

直流偏置电场下 BaTiO_3 基陶瓷 介电常数非线性机理的研究 *

梁瑞虹[†] 董显林 陈 莹 曹 菲 王永龄

(中国科学院上海硅酸盐研究所, 上海 200050)

(2005 年 2 月 4 日收到 2005 年 3 月 14 日收到修改稿)

采用传统固相法制备了 $\text{Ba}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{TiO}_3$ (BST) 和 $\text{BaZr}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ ($x = 0.25, 0.3, 0.35, 0.4$) (BZT) 陶瓷, 并对其在直流偏置电场下的介电常数非线性行为进行了系统、详细的研究。结果表明, 基于 Devonshire 的宏观相变理论 (phenomenological theory) 提出的公式 $\frac{\epsilon_{\text{app}}}{\epsilon_{(0)}} = \frac{1}{[1 + \alpha \epsilon_{(0)}^3 E^2]^{1/3}}$ 和 $\epsilon(E) = \epsilon_1 - \epsilon_2 E^2 + \epsilon_3 E^4$, 均可定量地解释 BST 体系顺电相的介电常数非线性行为, 其中 ϵ_{app} 表示材料在电场下的介电常数, $\epsilon_{(0)}$ 表示不加电场即静态下材料的介电常数, α 是非谐性因子, E 表示电场强度, $\epsilon(E)$ 表示材料在电场下的介电常数, $\epsilon_1, \epsilon_2, \epsilon_3$ 分别表示线性、非线性和高阶介电常数。而对于处于铁电相和居里温度附近的 BST 体系, 则需要考虑铁电畴对介电常数非线性的贡献, 这种贡献随着外加直流偏置电场强度的增大逐步减小。对于弛豫铁电体 BZT 体系, 即使处于顺电相, 也必须考虑由极性微区的冻结与合并引起的介电常数的下降, 极性微区对介电常数非线性的贡献随着电场强度和温度的上升而有所下降。

关键词: BST, $\text{BaZr}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$, 可调性, 介电常数非线性, 直流偏置电场

PACC: 7700, 7740, 7780D

1. 引 言

研究发现^[1-3], 由于钛酸钡基陶瓷介电常数在偏置直流电场作用下具有非线性特性行为, 使它在微波器件方面具有广阔的应用背景, 比如延迟线、滤波器、谐振器和相移器等。用作上述微波器件时, 它要求陶瓷材料必须具有以下性能: 1) 高介电非线性(即可调性($\epsilon_{(0)} - \epsilon_{\text{app}}$)/ $\epsilon_{(0)}$), 2) 低的微波介电损耗, 3) 相对低的介电常数, 4) 良好的温度稳定性, 5) 好的抗疲劳特性等。其中高的介电非线性是一个非常关键的性能参数, 所以这项研究是非常必要的。

目前, 对于陶瓷直流偏置电场下介电非线性机理的研究尚不成熟, 主要集中在对钙钛矿型陶瓷顺电相的介电常数非线性机理的研究, 现在已经可以定量地描述它的介电非线性机理并基本上得到研究者的认可^[4,5], 而对于钙钛矿陶瓷铁电相和居里温度

附近以及弛豫型铁电体的介电常数非线性机理的研究还很不充分。本文以钛酸锶钡(BST)和锆钛酸钡(BZT)为研究对象, 研究不同状态下(铁电相, 居里温度附近, 顺电相和弛豫铁电体) BaTiO_3 基陶瓷在直流偏置电场下介电常数非线性机理, 即材料的介电常数为何随直流偏场变化, 及其怎样变化的。这不仅对材料制备和性能研究有指导意义, 而且对微波器件的研究也有实际的价值。

2. 实验方法

2.1. 样品制备

采用传统固相方法制备 BST 和 BZT 陶瓷。材料的组分设计为 $\text{Ba}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{TiO}_3$, $\text{BaZr}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ ($x = 0.25, 0.3, 0.35, 0.4$)。以 BaCO_3 (99.0%), ZrO_2 (99.13%), TiO_2 (99.08%), SrCO_3 (99.0%) 为原料,

* 中国科学院科技创新基金(批准号: CXJJ-103)资助的课题。

† 通讯联系人 E-mail: rainbow@mail.sie.ac.cn

按照化学计量比配料,用玛瑙球球磨24h,粉料烘干后在1150℃下预烧,保温2h,再经二次球磨,烘干后添加粉料重量的7%PVA成型,压成直径13mm圆片,再在1350℃—1450℃下烧结成瓷.将烧好的陶瓷片两端平行细磨后镀上银电极,以供测试所用.

