

令和 5 年 6 月 20 日現在

機関番号：32660

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2020～2022

課題番号：20K04564

研究課題名(和文)環境にやさしいチタン酸ビスマスナトリウム系非鉛圧電セラミックスの相転移温度制御

研究課題名(英文) Control of Phase Transition Temperature on Environmental Friendly Lead-free Piezoelectric Ceramics based on Bismuth Sodium Titanate

研究代表者

永田 肇 (Nagata, Hajime)

東京理科大学・理工学部電気電子情報工学科・教授

研究者番号：70339117

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：チタン酸ビスマスナトリウム(BNT)系セラミックスは、比較的良好な圧電特性を示すことから環境にやさしい非鉛圧電材料の候補材料として注目されている。しかしながら、圧電性が消失する脱分極温度 $T_d$ が100～200程度と低く、応用上の大きな足かせとなっている。我々は、BNT系セラミックスを焼成後に1000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従来の $T_d$ より50～80程度上昇させられることを実験的に見出した。また、そのメカニズムとして、クエンチ処理による結晶相(菱面晶)の構造歪みが増加することやドメインサイズの増大と強く関連していることを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究成果で提案するクエンチ処理は、BNT系セラミックスの $T_d$ 高温化に寄与するだけでなく、ハイパワー圧電特性(超音波性能)を維持する結果を示した。すなわち、本成果はBNT系セラミックスを環境にやさしい非鉛圧電材料として、超音波応用デバイスへの実用化していく点において、大きく前進させたものと考えられる。また、構造歪みの増大やドメインサイズの増大はビスマス系ペロブスカイト型強誘電体セラミックスの相転移制御において新たな学術的コンセプトを与えたものと考えられる。

研究成果の概要(英文)：Bismuth sodium titanate [(Bi<sub>1/2</sub>Na<sub>1/2</sub>)TiO<sub>3</sub>, BNT]-based ceramics is attracting attention as a candidate material for environment-friendly lead-free piezoelectric materials because it exhibits relatively good piezoelectric properties. However, the depolarization temperature  $T_d$  at which the piezoelectricity disappears is as low as about 100 to 200°C. This is one of the major concerns for the practical piezoelectric applications of BNT-based ceramics. We have experimentally found that  $T_d$  could be increased about 50 to 80°C by quenching treatment from 1000°C after sintering without deteriorating the excellent piezoelectricity. In addition, it was clarified that the mechanism is strongly related to the increase in rhombohedral distortion of crystal structure and the increase in the domain size.

研究分野：電子機能性材料

キーワード：非鉛圧電セラミックス チタン酸ビスマスナトリウム 脱分極温度 急冷処理

### 1. 研究開始当初の背景

現在、実用化されている圧電セラミックスの大部分は  $\text{PbTiO}_3\text{-PbZrO}_3$  (PZT)を含む多成分系で、多量)を含んでいる<sup>[1,2]</sup>。環境負荷低減の観点から非鉛圧電材料の研究・開発は必要であると考えられ、これまでに様々な非鉛圧電セラミックスの材料開発が行われている。標題のビスマス系ペロブスカイト型強誘電体の1つであるチタン酸ビスマスナトリウム [( $\text{Bi}_{1/2}\text{Na}_{1/2}$ ) $\text{TiO}_3$ , BNT]セラミックスは、その候補材料として注目されている<sup>[3]</sup>。BNTを主体として、 $\text{BaTiO}_3$ (BT)や( $\text{Bi}_{1/2}\text{K}_{1/2}$ ) $\text{TiO}_3$ (BKT)を固溶したBNT系固溶体セラミックスは、モルフォトロピック相境界(MPB)付近において比較的大きな圧電性を有することが報告され<sup>[4-7]</sup>、さらに、機械的品質係数 $Q_m$ が大振幅圧電駆動の際(超音波駆動時)に安定であることから、超音波デバイスなどの圧電ハイパワー応用への展開が期待されている<sup>[8-10]</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 $100\sim 200^\circ\text{C}$ 程度とPZT系材料に比べて低く<sup>[11]</sup>、応用上の大きな足かせとなっている。これまでの様々な研究においても、BNT系セラミックスの $T_d$ 高温化について取り組まれてきたものの、圧電性と $T_d$ がトレードオフの関係になってしまうことから、優れた圧電性を維持しつつ高い $T_d$ を持つBNT系セラミックスの開発は極めて困難な状況で、本材料系の長年の課題であった。

