
 解説

## 鉛含有ペロブスカイト酸化物リラクサーにおける 強誘電ナノ領域形成

川路 均, 守屋映祐, 東條壮男, 阿竹 徹

(受取日: 2006年7月21日, 受理日: 2006年10月31日)

### Thermodynamic Study of the Formation and Growth of Ferroelectric Nanoregion in Perovskite Complex Oxide Relaxors

Hitoshi Kawaji, Yosuke Moriya, Takeo Tojo, and Tooru Atake

(Received July 21, 2006; Accepted October 31, 2006)

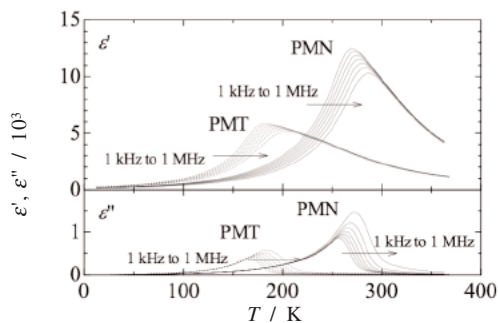
The thermodynamic properties of lead-based complex perovskite relaxors are reviewed. The heat capacity anomaly of typical lead-based complex perovskite relaxors  $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$  and  $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Ta}_{2/3})\text{O}_3$  found in a very wide temperature range around room temperature is discussed in terms of the formation and growth of ferroelectric nanoregions in a paraelectric matrix. The ferroelectric phase transition behavior of  $\text{Pb}(\text{Sc}_{1/2}\text{Ta}_{1/2})\text{O}_3$  is also systematically studied with respect to changes in the degree of *B*-site cation ordering.

#### 1. はじめに

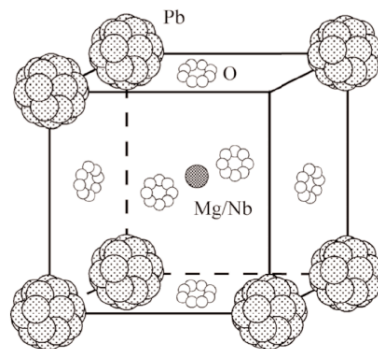
一般式 $\text{ABO}_3$ で表されるペロブスカイト酸化物は誘電体材料への応用分野をはじめとする無機材料科学分野においてその中心を占め、その高機能化が長年にわたって研究されてきた。一般にAサイトはイオン半径の大きな2価あるいは3価の陽イオンが、Bサイトは価数の比較的高く、イオン半径の小さなイオンが占めている場合が多い。ペロブスカイト酸化物の強誘電体化合物として有名な $\text{BaTiO}_3$ の場合には、Aサイトはアルカリ土類金属である $\text{Ba}^{2+}$ が、Bサイトは遷移金属である $\text{Ti}^{4+}$ が位置している。ペロブスカイト構造は天然鉱物にも多く見られる構造であり、その化学的多様性は非常に広い。その中で特にAサイトに鉛を含有する複合ペロブスカイト酸化物は、高い圧電効果などの特徴ある物性を示す $\text{Pb}(\text{Zr,Ti})\text{O}_3$ などをはじめとして誘電体応用分野で注目されている。また、実用化されている材料も数多く存在する。この $\text{Pb}(\text{Zr,Ti})\text{O}_3$ においては、特徴的な物

性が表れる組成付近にはモルフォトロピック相境界と呼ばれる領域が存在し、複雑な相転移挙動がその機能性発現に重要な影響を与えている。一方、このような鉛含有複合ペロブスカイト酸化物 $\text{Pb}(\text{B}'\text{B}'')\text{O}_3$ の中には、**Fig.1**に示すように巨大誘電率を示し、同時にガラスに類似の顕著な誘電分散を示すものも存在する。これらは通常の誘電体には見られない興味深い性質を示し、近年急激に研究が行われるようになってきている。これら一連の化合物は、特徴的な誘電緩和現象を示すためにリラクサーと呼ばれているが、リラクサーには、強誘電体で観測される強誘電相転移を示さず、極低温まで高い結晶対称性を有したままの場合もあり、その機構解明が求められている。

