

脉冲激光沉积法制备高温压电薄膜 0.20 BiInO₃-0.80PbTiO₃* (已撤稿)

王伟[†] 唐佳伟 王乐天 陈小兵

(扬州大学物理科学与技术学院, 扬州 225002)

(2013年7月26日收到; 2013年8月7日收到修改稿)

采用脉冲激光沉积法制备了 0.20BiInO₃-0.80PbTiO₃ (20BI-PT) 高温压电薄膜, 并与 0.15BiInO₃-0.85PbTiO₃ (15BI-PT) 样品进行了比较研究. X 射线衍射谱显示, 20BI-PT 样品 100 峰出现了明显的劈裂, 显示样品具有更高的四方对称性. FESEM 图显示, 20BI-PT 样品中出现了部分 111 取向的三角形晶粒. 20BI-PT 样品的铁电剩余极化 (P_r) 为 $\sim 28 \mu\text{C}/\text{cm}^2$, 矫顽场 (E_c) 为 $\sim 120 \text{ kV}/\text{cm}$, 相较 15BI-PT 样品, P_r 略有增加, 但同时 E_c 也有增加. 20BI-PT 样品的横向压电系数 ($e_{31,f}$) 约为 $-4.7 \pm 0.6 \text{ C}/\text{m}^2$, 和 15BI-PT 相比几乎一样. 介电温度谱显示, 20BI-PT 样品的居里温度比 15BI-PT 增加了约 30°C , 达 590°C , 且介电峰没有明显的频率依赖性. Rayleigh 分析显示, 20BI-PT 样品中内在本征因素及可翻转畴对介电非线性的贡献和 15BI-PT 基本相同, 但是外在因素的贡献没有 15BI-PT 的贡献大, 这可能与 20BI-PT 样品中晶粒 111 相对取向率较高有关.

关键词: 薄膜, 脉冲激光沉积, 铁电, 压电

PACS: 77.22.Ej, 77.55.fg, 77.84.-s

DOI: 10.7498/aps.62.237701

1 引言

现代工业如汽车、航空航天等需要能用于高温下的压电材料来做传感器和驱动器^[1,2]. 准同型相界 (MPB) 组分的锆钛酸铅 (PZT) 由于其居里温度 (T_c) 高达 $\sim 386^\circ\text{C}$ 而备受关注, 并因此而得到了广泛的应用^[3]. 从实用的角度来看, 通常压电材料的实用温度低于其居里温度的一半, 因此, PZT 很难应用在温度高于 200°C 的工作环境下. 根据钙钛矿材料的容限因子 (t) 与居里温度的关系, 近年来, 一种基于钛酸铅 (PT) 和含 Bi 元素的钙钛矿材料的固熔体材料由于展现出更高的居里温度而引起广泛关注^[4]. 在这种材料 Bi(Me)O₃-PbTiO₃ (Me = Sc, In, Y, Yb 等) 体系中, Bi(Me)O₃ 组元由于具有较低的 t 因子而表现出更高的 T_c . 考虑到 BiScO₃ 具有较小的 $t = 0.907$, BiScO₃-PbTiO₃ (BS-PT) 体系的陶瓷和薄膜材料都得到了广泛的研究^[5-7]. 实验表明, BS-PT 的 T_c 高达 $\sim 450^\circ\text{C}$,

具有和处于 MPB 的 PZT 可相比拟的压电和介电性能. 并且, 第一性原理的计算表明, BS-PT 体系的内在铁电和压电性能比目前的实验结果更好^[8]. 然而, Sc 元素价格昂贵阻碍了这一体系的广泛应用. 作为另外一种选择, $x\text{BiInO}_3-(1-x)\text{PbTiO}_3$ ($x\text{BI-PT}$) 受到大家的关注, 一方面因为 In 元素价格比 Sc 便宜, 另一方面, BiInO₃ 具有更大的 $t = 0.884$. Duan 等人分别采用固相法和溶胶-凝胶法制备了纯相的 $x\text{BI-PT}$ 陶瓷材料^[9], 他们的研究表明, 对于溶胶-凝胶法制备的粉末, BiInO₃ 组分比最大可以到 $x = 0.25$; T_c 和四方晶相畸变随着 x 从 0 增加到 0.20 而迅速上升, 到 $x = 0.20$ 时, 居里温度达到 582°C . Zhang 等人也报道了 Nb 掺杂的 15BI-PT 和 20BI-PT 陶瓷的介电和压电性能, 结果显示, Nb 掺杂量为 1.5 mol% 的 15BI-PT 的压电系数 d_{33} 和 d_{15} 分别达到了 $\sim 60 \text{ pC}/\text{N}$ 和 $\sim 85 \text{ pC}/\text{N}$ ^[10]. 利用 PbTiO₃ 作为钙钛矿结构模板的种子层, Ko 等用化学溶液沉积法 (CSD) 制备了 $0.10 \leq x \leq 0.35$ 的 $x\text{BI-PT}$ 薄膜; 对于 15BI-PT, 其横向压电系数 $e_{31,f}$