2.2. 分析测试

样品的晶相结构用 x 射线衍射仪(D/max 2550V)进行分析,材料的介电性能用HP4284阻抗分析仪来测量,介电温谱测试系统中的温控设备采用VT7004高低温实验箱.用YJ32-2型直流稳压器提供直流偏置电压,采用LCR meter(TH2816)测试样品在外加直流偏压下的介电常数的非线性特性.

3. 结果和讨论

如图1所示, x 射线衍射分析表明, $\text{Ba}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{TiO}_3$ 和 $\text{BaZr}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ ($x=0.25, 0.3, 0.35, 0.4$)陶瓷样品均呈现典型的立方钙钛矿相结构,没有第二相出现.

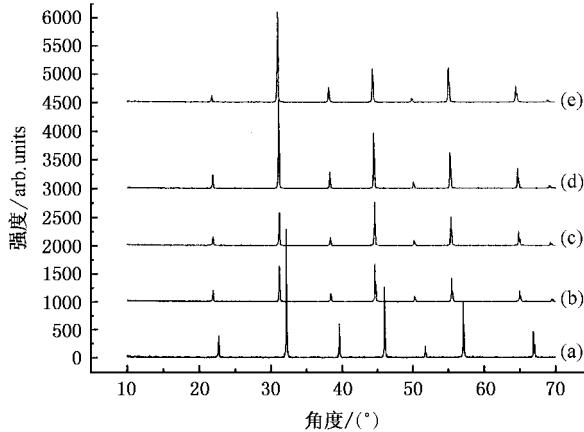


图1 $\text{Ba}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{TiO}_3$ 和 $\text{BaZr}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ 陶瓷的 XRD 图谱 (a) $\text{Ba}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{TiO}_3$, (b) $\text{BaZr}_{0.25}\text{Ti}_{0.75}\text{O}_3$, (c) $\text{BaZr}_{0.3}\text{Ti}_{0.7}\text{O}_3$, (d) $\text{BaZr}_{0.35}\text{Ti}_{0.65}\text{O}_3$, (e) $\text{BaZr}_{0.4}\text{Ti}_{0.6}\text{O}_3$

图2是BST和BZT在10kHz下的介电温谱.从图中可以看出 $\text{Ba}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{TiO}_3$ 的居里温度在-3℃左右,在常温下处于顺电相.而对于BZT体系,通常,弛豫铁电体BZT的介电常数最大值所处的温度(T_{\max})值与材料本身是紧密联系的.影响 T_{\max} 值的因素很多,比如材料的组分,起始原料的纯度,粉体的合成温度和烧结温度等,所以即使是相同组分的材料也会因材料制备过程的不同会有所不同.由于测试条件的限制,我们制备的BZT材料的 T_{\max} 值不能

够得到,所以其他研究人员报道的弥散相变和弛豫铁电体特征尚不能够从图中观察到^[6,7],而其他文献所得到的 T_{\max} 值只能作为参考,不能简单的照搬.Tang等人^[8]在2004年报道过 $\text{Ba}(\text{Zr}_y\text{Ti}_{1-y})\text{O}_3$ ($y=0.2, 0.25, 0.3, 0.35$)的 T_{\max} 值,其中, $\text{Ba}(\text{Zr}_{0.25}\text{Ti}_{0.75})\text{O}_3$ 的 T_{\max} 值为257K, $\text{Ba}(\text{Zr}_{0.30}\text{Ti}_{0.70})\text{O}_3$ 的 T_{\max} 为198K, $\text{Ba}(\text{Zr}_{0.35}\text{Ti}_{0.65})\text{O}_3$ 的 T_{\max} 值为166K^[8].虽然我们无法从图中得到材料的 T_{\max} 值,但是依然可以从图中看出随着Zr含量的增大, T_{\max} 值远低于室温且明显向低温方向移动,介电常数值也随之降低.这可能是由于 Zr^{4+} 对B位 Ti^{4+} 的取代使得 $\text{Ti}-\text{O}$ 键的断裂,引起c轴晶胞参数与a轴晶胞参数的比值减小,导致 T_{\max} 值降低.在室温下 $\text{Ba}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{TiO}_3$ 和 $\text{BaZr}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ ($x=0.25, 0.3, 0.35, 0.4$)介电损耗均很小,约在0.001—0.005之间,这对于微波器件的应用是很有利的.