誘電性を示す鉛含有複合ペロブスカイト酸化物 $\text{Pb}(\text{B}'\text{B}'')\text{O}_3$ には数多くのタイプがあるが、Bサイトの遷移金属が2価と5価のイオンで構成される場合には、電気的中性条件から2種類のイオン $\text{B}'$ ,  $\text{B}''$ の比は1:2となり、組成式は $\text{Pb}(\text{B}'_{1/3}\text{B}''_{2/3})\text{O}_3$ となる。これに該当する化合物の中に、



**Fig.1** Dielectric constant of PMN( $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ ) and PMT( $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Ta}_{2/3})\text{O}_3$ ).



**Fig.2** Schematic view of the crystal structure of PMN.<sup>11)</sup>

典型的なリラクサーとなる  $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$  (PMN) や  $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Ta}_{2/3})\text{O}_3$  (PMT) がある。これらの化合物では、B サイトのイオン配列には長距離秩序は無く、相転移現象は示さない。<sup>2)</sup> 一方、B サイトイオンが2価と6価のイオンからなる場合や、3価と5価のイオンの場合には、やはり電気的中性条件から、B', B'' は1:1でサイトを占有する  $\text{Pb}(\text{B}'_{1/2}\text{B}''_{1/2})\text{O}_3$  型の複合ペロブスカイト酸化物が構成される。この場合には、B サイト配列が長距離秩序配列する場合は知られており、 $\text{Pb}(\text{Sc}_{1/2}\text{Ta}_{1/2})\text{O}_3$  (PST) のようにB サイト配列の秩序化の違いで誘電的な挙動が変化する場合がある。一般にB サイト配列が高秩序度の試料は通常の強誘電的挙動を示すのに対して低秩序度のものはリラクサーの性質を示し、なおかつB サイト配列を熱処理により変化させることで誘電的性質を強誘電的からリラクサー的なものまで物性制御することが可能である。<sup>3)</sup>

リラクサーは通常の強誘電体では観測されない数多くの興味深い挙動を示すため、基礎研究の観点からも注目され、多方面からの数多くの研究がなされてきた。種々の微視的モデルも提案されてきているが、その機構は必ずしも明らかになっていないわけではない。また、この現象に関するエネルギーの観点からの研究も不可欠であると考えられるが、これまでに詳細な熱力学的研究はなされていないのが現状であった。そこで我々はリラクサー挙動の説明のために提案された種々の微視的モデル<sup>4-10)</sup>の妥当性を検証し、その構造と物性との相関を解明することを目的として、熱容量測定を中心とした熱力学的研究を行っている。

## 2. PMN や PMT における強誘電ナノ領域の成長

PMN は最も初期に発見されたリラクサーであり、特に研究が進んでいる化合物である。X線、中性子回折による構造解析により、室温では **Fig.2** に示すようにPbイオンは理想的なペロブスカイト構造のAサイト位置から約0.03 nm変位したオフセンター位置にランダムに分布しており、O

イオンも{100}平面内にリング状に分布していることが報告されている。<sup>11)</sup> さらに、高温から極低温に至るまでPMNの平均構造は立方晶 ( $Pm3m$ ) のままであり、巨視的な構造変化は起きていない。<sup>12,13)</sup> その一方で、温度の低下とともに極性を持ったナノメートルサイズの菱面体晶 ( $R3m$ ) の微少領域が発達していることが見出されており、<sup>14,15)</sup> これらは極性微少領域 (PNR; Polar NanoRegion) あるいは強誘電ナノ領域 (FNR; Ferroelectric NanoRegion) と呼ばれている。このような対称性が低下した領域が生成するものの、それぞれのPNRの分極ベクトルの向きが八つの<111>方向に等確率でランダムに配向しているために、分極が打ち消しあって全体としては巨視的な分極は形成されず、結晶対称性も全体としては立方晶が保たれている。PNRの結晶全体に対する割合は室温付近以下の巨大誘電率を示す温度域で温度の低下とともに急激に増加するが、極低温でも全体に行き渡ること無く、その大きさが最大で10 nm程度と考えられている。<sup>11,14)</sup> Burnsら<sup>16)</sup>は屈折率の温度依存性の測定からこのようなPNRが立方晶マトリックス中に600 K付近以下から形成されることを指摘した。この温度は一般にBurns温度と呼ばれている。