我々はこれまでに、BNT系セラミックスを焼成後に $1000^\circ\text{C}$ 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(電気機械結合係数 $k$ )を損なうことなく脱分極温度 $T_d$ を従来の $T_d$ より $50\sim 80^\circ\text{C}$ 程度上昇させられることを実験的に見出した<sup>[12-14]</sup>。図1はBNTセラミックスの電気機械結合係数 $k_{33}$ の温度依存性である。クエンチ処理して作製したBNTの脱分極温度 $T_d$ (圧電性の消失する温度)が普通焼成試料に比べて $50^\circ\text{C}$ 程度上昇していることがわかる。また、室温付近の $k_{33}$ 値は両者に違いが見られないことから、圧電性と $T_d$ のトレードオフを凌駕する手法であることがわかる。一方、研究開始当時の段階で、クエンチ処理による $T_d$ 高温化のメカニズムが明らかになっておらず、メカニズム解明が求められていた。また、ハイパワー圧電特性全般に及ぼすクエンチ処理の影響も明になっていなかった。

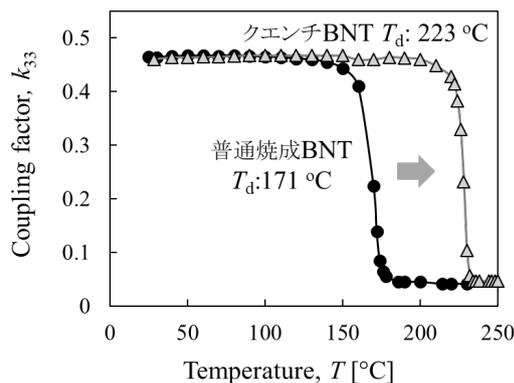


図1 BNTセラミックスの電気機械結合係数 $k_{33}$ の温度依存性<sup>[12]</sup>

### 2. 研究の目的

クエンチ処理による $T_d$ 高温化メカニズムの解明にあたっては、クエンチ処置によってどのような結晶構造状態(原子位置)や電子状態、微細構造(ドメイン構造)状態が安定化されるのかについて、様々な角度から分析を進めることによって明らかにする。また、ハイパワー圧電特性評価にあたっては、急冷スピードをコントロールしたBNT系固溶体セラミックスを作製し、系統的にハイパワー圧電特性を明らかにするとともに、クエンチ処理がハイパワー圧電特性に及ぼす影響について明らかにする。以上の取り組みを通じて、高い $T_d$ を持ち比較的大きな圧電性を保持したBNT系固溶体セラミックスの作製を目指す。BNT系非鉛圧電セラミックスにおいて、高 $T_d$ と優れた圧電性の両立は応用上たいへん重要であると考えられるので、本研究の成果は、非鉛圧電材料の応用実用化の観点で、重要な役割を果たすものと期待される。

### 3. 研究の方法

メカニズム解明にあたっては、主にBNT単体セラミックスを対象として、クエンチ処理を施した試料と、従来の降温プロセスで作製した試料について、電氣的諸特性評価や微細構造観察(SEM, TEM)、SIMSによる酸素欠陥評価、放射光X線回折測定による結晶構造解析等を行った。

クエンチ処理したハイパワー圧電特性の評価にあたっては、BNT系固溶体である $0.90(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})\text{TiO}_3\text{-}0.04(\text{Bi}_{0.5}\text{Li}_{0.5})\text{TiO}_3\text{-}0.06\text{BaTiO}_3 + \text{MnCO}_3$  0.1 wt% [BNLBT4-6+Mn0.1]セラミックスを対象に、一般的な固相反応法により作製した。焼成は、成型された試料を $1140^\circ\text{C}$ で2時間本焼した(図2)。冷却スピードは式(1)で求めた。 $t_q$ は $1100^\circ\text{C}$ から $800^\circ\text{C}$ に降温時にかかった時間を表している。普通焼成は $\text{QR} = 0.05^\circ\text{C/s}$ 、従来の急冷は $\text{QR} = 15^\circ\text{C/s}$ 、本研究では $\text{QR} = 3.85^\circ\text{C/s}$ で行った。得られたセラミックスについて構造を解析した。また、Agペーストを焼き付け電極を作製し、分極処理は、試料を(31)モード形状に切り出し、シリコンオイル中

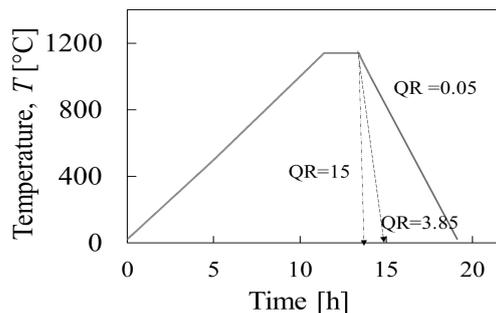


図2 BNT系セラミックスの焼成プログラム

$$\text{Quenching rate}(\text{QR}) = \frac{1100-800}{t_q} \quad (1)$$

で 5 kV/mm の電界を 5 min 印加して行った。圧電特性の測定はインピーダンスアナライザー (HP4294A) を用いて共振・反共振法で行った。振動速度はドップラー振動計によって測定した。