图3所示是在常温(25℃),10kHz条件下样品的介电常数随外加直流电压的变化趋势.从图中可以看出,随着外加直流电场强度的提高,样品的介电常数均有所下降.对于钙钛矿型的铁电体,当其处于顺电相(即居里温度远低于测试温度)时,强场下介电常数的非线性机理可以用Devonshire的宏观相变理论(phenomenological theory)来解释^[9,10].Devonshire等人认为对于立方结构的物质之所以介电常数在强场下具有非线性,是因为钛氧八面体中的 Ti^{4+} 之间的非谐性相互作用引起的.在直流偏压下,偶极子的运动受到了限制,从而使介电常数降低.基于这个理论,1961年Johnson^[9]提出了下面的公式试图从定量的角度加以解释

$$\frac{\epsilon_{\text{r app}}}{\epsilon_{\text{r (0)}}} = \left[1 + \alpha \epsilon_{\text{r (0)}}^3 E^2 \right]^{-1/3}, \quad (1)$$

其中, $\epsilon_{\text{r (0)}}$ 是静态下即无外加电场的介电常数值, $\epsilon_{\text{r app}}$ 是在直流偏压(E)下的介电常数值, α 是非谐性因子,用来衡量 Ti 离子之间的非谐性相互作用的程度. E^2 前面的系数,即 $\alpha \epsilon_{\text{r (0)}}^3 = \beta$ 可以定义为材料在直流强场下的功效系数, β 值越大,可调性也就越大.

从XRD结果得知 $\text{Ba}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{TiO}_3$ 和 $\text{BaZr}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ ($x=0.25, 0.3, 0.35, 0.4$)结构均呈立方钙钛矿结构,且均处于顺电相.我们将其实验值和理论值进行拟合,观察基于Devonshire的宏观相变理论得出的公式(1)是否可以适用于BST和BZT体系,以探讨 BaTiO_3 基陶瓷介电常数强场下非线性的机理.

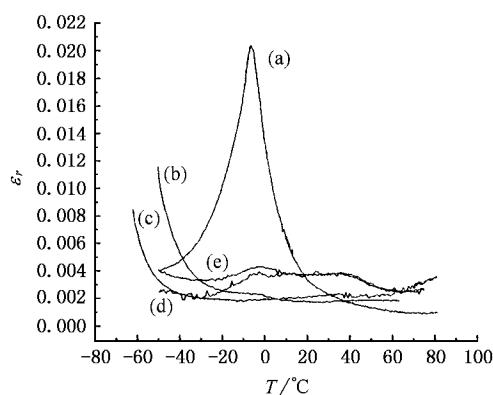
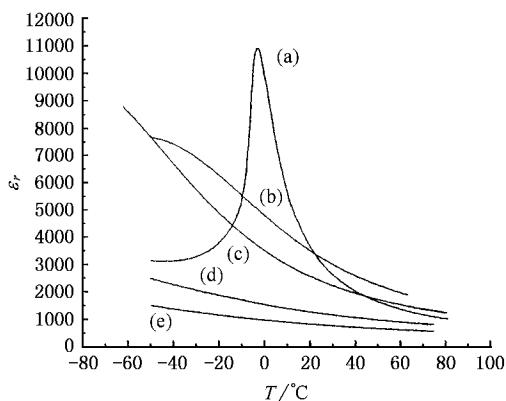