また前述の通り、PMN やPMTではBサイトを2種類のイオンが1:2で占有しているが、低温でもBサイトの配列には長距離秩序を持たない。しかし、TEM観察によると、2種類のBサイトイオンが完全にランダムに存在しているわけではなく、局所的にBサイトイオン配列が1:1型と同様の秩序化した領域 (COD: Chemical Ordered Domain) が存在することが示唆されている。<sup>17-23)</sup> CODの詳細な構造についてはまだ完全には理解されていないが、<sup>24)</sup> このような領域は約2 nmのサイズを持ち、かつランダムに分布していると考えられている。<sup>23)</sup> このナノメートルサイズのCODがランダムな電場を生じさせ、それにより本来は起こるべき強誘電相転移が阻害されて、PNR状態に凍結させられたとするモデルも提案されている。<sup>10)</sup> しかし、このようなPNR

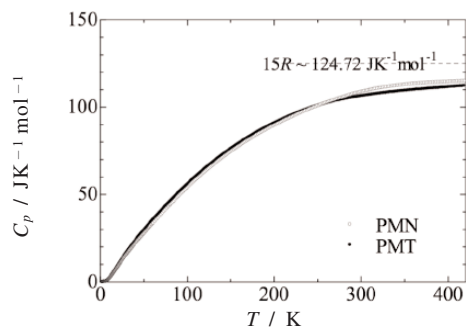


Fig.3 Measured molar heat capacity of PMN and PMT.

の形成あるいは強誘電相転移の阻害による強誘電ナノドメイン状態への凍結挙動については未だ完全な理解には到達していないのが現状である。一方、このような現象が起きているならばそれに対応する熱的寄与が現れるはずである。このため、私たちは典型的リラクサーであるPMNおよびPMTについてフラックス法を用いて単結晶合成を行い、断熱型熱量計を用いた精密熱容量測定を行った。<sup>25)</sup> 測定に用いた試料の誘電率はFig.1に示したようにPMNの場合には、室温付近の広い温度範囲にわたって誘電率の実数部にブロードなピークを示し、ピーク値は15000程度に達している。リラクサーに特徴的な誘電緩和現象については、実部のピークが測定周波数の増加とともに高温側に移動し、虚数部にも実数部の周波数分散に対応した挙動が観測される。また、PMTの場合にはこれらの挙動がPMNよりも100 K程度低温側に現れている。これらについて10 g程度の試料を用いて行った断熱型熱量計による熱容量測定の結果をFig.3に示す。誘電率においてリラクサー挙動の観測された温度領域には顕著な熱容量ピークは観測されない。しかし、PMNとPMTを比較すると、250 K以下ではPMNの熱容量がPMTよりも小さいのに対してそれ以上の温度では大小関係が逆転し、PMNの方が大きくなっている。PMNとPMTは同じ結晶構造を有しており、通常の格子振動を考えた場合にはこのような熱容量の逆転現象は起こり得ない。このためPMNには何らかの過剰熱容量が250 K以上に存在している可能性が示唆される。そのため、デバイモデルに基づいて熱容量の温度依存性を検討することとした。その結果をFig.4に示す。デバイモデルではある温度の熱容量はデバイ温度 $\Theta_D$ を用いて

$$C_v = 3nR \left( \frac{T}{\Theta_D} \right)^3 \int_0^{\Theta_D/T} \frac{x^4 e^x}{(e^x - 1)^2} dx$$