* 国家自然科学基金 (批准号: 51072177) 和江苏省教育厅自然科学基金基础研究 (批准号: 08KJB140011) 资助的课题.

[†] 通讯作者. E-mail: wangwei@yzu.edu.cn

为 $-2.7 \pm 0.3 \text{ C/m}^2$, 对于 $0.10 \leq x \leq 0.20$ 的薄膜材料, 其 T_c 值在 $550 \text{ }^\circ\text{C}$ 以上^[11]. 最近, Lee 等利用脉冲激光沉积法 (PLD) 制备了掺有 0.5 mol\%Mn 元素的 15BI-PT 薄膜, 该薄膜的 $e_{31,f}$ 为 $-7.1 \pm 0.6 \text{ C/m}^2$, 同时其 T_c 也高于 $550 \text{ }^\circ\text{C}$ ^[12].

然而, 到目前为止, 文献中仅仅报道了 PLD 法制备的 15BI-PT 的薄膜材料的铁电、介电和压电性能. PLD 法制备的其他组分的 x BI-PT 尚未见报道. 同时 $x \geq 0.20$ 组分的 BI-PT 材料的铁电、介电和压电性能 (无论是陶瓷块体还是薄膜), 都未见报道. 这主要是由于高于 0.15 的 x BI-PT 材料的热力学结构稳定性较差的原因. 同时, 目前对 x BI-PT 材料的 MPB 尚存在不同看法: 密度泛函理论的计算表明 x BI-PT 的 MPB 可能在 $x=0.33$ 附近^[8]; 而实验结果更倾向于 MPB 落在 $0.05 \leq x \leq 0.15$ 的范围内^[13]. 因此, 在更宽的 BI 含量范围内制备 x BI-PT 薄膜材料并系统表征其铁电、压电和介电性能将有助于我们增加对该材料系列的认识.

本文中, 用 PLD 法在 PT 种子层上沉积了含有 0.5 mol\% Mn 的 15BI-PT 和 20BI-PT 的薄膜材料. 加入 Mn 主要是减小材料的漏电流和方便极化. 研究了材料的微结构、铁电、介电和压电性能. 同时, 用 Rayleigh 方法分析了材料的介电非线性.

2 实验

采用溶胶-凝胶法制备摩尔浓度为 0.15 mol/L 的 PbTiO_3 溶液, 旋涂在 $\text{Pt/Ti/SiO}_2/\text{Si}$ 基片上, 形成种子层. 为了补偿 Pb 的挥发, Pb 过量 40 mol\% . 基片上的 PbTiO_3 薄膜为 001 取向. 用 PLD 方法将 15BI-PT 和 20BI-PT 薄膜沉积到种子层基片上, KrF 激光器的能量密度为 $1.6\text{--}1.8 \text{ J/cm}^2$, 频率为 10 Hz . 陶瓷靶材经由固相法烧制, PbO 过量 10 wt\% , 0.5 mol\% 的 Mn 作为添加剂以降低材料的漏电流. 先将沉积腔抽真空至 10^{-7} Torr ($1 \text{ Torr} = 1.33 \times 10^2 \text{ Pa}$), 然后注入 10% 臭氧和 90% 氧气的混合气体, 沉积工作气压为 100 mTorr . 基片温度为 $585\text{--}595 \text{ }^\circ\text{C}$ (随 BI 含量高而提高). 沉积时间为 20 min . 薄膜的晶体结构和取向采用 X 射线衍射仪 (XRD, PANalytical X'pert) 来表征. 薄膜的表面和断面形貌采用场发射扫描电镜来观察 (FE-SEM, LEO-1530).