图 2 10 kHz 情况下 $\text{Ba}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{TiO}_3$ 和 $\text{BaZr}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ 陶瓷的介电温谱图 (a) $\text{Ba}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{TiO}_3$, (b) $\text{BaZr}_{0.25}\text{Ti}_{0.75}\text{O}_3$, (c) $\text{BaZr}_{0.3}\text{Ti}_{0.7}\text{O}_3$, (d) $\text{BaZr}_{0.35}\text{Ti}_{0.65}\text{O}_3$, (e) $\text{BaZr}_{0.4}\text{Ti}_{0.6}\text{O}_3$

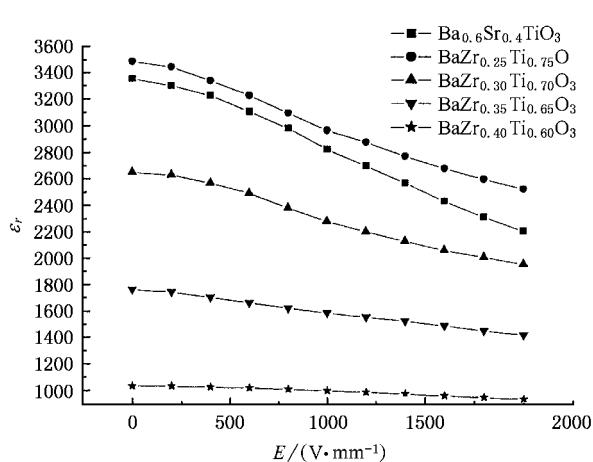
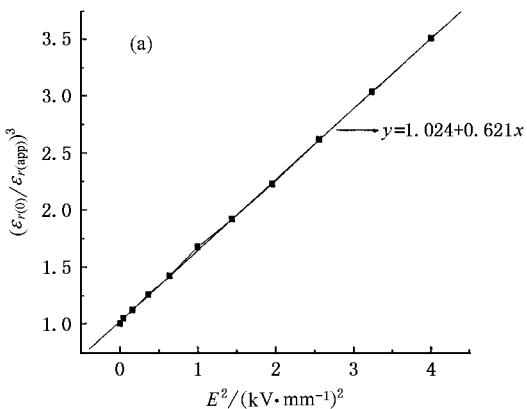


图 3 BST 和 BZT 陶瓷在 10 kHz 条件下介电常数随直流偏压的变化(室温)

为了使(1)式更容易拟合, 将(1)式进行简单的变形, 如(2)式所示:

$$y = 1 + bx, \quad (2)$$



其中 $y = \left(\frac{\epsilon_r(0)}{\epsilon_r(\text{app})} \right)^3$, $x = E^2$, $b = \alpha \epsilon_r^3(0)$. 图 4(a) 是 $\text{Ba}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{TiO}_3$ 室温下(顺电相)的拟合结果, 图 4(b) 为弛豫铁电体 $\text{BaZr}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ ($x = 0.25, 0.3, 0.35, 0.4$) 的拟合结果. 从拟合结果中可以看出对于 $\text{Ba}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{TiO}_3$, Johnson 公式拟合的很好, 这说明 Devonshire 的宏观相变理论适用于顺电相的 BST 体系, 强场下介电常数的非线性是由 Ti 离子之间的非谐性相互作用引起的, 这也和很多研究者的研究结果相一致^[4,5]. 而对于弛豫铁电体 $\text{BaZr}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ ($x = 0.25, 0.3, 0.35$), 图中呈现两个斜率不同的直线区域, 与(2)式预测的结果相偏离, 其原因可能是由于虽然其 T_{\max} 值远低于测试温度, 处于顺电相, 但是材料中存在极性微区, 这也是弛豫铁电体有别于正常铁电体的地方. 强场作用下, 纳米尺度的极性微区中的极性微畴逐渐长大, 导致极性微区的冻结与合并,