と表される。元来、デバイモデルは熱容量の温度変化を物質固有の定数(デバイ温度 $\Theta_D$ )で表そうとするものであるが、上式を $\Theta_D$ と熱容量とを結びつける関係式とみなして実

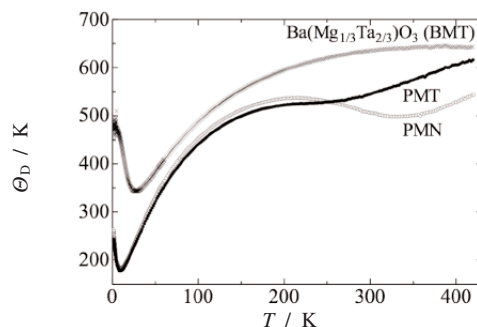
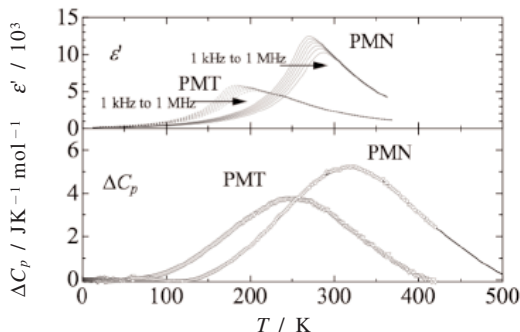
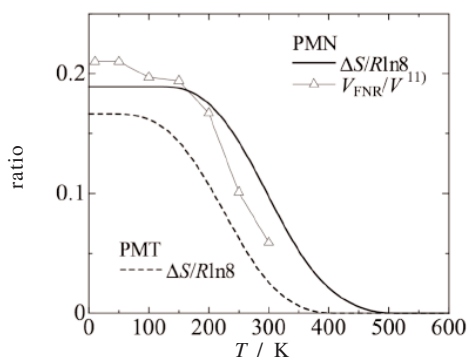


Fig.4 Debye temperature of PMN, PMT, and BMT ( $\text{Ba}(\text{Mg}_{1/3}\text{Ta}_{2/3})\text{O}_3$ ) calculated assuming 3 degrees of freedom per atom.

測の熱容量から各温度での $\Theta_D$ を計算することも可能である。完全にデバイモデルに従う物質の場合には熱容量から計算された $\Theta_D$ は温度変化しないはずであるが、実際の物質では $\Theta_D$ は当然のごとく温度変化する。一般には、Fig.4中に示した $\text{Ba}(\text{Mg}_{1/3}\text{Ta}_{2/3})\text{O}_3$ (BMT)のような依存性を示す場合が多い。極低温では低エネルギーの格子振動しか励起しないため、音響フォノンの低振動部分の寄与が支配的であり、デバイモデルは精度の高い近似となる。一方、少し温度が上昇し、デバイ温度の1/20程度の温度になると、プリルアンゾーン境界付近での音響フォノン分枝の曲がりの寄与のために一旦 $\Theta_D$ は低下する。また、それよりも高温側では再び上昇してほぼ一定の値に落ち着く傾向を示す。一方、PMNとPMTのデバイ温度はこのようなBMTとは異なり、PMNの場合には約350 Kに、PMTの場合には250 K付近に別の凹みが観測される。 $\Theta_D$ の凹みは熱容量では凸に対応しており、PMNとPMTにはそれぞれ350 K、250 K付近に熱容量ピークが存在することを示唆している。デバイ温度が滑らかに温度変化するようにベースラインを見積り、過剰熱容量を分離するとFig.5のようになる。Fig.5では過剰熱容量と誘電率を同時にプロットしているが、誘電率において1 kHzから1 MHzに観測される誘電分散が起こる温度よりも少し高温側に過剰熱容量がピークを示している。PMNの場合には過剰熱容量は測定温度域よりも高温の500 K以上から存在しており、Burnsら<sup>16)</sup>が屈折率の温度依存性からPNRが形成され始めるとしたBurns温度(600 K付近)に対応している。一方、PMTの過剰熱容量はPMNよりも約100 K低温側に現れており、この傾向は誘電率の結果と対応している。両物質とも過剰熱容量の絶対値はそれほど大きく無いが、非常に広い温度範囲にわたっており、この過剰熱容量に対応する過剰エントロピーはそれぞれ、PMNとPMTで3.3および2.9  $\text{JK}^{-1} \text{mol}^{-1}$ となった。この値は変位型強誘電体の相転移エントロピーの値と比較する

