

烧结气氛对 BNT-BKT-ST 薄膜结构和性能影响^①

商鑫亭 艾彩娇 顾雅欣 雒金城 李伟

(聊城大学 材料科学与工程学院, 山东 聊城 252059)

摘要 压电薄膜具有优异的压电性能、铁电性能和光学非线性性能,被广泛的应用于存储器、微传感器和微驱动器等领域中.采用溶胶-凝胶法制备了 $0.95(0.8\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3-0.2\text{Bi}_{0.5}\text{K}_{0.5})\text{TiO}_3-0.05\text{SrTiO}_3$ (BNT-BKT-ST) 无铅压电薄膜,并在氧气气氛和氮气气氛下分别对薄膜进行了烧结处理,研究了烧结气氛对其结构、漏导、介电、压电和铁电性能的影响.阐明了通过烧结气氛控制薄膜微观结构,从而调控薄膜的电学性能的物理机制.结果表明:与氮气气氛相比,在氧气气氛下烧结获得的 BNT-BKT-ST 薄膜具有更大的晶粒尺寸,更致密的显微结构;氧气气氛有效抑制了在晶粒界面,薄膜和衬底界面氧空位 O^{2+} 和缺陷的形成;极大降低了 BNT-BKT-ST 薄膜漏导 ($J=1.3\times 10^{-7}\text{A}/\text{cm}^2$);有效提高了 BNT-BKT-ST 薄膜的介电性能 ($\epsilon=470, \eta=49\%$),铁电性能 ($2P_r=14\ \mu\text{C}/\text{cm}^2$) 和压电性能 ($d_{33,r}=80\text{pm}/\text{V}$).

关键词 钛酸铋钠;溶胶-凝胶;烧结气氛;压电性能;介电性能

中图分类号 O646

文献标识码 A

压电材料能够实现机械能和电能之间的相互转换,具有优异的铁电性能和介电性能,因此广泛的应用于马达、声呐、传感器、存储器等领域^[1]. $\text{Pb}(\text{Zr}_{1-x}\text{Ti}_x)\text{O}_3$ (PZT) 等铅基压电材料,在其准同型相界 (MPB) 附近具有优异的电学性能和低廉的价格优势,目前在商业使用上仍占有支配地位.然而,传统铅基压电材料的主要原料为 PbO ,使得材料在制备、使用及废弃过程中造成环境污染,危害人类健康.近年来,随着环境保护和人类社会可持续发展的需求,研发环境友好压电材料迫在眉睫^[2,3]. 1960 年 Smolenski 等发现的 A 位复合钙钛矿铁电体-钛酸铋钠后,钛酸铋钠得到了广泛的研究.钛酸铋钠室温下属于三方晶系,具有良好的铁电性,它的剩余极化强度 $P_r=38\ \mu\text{C}/\text{cm}^2$,室温介电常数 ϵ_r 为 240-400,居里温度为 320°C .

近期大量研究表明,在 BNT 基体中引入 BaTiO_3 (BT)、 SrTiO_3 (ST)、 $(\text{K}, \text{Na})\text{NbO}_3$ (KNN) 等形成新型 MPB 二元或三元体系固溶体,可以产生极高的电致应变 ($0.45\%-0.48\%$)^[4-6]. 在其 MPB 附近三方铁电相 (R3c) 和弛豫立方相 (P4bm) 共存,具有与铅基弛豫铁电体相似的弛豫性,这是产生高电致应变的本征原因^[7,8]. 另外,极性纳米微区 (PNRs) 存在于 MPB 中,纳米电畴和亚微米的片状电畴存在于 MPB 的两相结构中,PNRs 的存在导致 BNT 具有弛豫特性^[9,10]. 在外加电场的作用下电畴运动是产生高电致应变的外部原因.在 BNT 中的 MPB 对外界刺激敏感,在温度变化和电场变化等外界条件变化时,晶体结构和电畴结构都会随着外界条件变化而变化^[11,12]. BNT 基压电材料的大量研究工作集中在通过改变化学成分和合成工艺制备高性能陶瓷,从而研究其 MPB 对压电性能的影响.