#### 4. 研究成果

##### (1) BNT 単体セラミックスにおけるメカニズム解明の取り組み

BNT のクエンチ過程による  $T_d$  の高温化メカニズム解明の手掛かりを得るために、クエンチ処理した試料としていない試料について、X 線回折測定により構造解析を行ったところ、両試料ともに菱面晶(R3c)単相構造を示すことがわかった。両試料の格子定数を調べたところ、菱面晶構造の格子長に変化は見られなかったものの、クエンチ処理により菱面晶歪( $90^\circ-\alpha$ )が顕著に増大することがわかった。さらに、クエンチ処理の開始温度を 800~1100°C で変化させたところ、クエンチ開始温度を上昇させるとともに  $T_d$  が上昇し、( $90^\circ-\alpha$ )も同時に増加する傾向を示した。図 3 は、クエンチ処理した BNT セラミックスの脱分極温度  $T_d$  と菱面晶歪み( $90^\circ-\alpha$ )の関係で、( $90^\circ-\alpha$ )の増加に伴って  $T_d$  が上昇する傾向が見られ、両者に強い相関があることがわかる。これまでの BNT 系材料に関する  $T_d$  の研究から、 $T_d$  近傍の温度領域では菱面晶(R3c)相を持つ強誘電体ドメイン構造中に擬正方晶  $P4bm$  相を持つ他相マトリックスが形成されることにより脱分極 (相転移) することが報告されている<sup>[15]</sup>。すなわち、菱面晶相の不安定化が  $T_d$  に対応していることから、菱面晶歪の増大 (すなわち菱面晶相の安定化) が  $T_d$  上昇に影響を及ぼすという結果は一定の理解が得られるものと考えられる。

さらに、大型放射光施設(SPring-8)での放射光 X 線回折測定と精密結晶構造解析(リートベルト解析)を通じて、クエンチ処理した菱面晶 BNT の各元素の平均構造位置を見積もったところ、クエンチの有無によって Bi イオンの平均構造位置に顕著な変化が見られた。具体的には、クエンチ処理により Bi イオンが<111>に変位している様子が観察された。すなわち、クエンチによって、Bi イオンがペロブスカイト構造における本来の A サイトのセンター位置から<111>方向に変位 (オフセンター化) することにより菱面晶歪を増大 (菱面晶相が安定化) させたものと推察される。他グループの研究結果において<sup>[16]</sup>、BNT の高温領域(1000K)でも Bi のオフセンターが報告されており、クエンチ処理による Bi オフセンターはあたかも高温領域での Bi オフセンターが凍結したかのように見える。さらに、Bi の原子変位パラメータを見積もったところ、クエンチ処理によって普通焼成に比べて小さくなる傾向がみられた。すなわち、クエンチ処理によって Bi イオンはよりオフセンター変位するものの、原子位置のオーダー性は向上する傾向を示した。急冷処理によって結晶構造がオーダーする結果は、一見して一般的な物理イメージに反するが、電氣的諸特性評価からもクエンチ処理による相転移の急峻性が確認されていることから、解析結果としては正しいものと考えている。

クエンチによる物理現象をさらに明らかにするために TEM による微細構造観察を行った。図 4 は、QR=(a) 0.05 °C/s および(b) 15.0°C/s のときの未分極 BNT セラミックスの -110 方向から観察した TEM 像 および制限視野電子回折 (SAED) 像である。OF-BNT では、図 4(a) に示すように、109° を成す 20 nm のストライプ状のドメイン構造が観察された。これは、BNT セラミックスの典型的なドメイン構造である<sup>[15,16]</sup>。一方、図 4(b) は急冷した BNT のドメイン構造であり、109° を成す 40 nm のストライプが形成された。よって、急冷した BNT セラミックスのドメインサイズは OF-BNT セラミックスよりも 2 倍程度増大した。ドメインサイズの増大は、つまり、ドメイン密度の減少を示す。OF-BNT