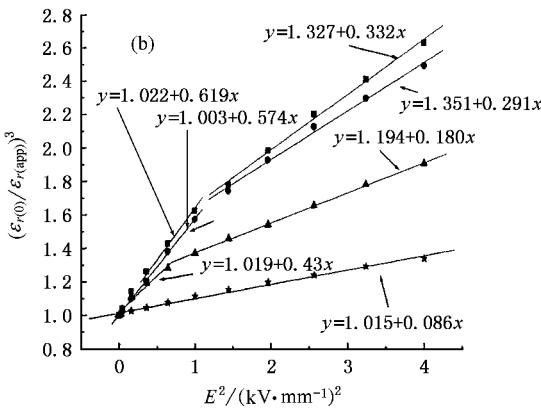


图 4 室温(顺电相) BST 和 BZT 陶瓷偏置电场下介电常数的实验值和基于公式(2)得出的理论值拟合的结果 (a) $\text{Ba}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{TiO}_3$, (b) ■ $\text{BaZr}_{0.25}\text{Ti}_{0.75}\text{O}_3$, ● $\text{BaZr}_{0.3}\text{Ti}_{0.7}\text{O}_3$, ▲ $\text{BaZr}_{0.35}\text{Ti}_{0.65}\text{O}_3$, ★ $\text{BaZr}_{0.4}\text{Ti}_{0.6}\text{O}_3$

使铁电-顺电畴壁面积减少, 畴壁运动等可逆极化贡献减少, 从而引起介电常数的下降^[7,11]。所以, 除了 Ti 离子之间的非谐性相互作用影响之外, 极性微区对于介电常数非线性也是有贡献的。这种额外贡献有些类似于 Chen Ang 等人在 Cd₂Nb₂O₇ 和 SrTiO₃ 体系中提出的相变温度附近极性团簇(Polar cluster)对介电常数非线性的额外贡献^[12]。随着场强的进一步增大, 极性微区的冻结与合并行为会趋向饱和, 它对可调性的贡献会减弱, 直至为零。这也是第二段直线的斜率(β)要低于第一段, 也即随着场强的增大, 单位电场下的介电常数的非线性(可调性)有所降低的原因。而对于 BaZr_{0.4}Ti_{0.6}O₃, 实验值与(2)式得出的实验值拟合的比较好, 这可能是因为其 T_{\max} 值远远低于测试温度, 极性微区对介电常数非线性的贡献可以忽略, 所以可以由 Devonshire 的宏观相变理论来解释。图中直线纵坐标的截距略偏离 1, 这可能是由于材料介电常数的不均匀和仪器误差所致。

上面讨论的是 BaTiO₃ 基陶瓷在顺电相下的介电常数非线性的机理, 为了更充分理解其机制, 有必要探讨它们在相变温度附近和铁电相的介电常数非线性机理, 找出影响介电常数随电场变化的关键因素。同样基于 Devonshire 的宏观相变理论, 研究者还提出了下面的公式从定量的角度来解释顺电相直流偏场下的介电常数非线性^[12]:

$$\epsilon(E) = \epsilon_1 - \epsilon_2 E^2 + \epsilon_3 E^4, \quad (3)$$

其中, $\epsilon(E)$ 是直流偏场下的介电常数, ϵ_1 是线性介电常数, ϵ_2 是非线性介电常数, ϵ_3 是高阶介电常数。我们以 Ba_{0.6}Sr_{0.4}TiO₃ 为研究对象, 以实验值与(3)式得出的理论值拟合为出发点, 探讨相变温度附近和铁电相的介电常数非线性机理。图 5、图 6 和图 7 分别为顺电相、居里温度附近和铁电相的实验值与(3)式得出的理论值拟合的结果。

从图 5 的拟合结果可以看出, 实验值和(3)式预测理论值拟合得相当好, 这再一次说明 Devonshire 的宏观相变理论可适用于顺电相的 BST 体系, 强场下介电常数的非线性是由 Ti 离子之间的非谐性相互作用引起的, 这和上面提到的用 Johnson 提出的(1)式进行拟合得出的结果相一致。

图 6(a)是 Ba_{0.6}Sr_{0.4}TiO₃ 居里温度附近电场强度范围在 0—1400V/mm 的拟合情况, (b)是场强在 800V/mm 以上的拟合情况。从图中可知, 低场下介电常数的非线性不能用(3)式进行拟合, 但是随着场强的提高, 当场强在 800V/mm 以上时, 由(3)式得出的