薄膜材料在高频医学超声成像、能量收集、微流量控制等微机电系统 (MEMS) 领域有巨大的应用前景,然而 BNT 基薄膜材料的研究落后于块体材料,其主要的挑战是如何调控工艺生长出高质量的薄膜^[13,14]. BNT 基薄膜高温处理过程中 Bi^{3+} 等离子容易挥发使得 A 位空缺,形成大量氧空位,导致薄膜漏导增大,不能胜任高电场条件,从而不能表现优异的电学性能^[15]. 为了克服此问题,目前较多的研究是,

① 收稿日期:2018-06-20

基金项目:国家自然科学基金项目(51502127);聊城大学科技文化创新基金项目(26312161907)资助

通讯作者:李伟,男,汉族,博士,副教授,研究方向:光电功能材料, E-mail: liwei@luc.edu.cn.

按照非化学计量比增加 A 位元素的含量以补偿其高温时的损失;在晶格中添加适量的锰、稀土等变价离子掺杂物,从而有效抑制氧空位的产生;较大的晶粒也有利于产生高的电致应变,因此提高烧结温度,延长烧结时间,或两部烧结的研究也受到了关注^[16,17]. 目前烧结气氛对薄膜结构和性能影响的研究鲜有见闻. 在本研究中,利用溶胶-凝胶法在氧气和氮气气氛下烧结制备了 BNT-BT-ST 薄膜,研究不同烧结气氛对薄膜结构和电学性能的调控作用. 为制备高性能、低漏导 BNT 基薄膜提供了新的研究思路和方法.

1 实验

本实验中采用传统溶胶-凝胶法在 Pt(111)/Ti/SiO₂/Si 衬底上制备了 0.95(0.8Bi_{0.5}Na_{0.5}TiO₃-0.2Bi_{0.5}K_{0.5})TiO₃-0.05SrTiO₃ 薄膜. 按化学计量比将乙酸钠(99.0%, Alfa Aesar)、乙酸钾(99.0%, Alfa Aesar)、乙酸铋(98.0%, Alfa Aesar)和硝酸铋(98.0%, Alfa Aesar)称量好后加入冰醋酸(99.8%, 沪试),加热搅拌 60 min. 然后加入钛酸四丁酯(97.0%, Alfa Aesar)、乙酰丙酮(99.0%, 沪试)和乙二醇乙醚(99.0%, 沪试)的混合溶液,搅拌 60 min,即可获得澄清透明的钛酸铋钠溶胶,静置 24 h 充分水解后待用. 采用旋转涂敷的方法将前驱体溶液涂敷在衬底上,匀胶条件为 3 000 转/min 的高速旋转,时间为 20 s. 每层 400℃ 预处理 10 min,最后在氧气气氛和氮气气氛中 750℃ 退火 30 min,薄膜厚度为 400 nm.

采用 Bruker Advanced D8 X 射线衍射仪(Cu 靶 K α 线, X 射线波长 $\lambda=1.5406 \text{ \AA}$)分析薄膜样品的相结构. 采用 Carl Zeiss, Merlin compact 场发射扫描电子显微镜观察样品的微观形貌. 采用 Agilent 4294 高精度 LCR 仪测试薄膜样品的介电响应,测试频率为 1 kHz-2 MHz,测试温度为室温;采用 Keithley 6517A 测试薄膜样品的漏电流;电滞回线(*P-E*)曲线是通过铁电测试仪(Precision Premier II, USA)完成;采用日本精工 SII 公司 SPA 400, SPI3800N 原子力显微镜测试薄膜的压电响应.