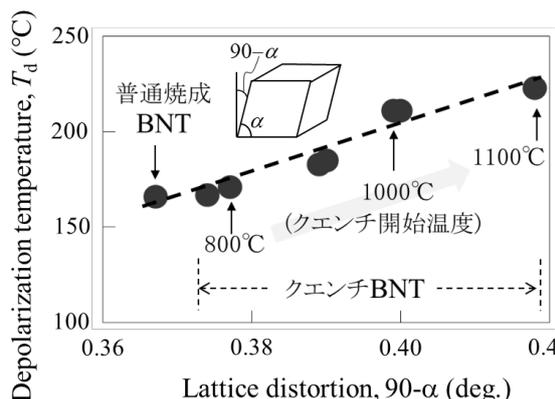


図 3 クエンチ処理した BNT セラミックスの脱分極温度と菱面晶歪みの関係

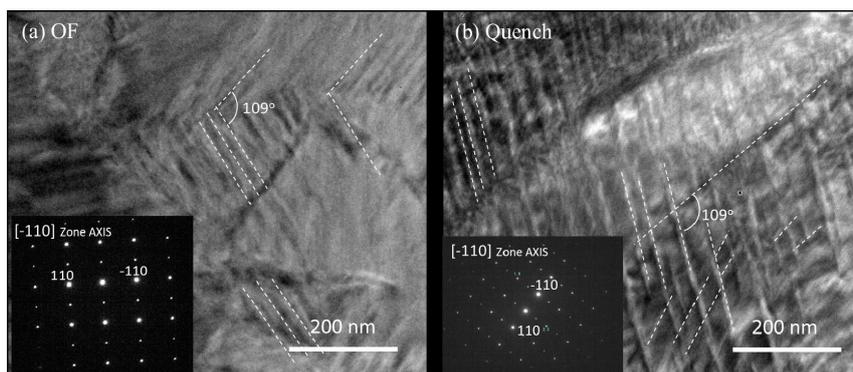


図 4 QR = (a) 0.05 °C/s および(b) 15.0°C/s のときの未分極 BNT セラミックスの -110 方向から観察した TEM 像 および制限視野電子回折 (SAED) 像

の場合、ドメイン密度が大きくドメインウォール付近の構造ゆらぎが支配的であり BNT が本来もつ格子歪みが緩和されることが示唆される。一方、急冷した BNT では、ドメイン密度が小さく、ドメインの幅が増大するため、その構造揺らぎが支配的でなくなり格子歪みが顕著に現れ、オーダー性の増加や  $90\text{-}\alpha$  の増大として観測されたと考えられる。

以上の結果や考察より、BNT 系セラミックスの  $T_d$  は微細なドメインサイズに大きく依存していることがわかってきた。通常の徐冷プロセスで作製した BNT セラミックスは 10 nm 程度の微細なドメインが導入されており、この微細なドメイン構造が BNT の R3c と P4bm 相の共存領域を低温化させ、 $T_d$  の低温化に関与していると考えられる。さらに、クエンチ処理によってドメインサイズが増大することによって R3c 相の安定化と  $T_d$  の高温化が実現できたものと考えられる。なお、现阶段で、クエンチ処理によってなぜドメインサイズが増大するのかといったメカニズムについては不明で、今後の課題である。

## (2) BNT 系固溶体セラミックスにおけるハイパワー圧電特性評価

作製した BNLBT4-6+Mn0.1 セラミックスは X 線回折によってペロブスカイト単一相を観測し、相対密度 97% を示した。また、急冷により  $T_d$  が 119°C から 159°C へ約 40 °C 上昇した。表 1 に普通焼成 (OF, QR=0.05) 及び急冷処理 (QR=3.85) のサンプルにおける圧電温度特性を示した。電気機械結合係数  $k_{31}$  は急冷しても大きく変わらなかった。この結果はこれまで得られている過去の報告と一致した<sup>12-14)</sup>。さらに急冷処理により比誘電率  $\epsilon_{33}^T/\epsilon_0$  が低下し、それに伴い圧電定数  $d_{31}$  も若干低下した。一方で弾性コンプライアンス  $s_{11}^E$  [pm<sup>2</sup>/N] が減少し試料が硬化したことが分かった。また、 $s_{11}^E$  の減少 (材料の硬化) に伴って、 $Q_m$  は増加した。すなわち、機械的な損失が低下した。これらの結果は、急冷によって圧電セラミックスのハード化が進んだことを示している。強誘電体セラミックスのハード化には非 180° ドメインのドメインウォール移動や揺動が強く寄与していることが知られており、ドメインウォールの移動や揺動が少ないほどハード化するものと考えられている。すなわち、クエンチ処理は非 180° ドメインウォール移動や揺動を抑制させる働きがあるものと推察される。この理由は上述したドメインサイズが増大と強く相関があるものと考えられる。すなわち、クエンチ処理によってドメイン密度が低下したことによりハード化したものと考えられる。

小振幅圧電特性の測定結果より、超音波ハイパワー圧電特性で重要となる  $d \times Q_m$  を見積もったところ、急冷処理により増加傾向であることが分かった。これは、急冷によって圧電セラミックスのハード化が進んだことに起因すると考えられる。振動速度  $v_{0-p}$  は、 $d \times Q_m$  に比例することが知られているので、急冷処理によって振動速度も増加する可能性を示唆している。図 5(a),(b) に、普通焼成 (OF, QR=0.05) 及び急冷処理 (QR=3.85) のサンプルにおけるハイパワー圧電特性、特に振動速度を示した。図 5(a) より、大きな駆動電界を印加した場合、最大  $v_{0-p}$  は普通焼成では 1.56 m/s、急冷処理では 1.50 m/s であった。さらに、図 5(b) より立ち上がりの傾き  $v_{0-p}/E_{0-p}$  は普通焼成では 0.025 m<sup>2</sup>/V・s、急冷処理では 0.027 m<sup>2</sup>/V・s であった。以上の結果より、急冷処理によるハイパワー圧電特性の大きな変化はないことが明らかとなった。したがって、冷却スピードをコントロールして BNLBT 系セラミックスを作製することにより、優れたハイパワー圧電特性の維持と  $T_d$  の高温化を両立した。