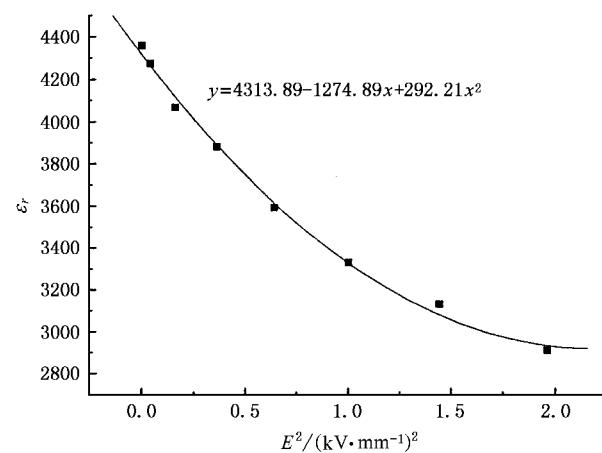


图 5 顺电相(15.5℃)Ba_{0.6}Sr_{0.4}TiO₃ 陶瓷直流偏置电场下的介电常数的实验值和基于(3)式得出的理论值拟合的结果

理论值与实验值吻合得就相当好了。我们知道材料的宏观性能与微观结构是相互关联的,微观结构决定着宏观性能,而宏观性能体现了材料的微观结构。由于 Ba_{0.6}Sr_{0.4}TiO₃ 相变峰有一定的弥散性, 如图 2 所示, 所以推测在居里温度附近, Ba_{0.6}Sr_{0.4}TiO₃ 是铁电相和顺电相共处的状态, 此时铁电相的畴主要是微畴。对于这一点在研究弥散相变时, 已经被很多研究人员所认可^[11,13]。当刚施加直流偏场时, 材料中铁电微畴中的偶极子转动受到限制以及畴壁的振动被钉扎, 从而降低了极化强度, 引起了介电常数的下降。而基于 Devonshire 的宏观相变理论提出的(3)式并没有考虑畴或偶极子的转动对介电常数非线性的贡献, 所以实验值不能用(3)式进行拟合。随着场强的增大, 铁电微畴对介电常数非线性的贡献会不断降低, 这与上面提到的极性微区对介电常数非线性的贡献相类似, 所以场强大于 800V/mm 时, 实验值与理论值拟合得就非常好。对于相变温度附近的介电常数非线性机理另一个解释是由 1961 年 Diamond 提出的^[10]。他认为由于电场导致材料相变温度升高, 使得部分晶粒由顺电态转变为铁电态, 从而导致介电常数的下降, 但是他否定了偶极子的转向对介电常数非线性贡献^[10]。我们认为居里温度附近的介电常数的非线性是由下面三个因素共同作用的结果: 1) 铁电微畴中偶极子转动受到限制以及畴壁的振动被钉扎(随着场强的增大不断减小); 2) 顺电相中 Ti⁴⁺ 的非谐性振动; 3) 电场导致了居里温度的升高, 部分晶粒由顺电态转变为铁电态, 从而引起介电常数下降。

图 7 的拟合结果显示强场下 Ba_{0.6}Sr_{0.4}TiO₃ 铁电

相介电常数非线性行为与相变温度附近相类似, 它进一步说明铁电畴确实对介电常数非线性是有贡献的, 而且随着电场强度的增大, 其作用会逐步减弱。此时, 由于材料处于铁电相, 所以此时的铁电畴主要是铁电宏畴。铁电宏畴对介电常数非线性的作用归结起来主要有三种: 1) 180°畴对介电常数非线性的贡献。强场作用下, 180°畴的夹持效应得以减弱, 使得介电常数增大^[14]。这一点 Drougard 等人在研究偏

场 BaTiO₃ 晶体介电常数非线性时曾有报道^[15]。2) 90°畴对介电常数非线性的贡献。如果测试的交流信号是平行于 *c* 轴方向的, 当施加的直流偏场方向沿 *c* 轴方向时, 平行于 *a* 轴的畴逐步转到平行于 *c* 轴方向, 而 $\epsilon_a > \epsilon_c$, 所以引起介电常数下降^[10]。3) 畴壁的振动对介电常数非线性的贡献。直流电场钉扎畴壁振动, 引起介电常数下降, 产生介电常数非线性(同样适用于铁电微畴)^[16]。