2 结果与讨论

2.1 结构调控分析

图 1(a)为不同气氛烧结制得的 BNT-BKT-ST 薄膜在衍射角 $2\theta=20^\circ-60^\circ$ 范围内的 X 射线衍射(XRD)谱. 由图中可以看出所有的薄膜都呈现单一钙钛矿结构,没有杂相出现,表明在热处理过程中薄膜形成了均一固溶体. 在氮气气氛下和氧气气氛下都能烧结得到结晶良好的薄膜,其原因在于单层热处理过程中,样品已经开始形成结晶,后期热处理使得薄膜结晶更加充分. 图 1(b,c)为不同气氛烧结制得的

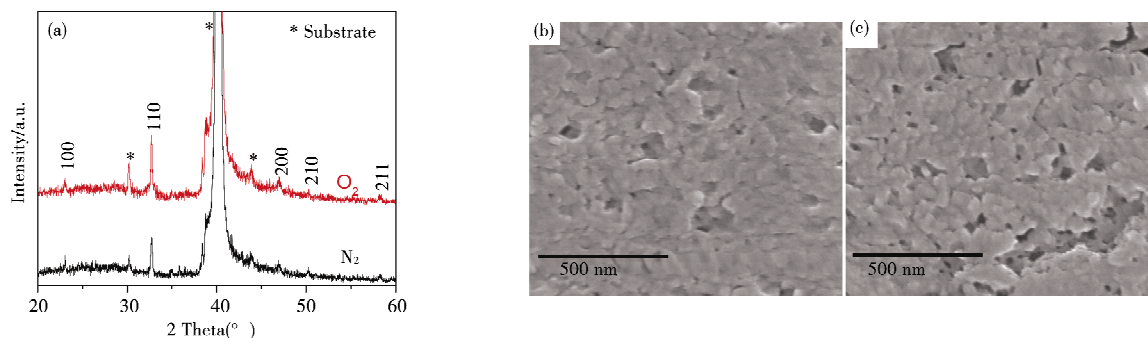


图 1 氧气和氮气气氛烧结得到 BNT-BKT-ST 薄膜的 X 射线衍射(XRD)谱(a)和 FESEM 图((b) 氧气,(c) 氮气)

BNT-BKT-ST 薄膜的表面 FESEM 图,通过测量薄膜表面单位面积上的气孔所占面积比可得样品孔隙率. 从图中可以看出,氮气气氛烧结得到的薄膜晶粒较小,平均粒径约为 50 nm,薄膜表面孔隙率较高,致密度较低;而在氧气气氛下烧结制得的薄膜晶粒较大,平均粒径约为 70 nm,薄膜表面孔隙率较低,致密度较高. 在高温退火的过程中,BNT-BKT-ST 薄膜材料中的 Bi,Na/K 容易挥发,造成一些铋、钾、钠空位($V_{\text{Bi}}^{\prime\prime\prime}, V_{\text{Na/K}}^{\prime\prime\prime}, V_{\text{O}}^{\prime\prime}$),空位可以加速烧结过程中的物质传递,使得局部晶粒异常长大,从而在异常长大的晶粒周围产生空隙. 在氧气气氛烧结时能有效抑制薄膜中氧空位的生成,从而减少了孔隙的产生. 氧气和氮气气氛下烧结都可以获得结晶良好的 BNT-BKT-ST 薄膜,在氧气气氛下烧结,有利于薄膜的晶粒均匀形核长大,提高薄膜致密度. 较大的晶粒和较为致密的微观结构有利于薄膜的电学性能的发挥.

2.2 电学性能分析

图 2 为不同气氛烧结制得的 BNT-BKT-ST 薄膜漏电流密度(J)随电场(E)变化曲线. 薄膜的漏导特性和载流子传输机制直接影响了薄膜的实际应用^[18]. 氧气气氛和氮气气氛烧结得到的薄膜的漏导电流在 0-50 kV/cm 随电场增加而非线性增加, 50 kV/cm 时 J 约为 1.2×10^{-7} A/cm². 氮气气氛烧结得到薄膜的 J 在 $E=50-200$ kV/cm 时线性小幅增加, 此阶段为介质的欧姆导电机理; J 在 $E=200-400$ kV/cm 时非线性增加, 这时 $\ln J$ 和 $E^{1/2}$ 呈线性关系, 此为 Poole-Frenkel 发射效应导电机理. 此薄膜在 400 kV/cm 时漏电流密度为 1.2×10^{-5} A/cm², 漏导较大. 而氧气气氛烧结得到薄膜的 J 在 $E=50-400$ kV/cm 时几乎保持不变, 说明此薄膜一直处于低漏导的欧姆导电机理^[19-21].