采用光刻法磁控溅射直径为 $200 \text{ }\mu\text{m}$ 的 Pt 顶电极, 形成电容器结构以进行电学性能的测量. 用

AixAcct 铁电模块 (TF2000 analyzer) 测量材料的电滞回线. 用 HP4274A 配合温控装置测量材料的介电性能. 横向压电系数 $e_{31,f}$ 采用晶元弯曲法测量^[14].

3 结果与讨论

图 1 所示为 x BI-PT 的 XRD 谱. 可见在仪器测量精度范围内, 样品为 001_{pc} 择优取向的单相钙钛矿结构 (这里 pc 下标代表立方晶轴). 图 1 的插图分别是 001 峰的放大图和 20BI-PT 样品在 001 峰处的分峰拟合图. 衍射谱采用基片中的 Si 衍射峰定标. 随着 BI 含量 x 从 0.15 到 0.20, 衍射峰 001, 002 和 111 的峰位向低衍射角方向移动, 表明样品晶格常数随着 x 的增加而增加 (拟合 XRD 衍射峰位得知: 20BI-PT 的晶格常数为 0.3981 nm , 15BI-PT 的晶格常数为 0.3965 nm). 这里晶格常数的增加行为以及变化率和文献 [10] 报道的溶胶-凝胶法制备的样品很相似. 由于 In^{3+} 的离子半径 (0.080 nm , $\text{CN} = 6$) 比 Ti^{4+} (0.061 nm , $\text{CN} = 6$) 的大^[15], 因此, BI 组分的增加会导致样品晶格常数的增加. 对于 $h00$ 峰, 15BI-PT 样品表现出明显的肩部不对称, 而对于 20BI-PT 样品, 这一现象更为明显. 图 1 的插图给出了 20BI-PT 样品的 100 峰的双峰拟合图, 显示出 20BI-PT 样品的四方结构对称性更为明显. 从 XRD 图中可以看出, 20BI-PT 样品的 111 相对取向率 (I_{111}/I_{100}) 较之 15BI-PT 的样品有所提高, 从 $\sim 55\%$ 提高到 $\sim 70\%$ (多样品的平均值).

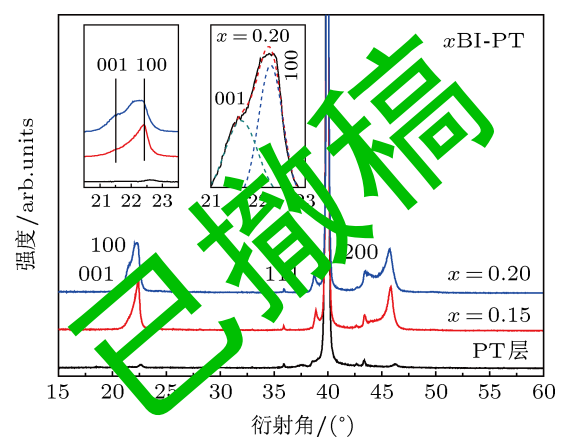


图 1 x BI-PT 的 XRD 谱

图 2 所示为 15BI-PT 和 20BI-PT 薄膜样品的表面形貌和断面图. 两种样品的表面都呈现为密堆积的多面体晶粒, 没有明显的断裂、空洞等生长缺陷, 显示样品的生长条件适合, 结晶良好. 对于 15BI-PT 样品, 晶粒更为致密均匀, 晶粒大小约

为 200 nm. 对于 20BI-PT 薄膜样品, 有部分呈三角形形状晶粒镶嵌在致密堆积的其他多面体晶粒中. Li 等报道, 111_{pc} 择优取向的 BiFeO₃ 晶粒具有相似的三角形形貌^[16], 因此, 20BI-PT 薄膜样品中出现的三角形晶粒可能和样品中 111 取向的晶粒有关, 这一现象也对应 XRD 图中 111 取向率的提高. 15BI-PT 和 20BI-PT 薄膜的横断面显示, 两种样品和种子层以及种子层和基底之间界面清晰, 未见明显的相互渗透扩散^[17]. 15BI-PT 样品和 20BI-PT 样品的膜厚分别为 ~580 nm 和 ~668 nm (多个样品的平均值), 可见 20BI-PT 薄膜样品生长速率要高于 15BI-PT^[18].