以上の取り組みを通じて、高い  $T_d$  を持ち比較的大きな圧電性を保持した BNT 系固溶体セラミックスの作製を実現することができた。

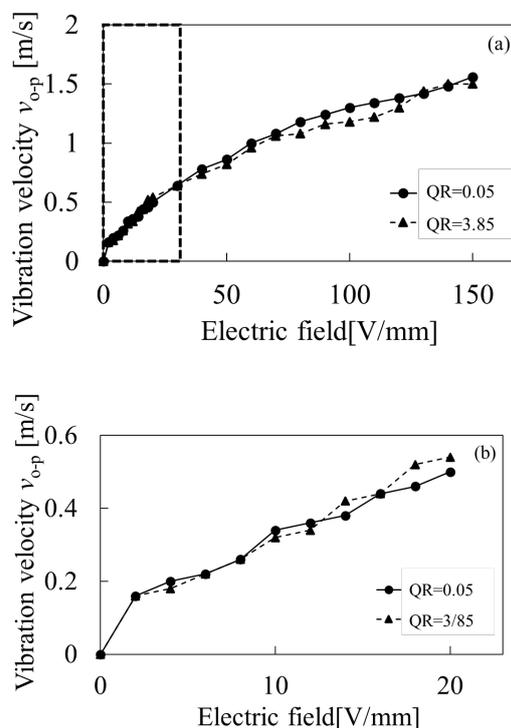


図 5 普通焼成 (OF, QR=0.05) 及び急冷処理 (QR=3.85) した BNLBT4-6+Mn0.1 セラミックスの印加電界に対する振動速度、(a) 広電界領域 (b) 低電界領域

表 1 普通焼成 (OF) または急冷 (Quench) した BNLBT4-6+Mn0.1 セラミックスの小振幅圧電特性

|        | $k_{31}$ | $d_{31}$ [pC/N] | $Q_m$ | $\epsilon_{33}^T/\epsilon_0$ | $s_{11}^E$ [pm <sup>2</sup> /N] | $\theta_{max}$ [deg] | $d^*Q$ [pC/N] |
|--------|----------|-----------------|-------|------------------------------|---------------------------------|----------------------|---------------|
| OF     | 0.227    | 45.3            | 210   | 517                          | 8.67                            | 67.5                 | 9524          |
| Quench | 0.225    | 42              | 250   | 472                          | 8.34                            | 67.7                 | 10513         |

参考文献

- [1] E. Sawaguchi, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **8**, (1953) 615.
- [2] T. Yamamoto, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **35**, (1996) 5104.
- [3] H. Nagata, T. Shinya, Y. Hiruma, T. Takenaka, et. al., *Ceram. Trans.*, **167**, (2005) 213.
- [4] T. Takenaka, K. Maruyama, and K. Sakata, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **30**, (1991) 2236.
- [5] Y. Hiruma, H. Nagata, and T. Takenaka, *J. Appl. Phys.*, **105**, (2009) 084112.
- [6] A. Sasaki, T. Chiba, Y. Mamiya, and E. Otsuki, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **38**, (1999) 5564.
- [7] H. Nagata, M. Yoshida, Y. Makiuchi and T. Takenaka, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **42**, (2003) 7401.
- [8] T. Tou, Y. Hamaguti, Y. Maida, H. Yamamori and Y. Terashima, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **48**, (2009) 07GM03.
- [9] S. Someno, H. Nagata, and T. Takenaka, *J. Ceram. Soc. Jpn.*, **122**, (2014) 406.
- [10] Y. Hiruma, T. Watanabe, H. Nagata and T. Takenaka, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **47**, (2008) 7659.
- [11] Y. Hiruma, H. Nagata, and T. Takenaka, *J. Appl. Phys.*, **104**, (2008) 124106.
- [12] H. Muramatsu, H. Nagata and T. Takenaka, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **55**, (2016) 10TB07.
- [13] T. Miura, H. Nagata and T. Takenaka, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **56**, (2017) 10PD05.
- [14] Y. Takagi, T. Miura, H. Nagata and T. Takenaka, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **58**, (2019) SLLD02.
- [15] V. Dorcet, G. Trolliard and P. Boullay, *Chem. Mater.*, **20**, (2008) 5061.
- [16] C. Moriyoshi, S. Takeda, Y. Kuroiwa, and M. Goto, *Jpn. J. Appl. Phys.* **53**, (2014) 09PD02.
- [17] C. Ma and X. Tan, *J. Am. Ceram. Soc.*, **94**, (2011) 4040.