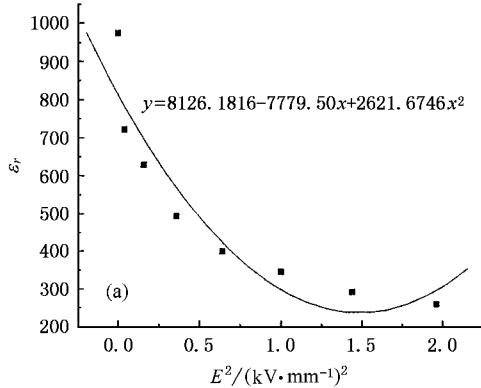


图 6 相变温度附近(-3°C) $\text{Ba}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{TiO}_3$ 陶瓷直流偏置电场作用下介电常数的实验值和基于(3)式得出的理论值拟合的结果 (a) 电场强度范围为 0—1400V/mm, (b) 电场强度范围在 800—1400V/mm

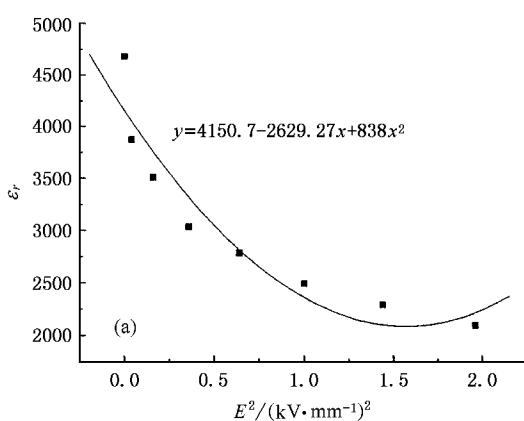
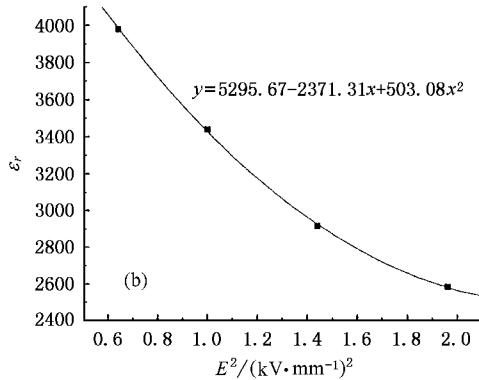


图 7 铁电相(-20°C) $\text{Ba}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{TiO}_3$ 陶瓷直流偏置电场作用下介电常数的实验值和基于(3)式理论值介电常数非线性的拟合结果 (a) 电场强度在 0—1400V/mm 范围, (b) 电场强度在 800—1400V/mm 范围

4. 结 论

$\frac{1}{[1 + \alpha \epsilon_{\text{r}(0)}^3 E^2]^{1/3}}$ 和 $\epsilon(E) = \epsilon_1 - \epsilon_2 E^2 + \epsilon_3 E^4$ 公式均可定量地解释 BST 体系顺电相的介电常数非线性行为。

1) 对于 BST 体系, 顺电相下介电常数的非线性可由 Devonshire 的宏观相变理论来解释, 在直流偏场作用下介电常数之所以会下降, 是由于 Ti^{4+} 之间的非谐性相互作用引起的。Johnson 公式 $\frac{\epsilon_{\text{r,app}}}{\epsilon_{\text{r}(0)}} =$

2) BST 体系在铁电相和居里温度附近的介电常数非线性除了 Ti^{4+} 之间的非谐性相互作用影响之外, 铁电畴(包括宏畴和微畴)对介电常数的非线性也有贡献。随着场强的增大, 铁电畴的贡献逐步减弱。

3) 对于弛豫铁电体 BZT, 由于材料在远高于 T_{\max} 的顺电相温度范围内存在极性微区, 在电场的作用下极性微区的冻结与合并, 引起介电常数下降, 这是

极性微区对介电常数非线性的额外贡献. 随着电场强度的增大和温度的上升, 极性微区的作用会有所降低, 直至为零.