图 3 给出了 15BI-PT 和 20BI-PT 薄膜的电滞回线图. 插图给出了 15BI-PT 样品在逐渐增加的外场下的电滞回线叠加图. 两种样品在约 700 kV/cm 外场下均已经达到饱和, 矩形度良好, 相比之下, 20BI-PT 样品能承受更高的外场, 因而能展现出更为明显的饱和特征 (回线尖角更为细长). 在 ~700 kV/cm 外场下, 对于 15BI-PT 的样品, 剩余极化 (P_r) 和矫顽场 (E_c) 分别为 ~24 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ 和 ~93 kV/cm; 对于 20BI-PT 样品, P_r 为 ~28 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$, E_c 为 ~120 kV/cm. 20BI-PT 样品相较 15BI-PT 样品, 在略微增加 P_r 的同时, 也增加了 E_c .

将两种样品在 ~260 kV/cm 外场下室温极化 20 min 后, 测量它们的横向压电系数 ($e_{31,f}$). 15BI-PT 和 20BI-PT 的 $e_{31,f}$ 分别为 -4.5 ± 0.5 和 $-4.7 \pm 0.6 \text{ C}/\text{m}^2$. Ko 等用溶胶-凝胶法制备的 15BI-PT 薄膜的 $e_{31,f}$ 为 $-2.7 \pm 0.3 \text{ C}/\text{m}^2$, 而 Lee 等用 PLD 法制备的 15BI-PT 薄膜的 $e_{31,f}$ 为 $-5.9 \pm 0.5 \text{ C}/\text{m}^2$ ^[11,12]. 考虑到 Lee 等报道的样品, 其极化电场高于我们的样品, 而且 Lee 等采用了在 650 °C 下氧气氛退火的处理手段, 我们的样品的 $e_{31,f}$ 值和 Lee 等报道的结果可相比拟. 从我们的样品结果看, 20BI-PT 样品的 $e_{31,f}$ 值在误差范围内和 15BI-PT 的样品相比较几乎没有变化, 也展现了较好的压电性能. 综合铁电剩余极化和横向压电系数, 20BI-PT 样品和 15BI-PT 一样, 也具有较好的铁电压电性能.

图 4 给出了 15BI-PT 样品和 20BI-PT 样品在 1 MHz 下介电常数和介电损耗 ($\tan \delta$) 的温度谱. 插图为相应样品在不同频率下的介电常数 (ϵ_r) 随着温度的变化图谱. 在室温下, 两种样品的 ϵ_r 值约为 460—490, 两种样品的 $\tan \delta$ 值低于 0.02. 两种样品的介电峰都不随频率的增加而表现出明显的频率依赖性. 整体介电峰的形状和 Lee 和 Ko 等的报道相似^[11,12]. 在 ϵ_r - T 曲线中, T_c 可以从介电常数的最