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計10件（うち査読付論文 10件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 3件）

|   |                               |
|---|-------------------------------|
| 1. 著者名<br>Takeru Tayama, Yuka Takagi, and Hajime Nagata   | 4. 巻<br>132                   |
| 2. 論文標題<br>High-power piezoelectric properties of quenched (Bi <sub>0.5</sub> Na <sub>0.5</sub> )TiO <sub>3</sub> -based solid-solution ceramics            | 5. 発行年<br>2022年               |
| 3. 雑誌名<br>Journal of Applied Physics  | 6. 最初と最後の頁<br>64101           |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1063/5.0094400   | 査読の有無<br>有                    |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難  | 国際共著<br>-                     |
| 1. 著者名<br>Yuka Takagi, Yuta Ochiai, Mihiro Ito, Takumi Kawagoe, Hajime Nagata, and Isao Sakaguchi   | 4. 巻<br>61                    |
| 2. 論文標題<br>Oxygen tracer diffusion analysis and observation of domain structure in quenched (Bi <sub>0.5</sub> Na <sub>0.5</sub> )TiO <sub>3</sub> ceramics | 5. 発行年<br>2022年               |
| 3. 雑誌名<br>Japanese Journal of Applied Physics   | 6. 最初と最後の頁<br>SN1034-1-7      |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.35848/1347-4065/ac8d9e   | 査読の有無<br>有                    |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難  | 国際共著<br>-                     |
| 1. 著者名<br>Takagi Yuka, Ochiai Yuta, Ito Mihiro, Kawagoe Takumi, Nagata Hajime, Sakaguchi Isao   | 4. 巻<br>61                    |
| 2. 論文標題<br>Oxygen tracer diffusion analysis and observation of domain structure in quenched (Bi <sub>0.5</sub> Na <sub>0.5</sub> )TiO <sub>3</sub> ceramics | 5. 発行年<br>2022年               |
| 3. 雑誌名<br>Japanese Journal of Applied Physics   | 6. 最初と最後の頁<br>SN1034 ~ SN1034 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.35848/1347-4065/ac8d9e   | 査読の有無<br>有                    |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスとしている (また、その予定である)  | 国際共著<br>-                     |
| 1. 著者名<br>Tayama Takeru, Takagi Yuka, Nagata Hajime   | 4. 巻<br>132                   |
| 2. 論文標題<br>High-power piezoelectric properties of quenched (Bi <sub>0.5</sub> Na <sub>0.5</sub> )TiO <sub>3</sub> -based solid-solution ceramics            | 5. 発行年<br>2022年               |
| 3. 雑誌名<br>Journal of Applied Physics  | 6. 最初と最後の頁<br>064101 ~ 064101 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1063/5.0094400   | 査読の有無<br>有                    |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスとしている (また、その予定である)  | 国際共著<br>-                     |

|  |                       |
|--|-----------------------|
| 1. 著者名<br>Yuka TAKAGI, Kohtaro EGUCHI, Hajime NAGATA, Isao SAKAGUCHI and Tadashi TAKENAKA  | 4. 巻<br>129           |
| 2. 論文標題<br>Quenching effects on depolarization temperature and 180 tracer diffusion in (Bi0.5Na0.5)TiO3 ceramics with acceptor and donor additives | 5. 発行年<br>2021年       |
| 3. 雑誌名<br>Journal of the Ceramic Society of Japan  | 6. 最初と最後の頁<br>383-389 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>なし   | 査読の有無<br>有            |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難   | 国際共著<br>-             |

|  |                           |
|--|---------------------------|
| 1. 著者名<br>Yuka Takagi, Yuta Ochiai, and Hajime Nagata  | 4. 巻<br>60                |
| 2. 論文標題<br>Temperature dependence of dielectric properties and phase transition behavior in quenched (Bi0.5Na0.5)TiO3 ceramics | 5. 発行年<br>2021年           |
| 3. 雑誌名<br>Japanese Journal of Applied Physics  | 6. 最初と最後の頁<br>SFFD02- 1-8 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.35848/1347-4065/ac1c40  | 査読の有無<br>有                |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難   | 国際共著<br>-                 |

|  |                 |
|--|-----------------|
| 1. 著者名<br>S. Harada, Y. Takagi, H. Nagata, T. Takenaka   | 4. 巻<br>36      |
| 2. 論文標題<br>Quenching effects on electrical properties of Cu-doped (Bi1/2Na1/2)TiO3-based solid solution ceramics | 5. 発行年<br>2020年 |
| 3. 雑誌名<br>Journal of Materials Research  | 6. 最初と最後の頁<br>0 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1557/s43578-020-00048-7   | 査読の有無<br>有      |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難   | 国際共著<br>-       |