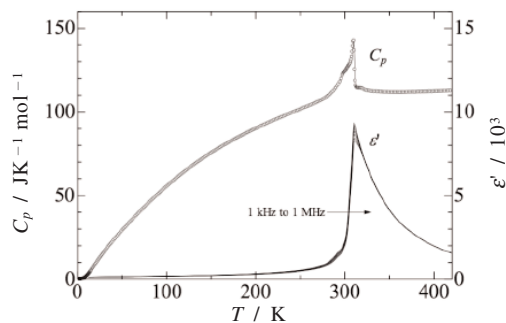


**Fig.5** Excess heat capacity and dielectric constant of PMN and PMT.

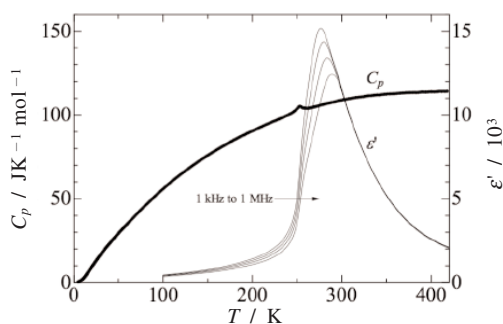


**Fig.6** Volume fraction of PNR determined from the excess entropy and the result of neutron diffraction.<sup>11)</sup>

と非常に大きく、秩序無秩序型相転移の相転移エントロピーの典型的な値  $R \ln 2$  の 50 % 程度である。このため、この化合物のリラキサー挙動は、ソフトフォノンではなく、構造解析からも指摘されているような秩序無秩序型の機構が関係していると考えるのが妥当である。すなわち、温度の低下とともに秩序無秩序型の機構で近距離秩序が形成されていく過程を過剰熱容量としてとらえていると言うことである。秩序無秩序型の機構でこの現象が支配されているとすると、PNR の分極の向きが八つの  $\langle 111 \rangle$  方向に配向しているとすると、完全に秩序化した強誘電体と完全な常誘電体間のエントロピー差は 1 mol あたり  $\Delta S = R \ln 8 = 17.3 \text{ JK}^{-1} \text{ mol}^{-1}$  と予想される。PMN についての実測値はこの値の約 20 % である。この過剰熱容量によるエントロピー寄与が PNR の量に対応していると考えて、温度を低下させたときの PNR 量をプロットすると **Fig.6** のような関係が得られる。PMN についての Uesu ら<sup>11)</sup> による構造解析の結果とも一致しており、極低温においても秩序化はこの程度までしか進



**Fig.7** Measured molar heat capacity and dielectric constant of as-grown PST crystals.

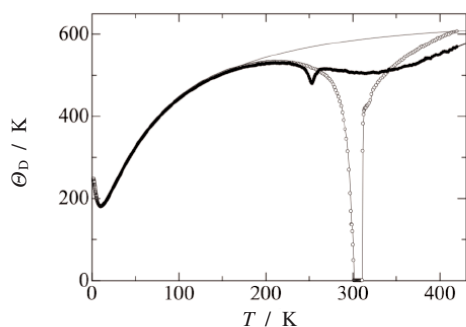


**Fig.8** Measured molar heat capacity and dielectric constant of PST quenched from 1830 K.

行しないことを示している。すなわち、PMN では残りの  $0.8R \ln 8$  程度の無秩序性が残ったままガラス的に凍結していることになる。<sup>25)</sup>