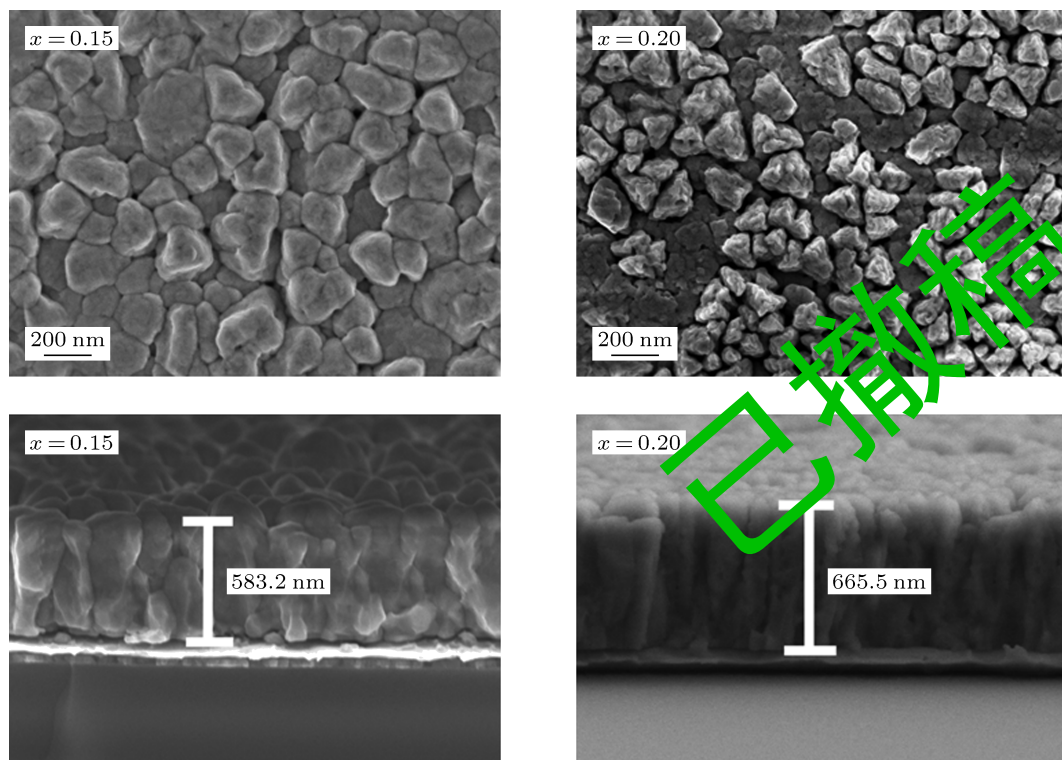


图 2 15BI-PT 和 20BI-PT 薄膜样品的表面形貌和断面图

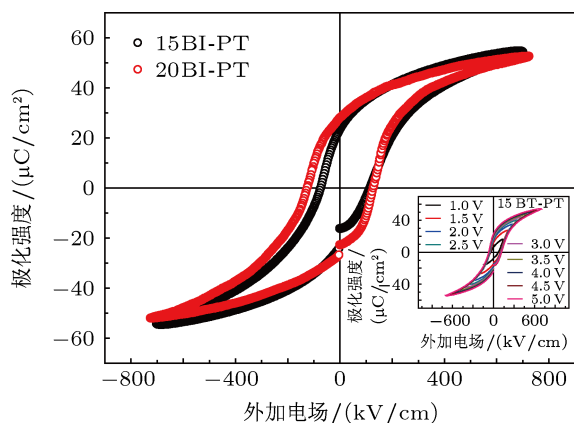


图3 15BI-PT 和 20BI-PT 薄膜的电滞回线图

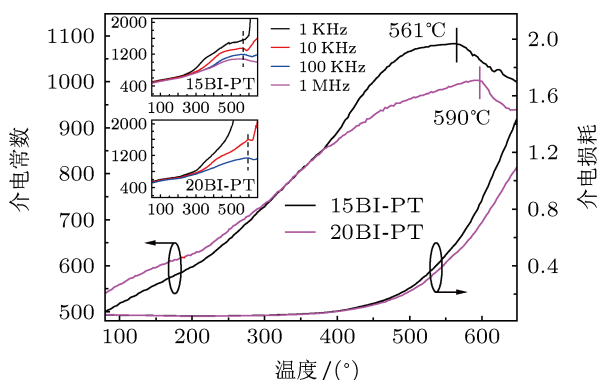


图4 15BI-PT 样品和 20BI-PT 样品在 1 MHz 下介电常数和介电损耗 ($\tan \delta$) 的温度谱. 插图分别为相应样品在不同频率下的介电常数 (ϵ_r) 随着温度的变化图谱

大值所对应的温度来确定. 15BI-PT 和 20BI-PT 样品的 T_c 分别为 561°C 和 590°C , 20BI-PT 样品相对 15BI-PT 样品来说, T_c 增加了约 30°C . 两种样品的介电峰都呈现明显的宽化, 且 20BI-PT 的宽化峰更为明显, 这种介电峰的宽化行为和许多因素有关, 诸如晶粒大小, 缺陷浓度, 薄膜内应力以及组分的不均匀分布等 [19,20]. 20BI-PT 样品在 $\sim 400^\circ\text{C}$ 观察到一个小肩峰, 这一现象可能与该温度附近发生的铁性相变有关 [21].