|   |                      |
|---|----------------------|
| 1. 著者名<br>K. Eguchi, Y. Takagi, H. Nagata, T. Takenaka  | 4. 巻<br>59           |
| 2. 論文標題<br>The quenching effects for depolarization temperature of (Bi0.5Na0.5)TiO3ceramics with Mn dopants | 5. 発行年<br>2020年      |
| 3. 雑誌名<br>Japanese Journal of Applied Physics   | 6. 最初と最後の頁<br>SPPD03 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.35848/1347-4065/aba9b5   | 査読の有無<br>有           |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難  | 国際共著<br>-            |

|   |                     |
|---|---------------------|
| 1. 著者名<br>H. Nagata, Y. Takagi, T. Takenaka   | 4. 巻<br>13          |
| 2. 論文標題<br>Correlation between depolarization temperature and lattice distortion in quenched (Bi <sub>1/2</sub> Na <sub>1/2</sub> )TiO <sub>3</sub> -based ceramics | 5. 発行年<br>2020年     |
| 3. 雑誌名<br>Applied Physics Express   | 6. 最初と最後の頁<br>61002 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.35848/1882-0786/ab8c1d   | 査読の有無<br>有          |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスとしている(また、その予定である)   | 国際共著<br>-           |

|   |                       |
|---|-----------------------|
| 1. 著者名<br>Y. Takagi, H. Nagata, T. Takenaka   | 4. 巻<br>8             |
| 2. 論文標題<br>Effects of quenching on bending strength and piezoelectric properties of (Bi <sub>0.5</sub> Na <sub>0.5</sub> )TiO <sub>3</sub> ceramics | 5. 発行年<br>2020年       |
| 3. 雑誌名<br>Journal of Asian Ceramic Societies,   | 6. 最初と最後の頁<br>277-283 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1080/21870764.2020.1732020   | 査読の有無<br>有            |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難  | 国際共著<br>-             |

[学会発表] 計18件(うち招待講演 6件/うち国際学会 8件)