### 3. PST における化学的秩序化領域の制御と強誘電ナノ領域<sup>26)</sup>

$\text{Pb}(\text{Sc}_{1/2}\text{Ta}_{1/2})\text{O}_3$  (PST) は、B サイト配列が長距離的に秩序配列することで誘電的な挙動が変化することが知られている。<sup>3)</sup> B サイト配列の秩序度が高い試料は通常の強誘電的挙動を示すのに対して秩序度があまり高くない場合はリラクサー的性質を示す。B サイト配列は熱処理により変化させることが出来るため、熱処理条件を選ぶことにより誘電的性質を強誘電的からリラクサー的なものまで連続的に制御することが可能である。<sup>27-31)</sup> **Fig.7** および **Fig.8** に単結晶作成直後の高秩序度 PST および 1830 K から急冷した低秩序度 PST の熱容量および誘電率を示す。<sup>32)</sup> 高秩序度 PST には室温付近に強誘電相転移に起因する明確な比熱異常が観測されており、誘電率もその温度で急激に変化しているが、秩序度が減少すると比熱異常のピークは低温側へシフトするとともにピークも強誘電相転移が阻害されて小さくなっ



**Fig.9** Debye temperature of PST calculated assuming 3 degrees of freedom per atom. ○; as-grown PST, ●; PST quenched from 1830 K.

ているように見える。また、同時に低秩序度PSTでは誘電率には周波数分散が観測されるようになり、リラクサーの挙動を示している。両試料の熱容量の実測値をデバイ温度に変換してFig.9に示した。熱容量の鋭いピークは $\theta_D$ に鋭いディップとして現れるが、低秩序度のリラクサーPSTでは相転移に伴う異常が減少する代りに高温側からPMNやPMTの場合と同様に数100 Kの幅広い温度範囲にわたる過剰熱容量が出現していることが分かる。このことから広温度範囲でのPNRの成長がリラクサー挙動の本質であることが分かる。また、相転移が起こるよりもはるかに高温側で過剰熱容量が存在することはPNRの成長機構を考えるうえで非常に興味深い。一方、過剰熱容量に対応する過剰エントロピーを計算すると高秩序度PSTと低秩序度PSTでそれぞれ、4.1および3.3 JK<sup>-1</sup> mol<sup>-1</sup>であり、高秩序度PSTでは顕著な相転移が起こっているにもかかわらず、低秩序度PSTの値と同程度であった。また、低秩序度PSTの過剰エントロピー値は、PMNとほぼ同じであり、これらの系においても秩序無秩序型相転移が凍結していると考えるのが妥当であることを示している。しかし、リラクサー挙動を示す低秩序度PSTの過剰熱容量が、顕著な相転移を示す高秩序度PSTよりも高温から生じることや、過剰エントロピーが高秩序度PSTと低秩序度PSTではほぼ同程度であることなどから考えると、リラクサー挙動の発現が相転移による長距離秩序形成が何らかの要因で阻害されてPNRが凍結したためであると単純に言い切れないことを示しており、より詳細な研究が必要となっている。一方、これまで高秩序度PSTの強誘電相転移は立方晶から菱面体晶への構造相転移であると考えられてきたが、熱容量からは明瞭な二つの熱異常が観測され、相転移が2段階で起こっていることを示しており、これについては整合-不整合相転移の存在も示唆されている。<sup>33)</sup>