为了定量分析材料的介电常数和压电响应中所包含的内在因素和外在因素的贡献, 我们对样品进行了在不同频率和外加交变电场下介电常数的测量. 图 5 所示为 15BI-PT 和 20BI-PT 样品在 100, 1000 和 10 kHz 下介电常数随外加交变电场的变化关系图. 图中可见, 从零外场一直到大约二分之一矫顽场大小的外场区间内, 两种样品的介电常数和外加场之间呈线性关系. 图 6 给出了两种样品的介电常数在 1 kHz 下随交变电场的变化谱以及相应的拟合曲线对比图.

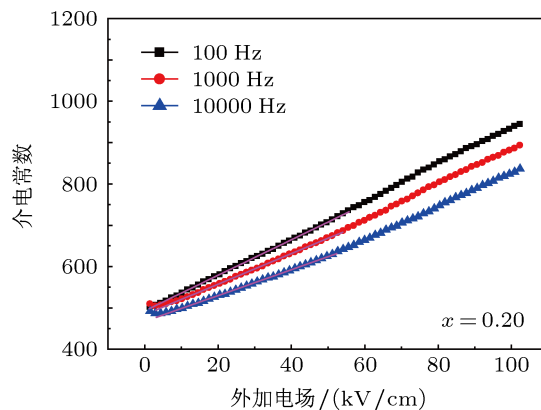
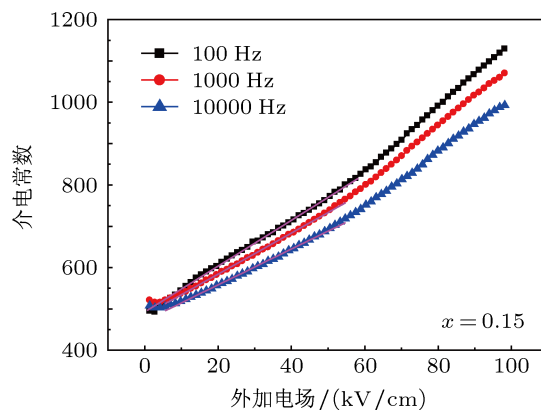


图5 15BI-PT 和 20BI-PT 样品在 100, 1000 和 10 kHz 下介电常数随外加交变电场的变化关系图

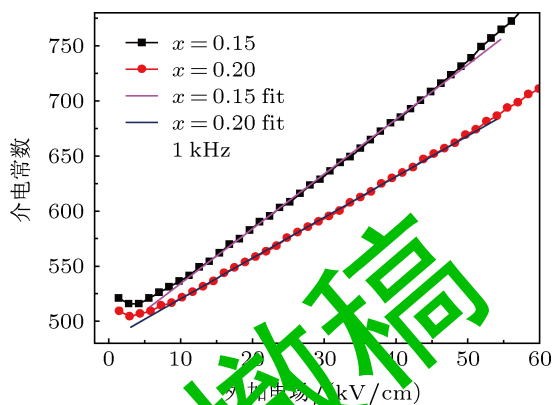


图6 15BI-PT 和 20BI-PT 样品在 1 kHz 下介电常数随交变电场的变化谱以及相应的拟合曲线对比图

这种线性关系表明: 这两种薄膜样品均服从 Rayleigh 定律 [22,23]. Rayleigh 定律对介电常数的一般刻画可以表示为

$$\epsilon' = \epsilon'_{\text{init}} + \alpha' E_0,$$

这里 ϵ' , ϵ'_{init} , α' 和 E_0 分别表示介电常数实部、可翻转畴及内在因素对介电常数的贡献、不可翻转 Rayleigh 系数以及外加交变电场的振幅. 两种样品的相关 Rayleigh 分析的参数汇总在表 1.