- [1] Sengupta L C and Sengupta S 1997 *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr.* **44** 792
- [2] Feteria A, Dere K, Sinclair C et al 2004 *J. Am. Ceram. Soc.* **87** 1082
- [3] Flaviis F D 1997 *IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques* **45** 963
- [4] Outzourhit A and Trefny J U 1995 *J. Mater. Res.* **10** 1411
- [5] Liang X F, Wu W B and Men Z Y 2003 *Mat. Sci. Eng.* **B99** 366
- [6] Lu H Y 1990 *J. Am. Ceram. Soc.* **73** 3562
- [7] Tsurumi T, Yamamoto Y and Kakimoto H 2002 *J. Mater. Res.* **17** 755
- [8] Tang X G, Chew K H and Chan H L 2004 *Acta Materialia* **52** 5177
- [9] Johnson K M 1962 *J. Appl. Phys.* **33** 2826
- [10] Diamond H 1961 *J. Appl. Phys.* **32** 909
- [11] Feng Y J, Xu Z, Wei X Y et al 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 1255 (in Chinese) [冯玉军, 徐卓, 魏晓勇等 2003 物理学报 **52** 1255]
- [12] Chen A, Cross L E, Guo R et al 2000 *Appl. Phys. Lett.* **77** 732
- [13] Henning D 1982 *J. Am. Ceram. Soc.* **65** 539
- [14] Zhong W L 2000 *Physics of Ferroelectrics* (Beijing : Science Press) p350 (in Chinese) [钟维烈 2000 铁电物理学 (北京 科学出版社) p350]
- [15] Drougard M E 1954 *Phys. Rev.* **94** 1561
- [16] Li S P 1991 *J. Appl. Phys.* **69** 7219

Mechanism of nonlinear dielectric constant of BaTiO₃-based ceramics under high DC electric field^{*}

Liang Rui-Hong[†] Dong Xian-Lin Chen Ying Cao Fei Wang Yong-Ling

(Shanghai Institute of Ceramics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200050, China)

(Received 4 February 2005; revised manuscript received 14 March 2005)

Abstract

Ba_{0.6}Sr_{0.4}TiO₃ (BST) and Ba(Zr_xTi_{1-x})O₃ (BZT) ($x = 0.25, 0.3, 0.35, 0.4$) ceramics were prepared by traditional ceramic processing and their structural, dielectric properties as well as the mechanism of its nonlinear dielectric constant under dc electric field were systematically examined. The results show that the phenomenological theory of Devonshire can be applied to BST system when the material is in the paraelectric state, and the equations $\frac{\epsilon_{\text{app}}}{\epsilon_{(0)}} = \frac{1}{[1 + \alpha\epsilon_{(0)}^3 E^2]^{1/3}}$ and $\epsilon(E) = \epsilon_1 - \epsilon_2 E^2 + \epsilon_3 E^4$ can give a quantitative explanation of its nonlinear dielectric behavior under high DC electric field. where $\epsilon_{(0)}$ and ϵ_{app} are the dielectric constants under zero DC field and under the applied field respectively, α is the anharmonic coefficient, E is the strength of electric field, $\epsilon(F)$ is the dielectric constant under the applied field and $\epsilon_1, \epsilon_2, \epsilon_3$ is linear, nonlinear and high order dielectric constant respectively. When the BST system is in the ferroelectric or phase transition state, the domain and domain wall's extrinsic contributions to the nonlinear dielectric constant cannot be neglected, and the extrinsic contributions decrease with the increase of the strength of the electric field. For the relaxor-like BZT system, even if it is in paraelectric state, the extrinsic contribution of polar microregions to the nonlinear dielectric constant can be markedly observed. With the increase of the strength of the electric field and temperature, this contribution decreases.

Keywords : BST, BaZr_xTi_{1-x}O₃, tunability, nonlinear dielectric constant, DC bias

PACC : 7700, 7740, 7780D

^{*} Project supported by Funds of the Chinese Academy of Sciences for Science and Technology Innovation (Grant No. CXJJ-103).

[†] Corresponding author. E-mail : rainbow@mail.sic.ac.cn