#### 4. おわりに

PMN, PMTおよびPSTにおいてリラクサー挙動に関与した巨大な過剰熱容量が観測されたことから、リラクサー挙動を支配するPNRの生成が秩序無秩序機構によることが明らかになった。また、過剰熱容量は広範囲にわたっているもののエントロピー寄与は完全秩序で予想される値の1/5程度にとどまっており、極低温では無秩序性がガラス的に凍結していることが示唆された。<sup>25,31)</sup> Bサイトイオン配置の秩序度を変えたPSTでのPNRの生成に関する興味深い挙動が見出されてきているものの、PNRの生成機構解明およびリラクサー挙動発現機能の解明にはさらなる研究が必要であることが明らかになってきた。一方、最近、自然環境保護の観点から鉛を含まないリラクサーの開発研究も精力的に行われているが、そのためにもこれら鉛系でのリラクサー挙動発現機能の解明が早急に求められていると言えよう。

#### 文 献

- 1) L. E. Cross, *Ferroelectrics* **76**, 241 (1987).
- 2) G. A. Smolenskii, V. A. Isupov, A. I. Agranovskaya, and S. N. Popov, *Sov. Phys. -Solid State* **2**, 2584 (1961).
- 3) C. A. Randall and A. S. Bhalla, *J. Appl. Phys.* **29**, 327 (1990).
- 4) L. E. Cross, *Ferroelectrics* **76**, 241 (1987); *ibid* **151**, 305 (1987).
- 5) D. Viehland, S. J. Jang, L. E. Cross, and M. Wuttig, *J. Appl. Phys.* **68**, 2946 (1990).
- 6) D. Viehland, J. F. Li, S. J. Jang, L. E. Cross, and M. Wuttig, *Phys. Rev.* **B43**, 8316 (1991).
- 7) D. Viehland, M. Wuttig, and L. E. Cross, *Ferroelectrics* **120**, 71 (1991).
- 8) R. Blinc, J. Dolinšek, A. Gregorovic, B. Zalar, C. Filipic, Z. Kutnjak, A. Levstik, and R. Pirc, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 424 (1999); *J. Phys. Chem. Solids* **61**, 177 (2000).
- 9) R. Pirc and R. Blinc, *Phys. Rev.* **B60**, 13470 (1999).
- 10) V. Westphal, W. Kleemann, and M. D. Glinchuk, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 847 (1992).
- 11) Y. Uesu, H. Tazawa, K. Fujishiro, and Y. Yamada, *J. Korean. Phys. Soc.* **29**, S703 (1996).
- 12) P. Bonneau, P. Garnier, E. Husson, and A. Morell, *Mater. Res. Bull.* **24**, 201 (1989).
- 13) P. Bonneau, P. Garnier, G. Calvarin, E. Husson, J. R. Gavarri, A. W. Hewat, and A. Morell, *J. Solid State Chem.* **91**, 350 (1991).
- 14) N. Mathan, E. Husson, G. Calvarin, J. R. Gavarri, A. W. Hewat, and A. Morell, *J. Phys.: Condens.*