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>高木 優香, 落合 勇太, 永田 肇  |
| 2. 発表標題<br>急冷した (Bi <sub>0.5</sub> Na <sub>0.5</sub> )TiO <sub>3</sub> 系セラミックスの酸素拡散とドメイン構造観察 |
| 3. 学会等名<br>圧電材料・デバイスシンポジウム2023   |
| 4. 発表年<br>2023年  |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>落合 勇太, 高木 優香, 永田 肇  |
| 2. 発表標題<br>(Bi <sub>0.5</sub> ,Na <sub>0.5</sub> )TiO <sub>3</sub> セラミックスの構造相転移に及ぼす急冷効果と分極処理効果 |
| 3. 学会等名<br>第61回セラミックス基礎科学討論会   |
| 4. 発表年<br>2023年  |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>Takeru Tayama, Yuka Takagi, and Hajime Nagata   |
| 2. 発表標題<br>Hardening and Softening Behavior on High-power Piezoelectric Properties of Quenched (Bi <sub>0.5</sub> Na <sub>0.5</sub> )TiO <sub>3</sub> -based Solid Solution Ceramics |
| 3. 学会等名<br>15th International Symposium on Ferroic Domains & Micro- to Nano-scopic Structures (ISFD-15) (国際学会)   |
| 4. 発表年<br>2022年  |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>Yuka Takagi, Hajime Nagata, Isao Sakaguchi   |
| 2. 発表標題<br>Quenching Effects on Depolarization Temperature and 180 Tracer Diffusion in (Bi <sub>0.5</sub> Na <sub>0.5</sub> )TiO <sub>3</sub> Ceramics with Additives |
| 3. 学会等名<br>International Symposium on Applications of Ferroelectrics (ISAF) (国際学会)  |
| 4. 発表年<br>2022年   |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>高木 優香 , 落合 勇太 , 永田 肇  |
| 2. 発表標題<br>急冷した (Bi <sub>0.5</sub> Na <sub>0.5</sub> )TiO <sub>3</sub> 系セラミックスの酸素拡散とドメイン構造観察 |
| 3. 学会等名<br>圧電材料・デバイスシンポジウム2023   |
| 4. 発表年<br>2023年  |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>(Bi <sub>0.5</sub> ,Na <sub>0.5</sub> )TiO <sub>3</sub> セラミックスの構造相転移に及ぼす急冷効果と分極処理効果 |
| 2. 発表標題<br>落合 勇太, 高木 優香, 永田 肇  |
| 3. 学会等名<br>日本セラミックス協会 第61回セラミックス基礎科学討論会  |
| 4. 発表年<br>2022年  |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>岡田海人、高木優香、永田 肇                                       |
| 2. 発表標題<br>ZnOを複合化した(Bi0.5Na0.5)TiO3セラミックスの脱分極温度に及ぼす分極固定効果と急冷効果 |
| 3. 学会等名<br>日本セラミックス協会 第42回電子材料研究討論会                             |
| 4. 発表年<br>2022年   |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>Takeru Tayama, Yuka Takagi, and Hajime Nagata  |
| 2. 発表標題<br>Hardening and Softening Behavior on High-power Piezoelectric Properties of Quenched (Bi0.5Na0.5)TiO3-based Solid Solution Ceramics |
| 3. 学会等名<br>15th International Symposium on Ferroic Domains & Micro- to Nano-scopic Structures (ISFD-15) (国際学会)                                |
| 4. 発表年<br>2022年   |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>Hajime Nagata, and Yuka Takagi  |
| 2. 発表標題<br>Development of (Bi0.5Na0.5)TiO3-based Lead-free Piezoelectric Ceramics by Quenching Treatment for Ultrasonic Applications |
| 3. 学会等名<br>2022 US-Japan Seminar on Dielectric and Piezoelectric Ceramics (招待講演) (国際学会)  |
| 4. 発表年<br>2022年  |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>Hajime Nagata, Yuka Takagi, Tadashi Takenaka   |
| 2. 発表標題<br>Piezoelectric Properties and Depolarization Temperature on Quenched (Bi1/2Na1/2)TiO3-Based Solid Solution Ceramics |
| 3. 学会等名<br>International Symposium on Applications of Ferroelectrics (ISAF) 2021 (招待講演) (国際学会)                                |
| 4. 発表年<br>2021年   |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>栗原慧聖、高木優香、永田肇                           |
| 2. 発表標題<br>(Bi1/2Na1/2)TiO3系固溶体圧電セラミックスの脱分極温度と経時変化 |
| 3. 学会等名<br>日本セラミックス協会 第41回電子材料研究討論会                |
| 4. 発表年<br>2021年                                    |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>Yuka Takagi, Hajime Nagata   |
| 2. 発表標題<br>Quenching Effects for Depolarization Temperature and Phase Transition Behavior on (Bi0.5Na0.5)TiO3-based Ceramics  |
| 3. 学会等名<br>The Joint International Conference on Applied Physics and Materials Applications & Applied Magnetism and Ferroelectrics (ICAPMA-JMAG-2021) (招待講演) (国際学会) |
| 4. 発表年<br>2021年   |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>川越 拓海、高木 優香、永田 肇   |
| 2. 発表標題<br>(Bi0.5Na0.5)TiO3セラミックスにおける誘電特性と相転移挙動の温度依存性に及ぼす添加剤及び急冷の効果 |
| 3. 学会等名<br>第69回応用物理学会 春季学術講演会                                       |
| 4. 発表年<br>2021年   |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>永田 肇   |
| 2. 発表標題<br>超音波デバイス応用に向けた(Bi0.5Na0.5)TiO3系非鉛系圧電セラミックスの開発研究 |
| 3. 学会等名<br>日本セラミックス協会 2022年 年会 (招待講演)                     |
| 4. 発表年<br>2022年   |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>高木 優香, 江口 浩太郎, 永田 肇, 竹中 正                   |
| 2. 発表標題<br>急冷した(Bi0.5Na0.5)TiO3系セラミックスにおける 脱分極温度と添加物効果 |
| 3. 学会等名<br>第37回強誘電体応用会議                                |
| 4. 発表年<br>2020年  |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>Hajime NAGATA   |
| 2. 発表標題<br>Control of piezoelectric properties and phase transition temperature for realization of lead-free ultrasonic devices by using (Bi1/2Na1/2)TiO3-based ceramics |
| 3. 学会等名<br>The 5th International Conference on Smart Materials and Nonotechnology (招待講演) (国際学会)  |
| 4. 発表年<br>2020年  |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>高木 優香, 江口 浩太郎, 永田 肇, 坂口 勲, 竹中 正                            |
| 2. 発表標題<br>アクセプタおよびドナーを添加した(Bi0.5Na0.5)TiO3系セラミックスにおける 脱分極温度に対する急冷の効果 |
| 3. 学会等名<br>日本セラミックス協会電子材料部会   |
| 4. 発表年<br>2020年   |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>H. Nagata, Y. Takagi, T. Takenaka   |
| 2. 発表標題<br>Quenching Effects for Electrical and Mechanical Properties on (Bi1/2Na1/2)TiO3 Ceramics |
| 3. 学会等名<br>Electronic Materials and Applications 2021 (招待講演) (国際学会)                                |
| 4. 発表年<br>2021年  |

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

|  | 氏名<br>(ローマ字氏名)<br>(研究者番号) | 所属研究機関・部局・職<br>(機関番号) | 備考 |
|--|---------------------------|-----------------------|----|
|--|---------------------------|-----------------------|----|

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

| 共同研究相手国 | 相手方研究機関 |
|---------|---------|
|---------|---------|