

パイロクロア型酸化物 $\text{Cd}_2\text{Nb}_2\text{O}_7$ の リラクサー的挙動に関する放射光構造物性

量子構造物性学講座 41417120 和食 雄大

パイロクロア型酸化物の一つである $\text{Cd}_2\text{Nb}_2\text{O}_7$ (立方晶系, 空間群 $\bar{F}d\bar{3}m$) は, 204 Kで構造相転移し, 196 K以下で自発分極が観測されるようになる強誘電体である. 86 K $<$ T $<$ 204 Kでは, $T_{\text{max}} \sim 180$ Kでピークをもつ誘電異常が観測され, その誘電分散は代表的なリラクサー物質 $\text{PbMg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3$ と類似している. 現在知られているリラクサーのほとんどは $\text{A}(\text{B}'\text{B}'')\text{O}_3$ 型の複合ペロブスカイト型混晶であることから, 純結晶である $\text{Cd}_2\text{Nb}_2\text{O}_7$ がなぜリラクサー的挙動を示すかを調べることにより, リラクサーの理解の深化が期待される. 本研究では, $\text{Cd}_2\text{Nb}_2\text{O}_7$ のリラクサー的挙動を結晶構造の観点から議論するため, T_{max} を含む $100 \text{ K} < T < 600 \text{ K}$ でSPring-8 BL02B2における高エネルギー放射光粉末回折実験を行い, MEM/Rietveld法により精密構造解析を行った.

図1は, 本研究により初めて明らかになった100 Kにおける強誘電相の結晶構造である(100 K, 斜方晶系, 空間群 $\text{Imm}2$). 独立な2種類の八面体 $\text{NbO}_6(\text{A})$ と $\text{NbO}_6(\text{B})$ が存在し, 自発分極は歪みがより大きい $\text{NbO}_6(\text{B})$ が担うことがわかった. 一方, T_{max} 近傍の $160 \text{ K} < T < 204 \text{ K}$ では, この構造モデルに基づいた解析は困難であり, Nbが多極小平衡位置を占める立方晶モデルが最適モデルであった. 図2は, 立方晶単位格子を基本とした格子定数の温度変化である. 格子歪みは約160 K以下で発生しているように見える. 以上の結果は, 204 K以下で強誘電相構造をもった微小領域が発生し始め, $T_0 \sim 160$ K以下で長距離秩序が実現すると考えると理解できる. このモデルは, T_{max} 近傍のリラクサー的挙動だけでなく既報のあらゆる実験事実を説明することができる. そして, リラクサー的挙動の起源は, パイロクロア酸化物が持っている特異な構造により説明できる.

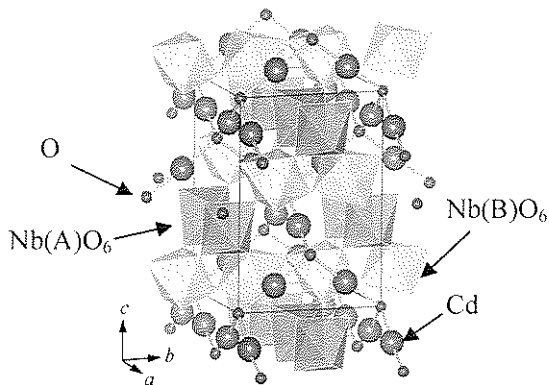


図1 強誘電相(100 K)における $\text{Cd}_2\text{Nb}_2\text{O}_7$ の結晶構造.

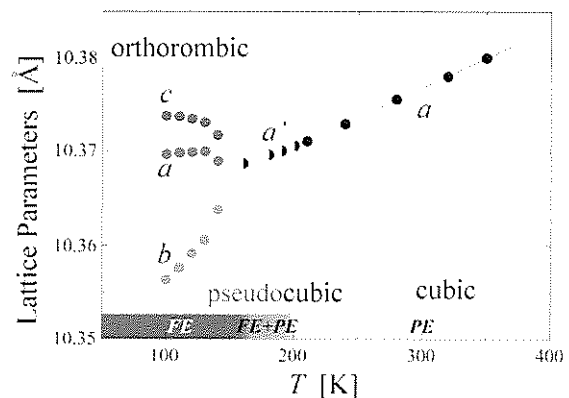


図2 格子定数の温度変化.