- Matter* **3**, 8159 (1991).
- 15) K. Fujishiro, Y. Uesu, Y. Yamada, B. Dkhil, J. M. Kiat, and Y. Yamashita, *J. Korean. Phys. Soc.* **32**, S964 (1998).
  - 16) G. Burns and F. H. Dacol, *Solid State Commun.* **48**, 853 (1983); *Phys. Rev.* **B28**, 2527 (1983); *Ferroelectrics* **104**, 25 (1990).
  - 17) A. D. Hilton, D. J. Barber, C. A. Randall, and T. R. Shrout, *J. Mater. Sci.* **25**, 3461 (1990).
  - 18) L. A. Bursill, H. Qian, J. L. Peng, and X. D. Fan, *Physica* **B216**, 1 (1995).
  - 19) M. Yoshida, S. Mori, N. Yamamoto, Y. Uesu and J. M. Kiat, *Ferroelectrics* **217**, 327 (1998); *J. Korean Phys. Soc.* **32**, S993 (1998).
  - 20) E. Husson, L. Abello, and A. Morell, *Mat. Res. Bull.* **23**, 357 (1988).
  - 21) J. Chen, H. M. Chan, and P. Harmer, *J. Am Ceram. Soc.* **72**, 593 (1989).
  - 22) T. R. Schrouf, W. Huebner, and C. A. Randall, *J. Mater. Sci.* **25**, 3461 (1990).
  - 23) C. Boulesteix, F. Varnier, A. Llebaria, and E. Husson, *J. Solid State Chem.* **108**, 141 (1994).
  - 24) R. E. Newnham, *NIST Spec. Publ. 804, Chem. of Electronic Ceram. Materials, Proc. Inter. Conf.* 39 (1991).
  - 25) Y. Moriya, H. Kawaji, T. Tojo, and T. Atake, *Phys. Rev. Lett.* **90**[20], 205901(1-4) (2003).
  - 26) Y. Moriya, H. Kawaji, T. Tojo, and T. Atake, *to be published.*
  - 27) N. Setter and L. E. Cross, *J. Appl. Phys.* **51**, 4356 (1980).
  - 28) N. Setter and L. E. Cross, *J. Mater. Sci.* **15**, 2478 (1980).
  - 29) N. Setter and L. E. Cross, *Ferroelectrics* **37**, 551 (1981).
  - 30) C. G. F. Stenger, F. L. Scholten, and A. J. Burggraaf, *Solid State Commun.* **32**, 989 (1979).
  - 31) C. G. F. Stenger and A. J. Burggraaf, *Physica Stat. Sol.* **A61**, 275 (1980); *ibid.* **A61**, 653 (1980).
  - 32) Y. Moriya, H. Kawaji, T. Tojo, and T. Atake, *Trans. Mater. Res. Soc. Jpn.* **27**[1], 287 (2002).
  - 33) C. A. Randall, S. A. Markgraf, A. S. Bhalla, and K. Baba-Kishi, *Phys. Rev.* **B40**, 413 (1989).

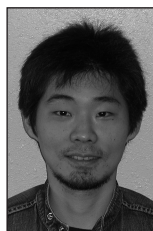
## 要 旨

広い温度範囲にわたって巨大な誘電率を示し、応用面でも注目されている鉛含有ペロブスカイト酸化物リラクサーにおける強誘電ナノ領域形成について、その機構解明を目的として、熱容量測定を中心とした熱力学的研究を行った。典型

的な鉛含有リラクサー  $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$  および  $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Ta}_{2/3})\text{O}_3$  において強誘電ナノ領域の形成に伴うと考えられる過剰な熱容量を見出し、それに対応するエントロピー変化を決定した。強誘電ナノ領域形成には秩序無秩序相転移機構が関係しているものの、その強誘電ナノ領域形成は結晶全体には進行せず、相転移が阻害されていると考えられることを示した。さらに極低温では、多くの無秩序性を残したままガラス的に凍結していることを明らかにした。



川路 均 Hitoshi Kawaji  
東京工業大学応用セラミックス研究所, Materials and Structures Lab., Tokyo Institute of Technology, TEL. 045-924-5313, FAX. 045-924-5339, e-mail: kawaji@msl.titech.ac.jp  
研究テーマ：無機固体化学  
趣味：アマチュア無線



守屋映祐 Yosuke Moriya  
東京工業大学応用セラミックス研究所, Materials and Structures Lab., Tokyo Institute of Technology  
e-mail: ymoriya@m8.dion.ne.jp  
研究テーマ：誘電体物性  
趣味：仏像拝観

東條壮男 Takeo Tojo  
東京工業大学応用セラミックス研究所, Materials and Structures Lab., Tokyo Institute of Technology, TEL. 045-924-5343, FAX. 045-924-5339, e-mail: ttojo@msl.titech.ac.jp  
研究テーマ：材料物性物理学  
趣味：モーターサイクル

阿竹 徹 Tooru Atake  
東京工業大学応用セラミックス研究所, Materials and Structures Lab., Tokyo Institute of Technology, TEL. 045-924-5343, FAX. 045-924-5339, e-mail: ataketooru@msl.titech.ac.jp  
研究テーマ：物性物理化学, 材料科学  
趣味：読書, 旅行