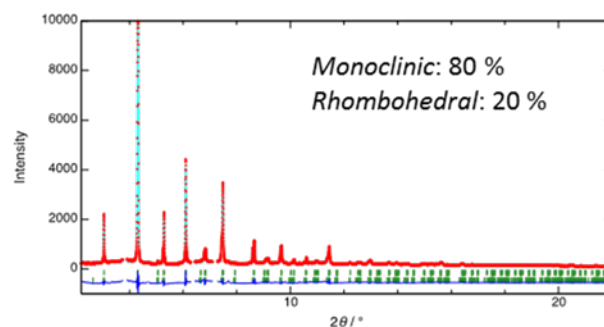


Fig. 1 X-ray diffraction profile and result of Rietveld refinement for OF-BNT

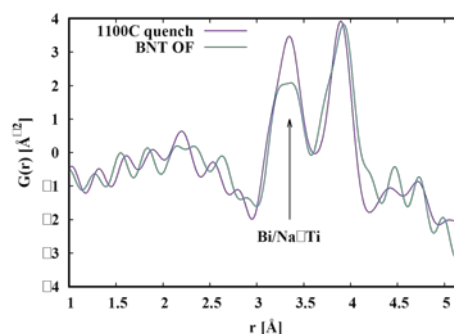


Fig. 2 Comparison of observed  $G(r)$  of OF-BNT and  $1100^\circ\text{C}$ -quenched BNT.

いることがわかる。また、これまでの実験室系で得られた XRD パターンの結果から、クエンチした BNT セラミックスの菱面晶歪が通常のものより大きくなっていることがわかっている。すなわち、室温付近における菱面晶相の安定化が、 $T_d$  の高温化に寄与したものと考えられる。 $T_d$  の高温化メカニズムにおいて、自発分極に最も effective な A-site 周辺の局所構造との関連性が明らかになった。

#### 4. その他・特記事項 (Others)

(参考文献)

- [1] H. Nagata, M. Yoshida, Y. Makiuchi and T. Takenaka, *Japanese Journal of Applied Physics.*, Vol. **42**, No. 12 (2003) pp. 7401-7403.
- [2] T. Tou, Y. Hamaguti, Y. Maida, H. Yamamori, K. Takahashi<sup>1</sup> and Y. Terashima, , *Japanese Journal of Applied Physics.*, Vol. **48**, No. 7S (2009) 07GM03.
- [3] Y. Hiruma, H. Nagata, and T. Takenaka, , *Journal of Applied Physics*, Vol. **104** (2008) 124106.
- [4] H. Muramatsu, H. Nagata and T. Takenaka, *Japanese Journal of Applied Physics.*, Vol. **55**, (2016) 10TB07.