

## CO<sub>2</sub> 削減にむけた結晶配向の低磁場化と環境にやさしい圧電デバイスを目指した非鉛圧電セラミックスの研究

足利大学大学院 工学研究科 情報・生産工学専攻 土信田研究室 修士 1年

GAO YOUNENG (ガオ ヨウヌン)

【概要】 圧電セラミックスは、電気機械変換材料で、航空宇宙、自動車、医療など広く利用されている。しかし有害な鉛を主成分とする PZT が利用されており非鉛化が大きな課題である。本研究は、PZT に比べて出力密度の高いデバイスが可能な結晶配向非鉛圧電セラミックスを、CO<sub>2</sub> 削減できる永久磁石程度の低磁場で作製する技術創出を試みている。本発表は、希土類元素を非鉛圧電セラミックスに置換し磁場配向挙動を調べた。

【栃木を元気にするには】 新とちぎ産業成長戦略における「ものづくり産業躍進プロジェクト」の戦略3産業および未来3技術がある。本研究は、当該産業用のアクチュエータ、トランスデューサなどの圧電デバイスを環境にやさしい新素材である非鉛圧電セラミックス、および省エネルギーの低磁場での結晶配向技術の開発により実現することを目標としている。SDGs の取り組みにも合致し、栃木県の成長を推進する研究である。

### 1. はじめに

(Sr,Ca)<sub>2</sub>NaNb<sub>5</sub>O<sub>15</sub> (SCNN) は、図1の異方性の大きい結晶構造を有する Sr<sub>2</sub>NaNb<sub>5</sub>O<sub>15</sub> (SNN) を母相にした非鉛圧電材料である<sup>1)</sup>。その特性は、図2の通り PZT に比べて発熱し難く、より高い振動速度で駆動できる。結晶構造の微弱な磁気異方性を強磁場で引き出し、圧電特性を示す *c* 軸を結晶配向した SCNN セラミックスは、圧電特性を PZT レベルに引き上げ、駆動速度を PZT の約 6 倍に向上する<sup>2)</sup>。それを用いた超音波モータは優れた駆動特性を示し、環境にやさしいデバイスが可能であることを実証している<sup>3)</sup>。実用化には、結晶配向に高価で冷却負荷の大きい超伝導磁石による強磁場が必要で、低磁場化による CO<sub>2</sub> 削減が課題である。低磁場化には、材料の磁気異方性の制御、向上が不可欠と考え、SNN に希土類元素 (磁性: Nd, Ho, Yb, Eu<sup>2+</sup>, 非磁性: Eu<sup>3+</sup>) を置換した材料を合成し、磁場配向挙動と、その効果が見られた Eu を置換した材料の特性を調べた。

### 2. 実験方法

SNN に希土類元素を置換した粉体は、化学両論組成 Sr<sub>2-x</sub>Na<sub>1-x</sub>Ln<sub>x</sub>NbO<sub>15</sub> (Ln=Nd, Eu, Ho, Yb, x=0,0.1) で原料を秤量し、ボールミルで混合後仮焼する固相合成法により作製した。磁場配向挙動は、仮焼粉を

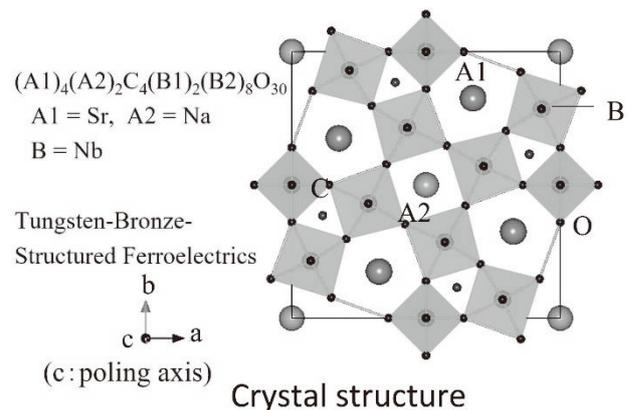


図1 結晶構造

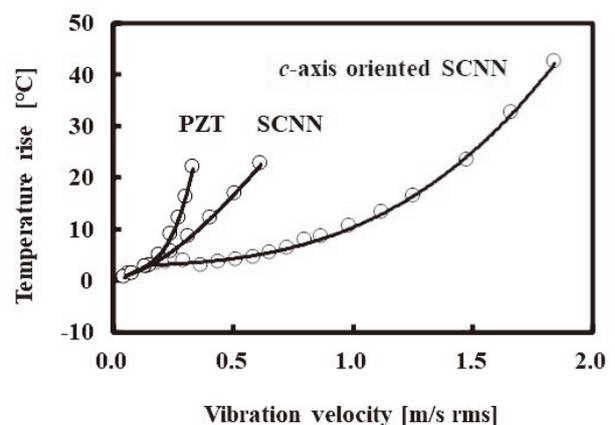


図2 結晶構造特性

水に分散したスラリーを X 線回折分析 (XRD) 用のガラスホルダに滴下し、超伝導磁石 (JASTEC JMTD-5T52M) の 5T 中に静置し乾燥した後、XRD により評

価した。その中で Eu において、 $x=0.03$  (SNNE1) および Na のみを 0.03 (SNNE2) 置換した材料を合成、成形・焼成して  $\phi 8 \times 0.5 \text{mm}$  の円板を作製し特性を同様に作製した SNN と比較した。特性は、XRD より格子定数と電極を形成し分極して圧電特性を評価した。