表1 xBI-PT 样品的 Rayleigh 分析结果

| x | $\alpha/(\text{cm/kV})$ | ϵ'_{init} | $\alpha'/\epsilon'_{\text{init}}/(\text{cm/kV})$ |
|------|-------------------------|---------------------------|--|
| 0.15 | 5.0 ± 0.3 | 485 ± 6 | 0.010 ± 0.0007 |
| 0.20 | 3.7 ± 0.2 | 483 ± 5 | 0.008 ± 0.0008 |

由表可见, 15BI-PT 和 20BI-PT 样品的低场 ϵ'_{init} 值在误差范围内几乎相同 (~ 485), 显示对于这两种样品, 虽然 BI 的含量不同, 但是材料内部可翻转畴以及内在本征的因素对材料介电常数的贡献基本相同. 从材料 XRD 谱计算出的两种材料的晶格常数来看, 20BI-PT 样品的晶格常数略有增加, 这样由于晶格常数增加所带来的对介电常数的内在本征贡献和由于 BI 组分变化所带来的可翻转畴对介电常数的贡献相互抵消. 介电常数的非线性同时包括材料内在和外在的贡献, 但是在绝大多数情况下, 主要的贡献来着外在的贡献^[20]. Rayleigh 系数 α' 以及不可翻转畴和可翻转畴贡献的比值 $\alpha'/\epsilon'_{\text{init}}$ 从 15BI-PT 到 20BI-PT 时均出现了明显的下降, 显示 15BI-PT 样品中外在因素对介电非线性的贡献要大于 20BI-PT 样品. 从样品的 XRD 和 FESEM 图可知, 15BI-PT 样品主要是 001 取向的四方相, 其 111 相对取向率没有在 20BI-PT 样品中的高, 因而导致

了 20BI-PT 样品中对介电非线性的外在因素贡献的减小. 0.20BI-PT 样品中矫顽场的增加也印证了这一点.

4 结论

由于目前 0.20BiInO₃-0.80PbTiO₃ (20BI-PT) 高温压电薄膜的横向压电系数尚未见报道, 本文采用脉冲激光沉积法制备了该薄膜, 并与 0.15BiInO₃-0.85PbTiO₃ (15BI-PT) 样品进行了比较研究. X 射线衍射谱显示, 20BI-PT 样品 100 峰出现了明显的劈裂, 显示样品具有更高的四方对称性. FESEM 图显示, 20BI-PT 样品中有部分三角形晶粒镶嵌其中, 这是材料中 111 取向的晶粒. 两种材料的铁电剩余极化和横向压电系数没有明显的差异, 20BI-PT 样品的矫顽场比 15BI-PT 的大, 约为 ~ 120 kV/cm. 变温介电常数的测量显示, 20BI-PT 样品的居里温度比 15BI-PT 增加了约 30 °C, 达 590 °C. 且介电峰不随测量频率的不同而明显移动. Rayleigh 分析显示, 20BI-PT 样品中内在本征因素及可翻转畴对介电非线性的贡献和 15BI-PT 基本相同, 但是外在因素的贡献没有 15BI-PT 的贡献大, 这可能和 20BI-PT 样品中 111 相对取向率高有关.

