

(Bi_{0.5}Na_{0.5})TiO₃系セラミックスの低温焼結と組成制御に及ぼす Cu系焼結助剤の添加効果

Additive Effects of Cu-based Sintering Aid on Low-Temperature Sintering and Composition Control for (Bi_{0.5}Na_{0.5})TiO₃-based Ceramics

東京理科大学, °(M2)韓 健睿, 高木 優香, ナム ヒョンウク, 永田 肇

Tokyo Univ. of Science, ° Jianrui Han, Yuka Takagi, Hyunwook Nam, Hajime Nagata

E-mail: h-nagata@rs.tus.ac.jp

現在、環境問題により、非鉛圧電セラミックスの開発が求められている。特に、比較的高い圧電特性を持つ(Bi_{0.5}Na_{0.5})TiO₃ (BNT) 圧電セラミックスは、非鉛圧電セラミックスの候補として注目されている。また、BNT系固溶体セラミックスの中でモルフォトロピック相境界(Morphotropic phase boundary, MPB)を持ち、高い圧電特性を示す 0.90(Bi_{0.5}Na_{0.5})TiO₃-0.06BaTiO₃-0.04(Bi_{0.5}Li_{0.5})TiO₃ (BNLBT4 - 6)に注目した。しかしながら、BNT系セラミックスの焼結温度が1140°Cと高く、高温焼結に伴うBiの揮発や共焼の電極材料の融解拡散という問題がある。我々はこれまで、CuOを添加することで高密度BNT/BNLBTセラミックスの焼結温度が940°Cまで低温化できることを明らかにした。一方で、焼結助剤として働くCuOは単体では作用せず、BNTの場合では、NaCu_{2.5}Ti_{4.5}O₁₂(略称NCT)を形成して融点降下し、液相として緻密化に寄与することが以前の研究で明らかになった^[1]。そこで本研究では、CuOの代わりにNCTを添加することを提案した。BNT/BNLBTセラミックスに予め作製したNCTを添加し、NCTがBNT系セラミックスの低温焼結や電氣的諸特性に及ぼす影響について研究した。同時に、NCTがBNT系セラミックスの低温焼結を促進する役割を検証した。これにより、組成のずれを防ぎつつ、低温焼結を実現することが可能となるものと期待される。

NCTを添加したBNT系セラミックス(BNT + 0~4 [wt%] NCT, (0.96-x)BNT- x BT-0.04 BLT (BNLBT 4 - 100x) + 3 [wt%] NCT)は一般的な固相反応法を用いて作製した。NCT粉末は、950°Cで12時間焼成して作製し、仮焼後BNT/BNLBT粉末に添加した。仮焼は850°C、本焼は大気中にて940°Cで2時間焼成した。

3wt%NCTをBNTに添加した場合、最高の相対密度が得られ、その結果示された圧電特性(d_{33} と T_d)はpureやCuOを添加した場合とほぼ同等である。一方、BNLBT4-6では、CuOまたはNCTを添加すると、いずれも d_{33} が上昇し、 T_d が低下するというMPB(相境界)移動に類似した現象が確認された。EDX像により、焼結助剤を添加することでBTが単独に析出・成形されることがわかった。そこで、BT成分量(100x)を変えながらNCTまたはCuOを添加した試料について、図1および図2に示す。この結果より、異なるBT比率のBNLBTにおける d_{33} と T_d を従来の無添加のデータと比較すると、単独に析出したBTがBNLBT全体のMPB組成を正方相方向へ移動させると考えられる。また、BTが単独に析出して成形されることにより圧電特性を向上した。すなわち、NCTなどの液相成分を焼結助剤として直接添加することによっても、CuOを添加した場合と同様に低温焼結を促進できる可能性が示唆される。

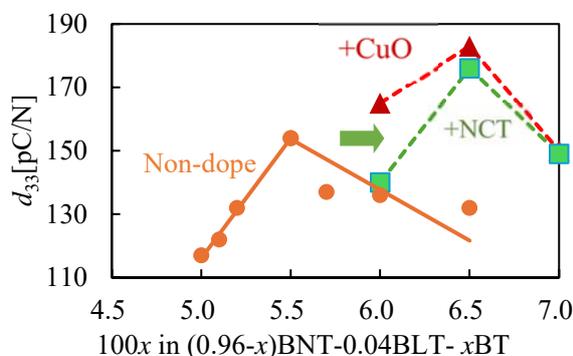


図1 BTの割合と d_{33} の関係

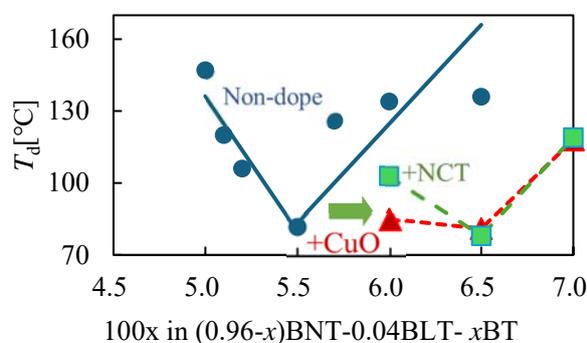


図2 BTの割合と T_d の関係

[1] K. Ojima, K. Iwasaki, S. Harada, Y. Takagi, H. Nagata, JCS-Japan.,131, 209-215 (2023)

[2] T. Kujirai, Y. Takagi, H. Nagata and T. Takenaka, ISAF 2019, Lausanne, Switzerland, pp. 1-4 (2019)