### 3. 結果及び考察

合成した材料は、XRD により全て単相で、希土類が固溶した。図 3 に磁場中乾燥した試料の XRD プロファイルを図 3 に磁場中乾燥した試料の XRD プロファイルを国際回折データセンタ (ICDD) の SNN ピークと比較した。SNN は、既知の通り磁場方向に (hk0) のピークが強くなり、 $a, b$  軸が配向した。SNN に Nd, Ho, Yb を固溶した試料は、同様に磁場方向に  $a, b$  軸が配向したが、その配向度合いが低下した。一方 Eu 固溶した SNN では、配向方位が  $90^\circ$  変化し、(00l) ピークが顕著に強くなり磁場方向に  $c$  軸が配向しその配向度合いが向上した。Eu は配向低磁場化、配向方向の制御に有意に作用することを示した。

SNN は、図 4 の通り Eu の固溶で、SNNE1, SNNE2 と  $c$  軸長が短くなった。これは、図 1 の A サイト元素数の減少と非磁性の  $\text{Eu}^{3+}$  による結合で  $c$  軸方向の結合が強くなり、磁場配向方向が  $c$  軸に変化したと考える。今後詳細な解析が必要である。圧電特性は、表 1 の

通り SNNE1 の  $Q_m$  が向上したが、Eu の固溶で  $k_r$  と  $d_{33}$  が顕著に減少した。SCNN など Ca 置換による圧電特性向上が課題である。

### 4. まとめと今後の課題

SNN は、Eu を固溶することで配向磁場の低減と配向方向の制御が期待できることがわかった。一方で Eu の固溶により圧電特性は顕著に減少した。磁場配向に対する Eu の固溶量との相関、配向メカニズムの解析、および Sr の Ca などの置換による圧電特性との両立など材料設計が今後の課題である。

### 5. 謝辞

配向実験は、日本大学理工学部物理学科の高野良紀特任教授より貸与いただいた超伝導磁石で行いました。ご厚意に深く感謝申し上げます。

### 参考文献

- 1) R. R. Neurgaonkar, J. R. Oliver, W. K. Cory, L. E. Cross, and D. Viehland, *Ferroelectrics* 160, 265 (1994).
- 2) Y. Doshida, H. Shimizu, Y. Mizuno, and H. Tamura, *Jpn. J. Appl. Phys.* 52, 07HE01 (2013).
- 3) Y. Doshida, H. Tamura, and S. Tanaka, *Jpn. J. Appl. Phys.* 58, SGG07 (2019).

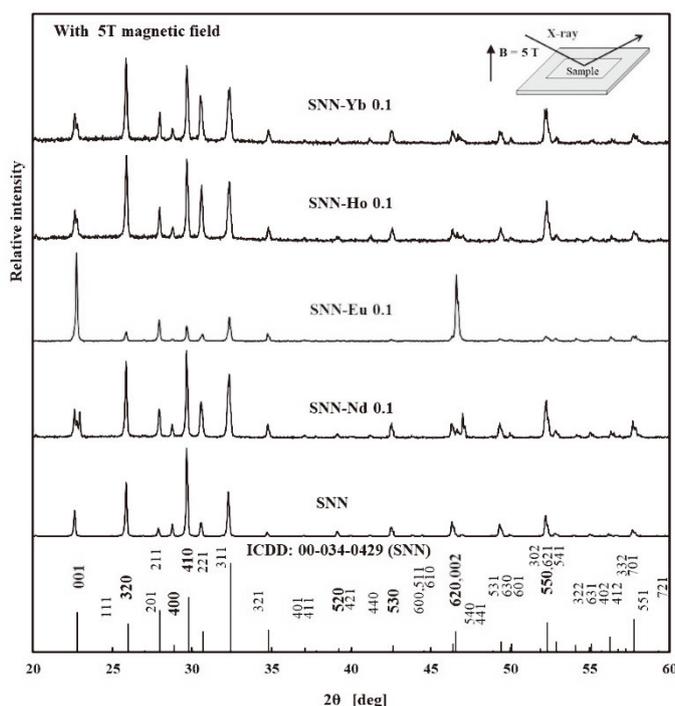


図 3 磁場配向試料の XRD プロファイル

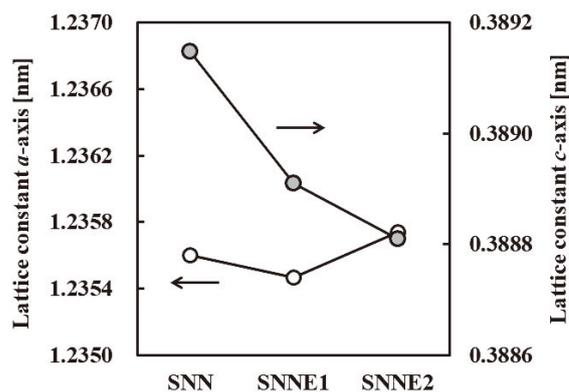


図 4 Eu 固溶による格子定数の変化

表 1 圧電特性

	SNN	SNNE1	SNNE2
Electromechanical coupling coefficient $k_r$	8.0%	1.8%	1.3%
Mechanical quality factor $Q_m$	1240	1755	858
Piezoelectric constant $d_{33}$ (pC/N)	72	23	13