- [1] Randall C A, Eitel R E, Stringer C, Song T H, Zhang S J, Shrout T R 2004 *High Performance, High Temperature Perovskite Piezoelectric Ceramics in Piezoelectric Single Crystals* edited by S. Trolier-McKinstry (The Pennsylvania State University, University Park, 2004)
- [2] Turner R C, Fuierer P A, Newnham R E, Shrout T R 1994 *Appl. Acoust.* **41** 299
- [3] Liu P, Yang T Q, Zhang L Y 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 2300 (in Chinese) [刘鹏, 杨同青, 张良莹 2000 物理学报 **49** 2303]
- [4] Eitel R E, Randall C A, Shrout T R 2001 *Jpn. J. Appl. Phys. Part 1* **40** 5999
- [5] Eitel R E, Randall C A, Shrout T R 2002 *Jpn. J. Appl. Phys. Part 1* **41** 2099
- [6] Nino J C, Trolier-McKinstry S 2004 *J. Mater. Res.* **19** 568
- [7] Wen H, Wang X, Zhong C, Shu L, Li L 2007 *Appl. Phys. Lett.* **90** 202902
- [8] Grinberg I, Suchomel M R, Davies P K, Rappe A M 2005 *J. Appl. Phys.* **98** 094111
- [9] Duan R, Speyer R F, Alberta E, Shrout T R 2004 *J. Mater. Res.* **19** 2185
- [10] Zhang S, Xia R, Randall C A, Shrout T R, Duan R, Speyer R F 2005 *J. Mater. Res.* **20** 2067
- [11] Ko S W, Yeo H G, Trolier-McKinstry S 2009 *Appl. Phys. Lett.* **95** 162901
- [12] Lee S Y, Ko S W, Lee S, Trolier-McKinstry S 2012 *Appl. Phys. Lett.* **100** 212905
- [13] Qin B, Chen Y, Jiang Y, Xue X, Xiao D, *et al.* 2007 *Proceedings of the 16th IEEE International Symposium on Applications of Ferroelectric* 616-617
- [14] Wilke R H T, Moses P, Jousse P, *et al.* Trolier-McKinstry S 2012 *Sensors and Actuators A* **172** 157
- [15] Shannon R D 1976 *Acta Cryst.* **32** 571
- [16] Li Y, Yang Y, Yao J, *et al.* Wang L, Li J, Viehland D 2012 *Appl. Phys. Lett.* **101** 022905
- [17] Sun P N, Cui L, *et al.* Q 2009 *Chin. Phys. B* **18** 1658
- [18] Yang N, Chen G H, Zhang Y 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 2225 (in Chinese) [杨宁, 陈光华, 张阳 2000 物理学报 **49** 2225]
- [19] Shimakawa Y, Tsubo Y, Nakagawa Y, Goto S, Kamiyama T, Asano H, Izumi F 2000 *Phys. Rev. B* **61** 6559
- [20] Noguchi Y, Miwa I, Goshima Y, Miyayama M 2000 *Jpn. J. Appl. Phys.* **39** L1259
- [21] Gharb N B, Trolier-McKinstry S 2005 *J. Appl. Phys.* **97** 064106
- [22] Ihlefeld J F, Shelton C T 2012 *Appl. Phys. Lett.* **101** 052902
- [23] Damjanovic D, Demartin M 1996 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **29** 2057

High-temperature piezoelectric thin films of $0.20\text{BiInO}_3\text{-}0.80\text{PbTiO}_3$ deposited by pulsed laser deposition*

Wang Wei[†] Tang Jia-Wei Wang Le-Tian Chen Xiao-Bing

(College of Physical Science and Technology, Yangzhou University, Yangzhou 225002, China)

(Received 26 July 2013; revised manuscript received 7 August 2013)

Abstract

High-temperature piezoelectric thin films of $0.20\text{BiInO}_3\text{-}0.80\text{PbTiO}_3$ (20BI-PT) were prepared via pulsed laser deposition and investigated by comparison with $0.15\text{BiInO}_3\text{-}0.85\text{PbTiO}_3$ (15BI-PT). XRD patterns show that (100) peak of 20BI-PT has been split, indicating a higher tetragrality than in 15BI-PT. FESEM images reveal some triangular grains corresponding to [111]-oriented grains in 20BI-PT. The remanent polarization (P_r) and coercive field (E_c) of 20BI-PT are $\sim 28 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ and $\sim 120 \text{ kV}/\text{cm}$, respectively. It is shown that the transverse piezoelectric coefficient $e_{31,f}$ keeps almost the same in 20BI-PT and 15BI-PT. The temperature dependence of dielectric permittivity in 20BI-PT reveals a higher Curie temperature ($590 \text{ }^\circ\text{C}$) than that in 15BI-PT and no apparent frequency dependence is detected. Rayleigh analyses are performed to identify the extrinsic contributions to dielectric nonlinearity for different x . It is seen that $x = 0.15$ exhibits greater extrinsic contributions to dielectric nonlinearity than the other compositions.

Keywords: thin films, pulsed laser deposition, ferroelectricity, piezoelectricity

PACS: 77.22.Ej, 77.55.fg, 77.84.-s

DOI: 10.7498/aps.62.237701

已撤稿

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 51072177), and the Natural Science Foundation of the Higher Education Institutions of Jiangsu Province, China (Grant No. 08KJB140011).

[†] Corresponding author. E-mail: wangwei@yzu.edu.cn