在 400 kV/cm 时, 氧气气氛烧结得到薄膜的漏电流密度为 1.3×10^{-7} A/cm², 比氮气气氛烧结得到薄膜低两个数量级, 显著改善了薄膜的漏导特性. 在高温退火的过程中, 薄膜材料中的 Bi, Na/K 容易挥发, 造成一些铋、钾、钠空位 ($V''_{Bi}, V'_{Na/K}, V''_O$) 以及空间电荷, 使得载流子增加, 漏导增大, 在氧气气氛中烧结, 有效减少了 A 位离子挥发和氧空位的产生, 强化了薄膜和电极的界面结合, 从而降低了薄膜漏导电流密度.

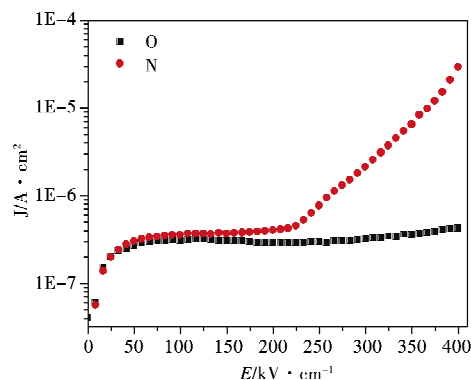


图 3 氧气和氮气气氛烧结得到 BNT-BKT-ST 薄膜的漏电流密度随电场变化曲线

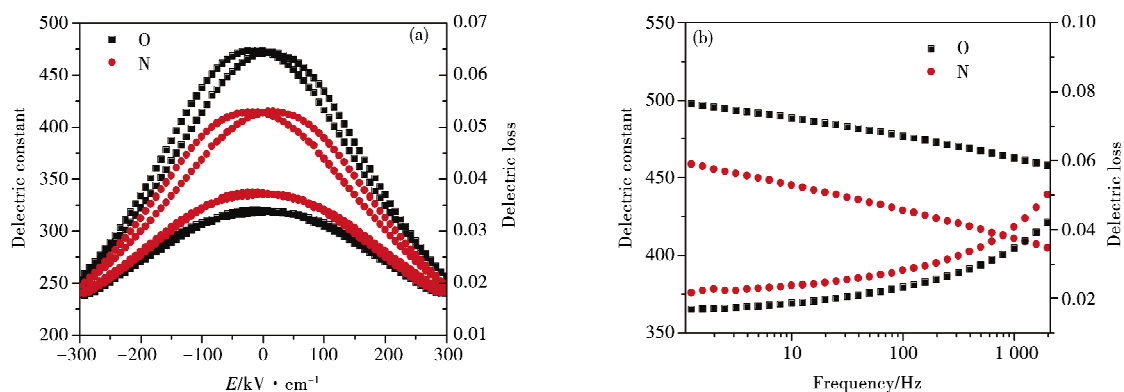


图 3 氧气和氮气气氛烧结得到 BNT-BKT-ST 薄膜的介电常数和损耗随电场(a)和频率(b)变化曲线

图 3 为不同气氛烧结制得的 BNT-BKT-ST 薄膜介电常数(ϵ)随电场(E)和频率(F)变化曲线. 其中氮气和氧气气氛烧结得到薄膜的室温介电常数分别为 410 和 470; 介电调谐率分别为 41% 和 49%, 最大损耗分别为 0.036 和 0.032. 氧气气氛烧结得到薄膜具有更好的介电性能, 高介电可调率和低损耗使得该薄膜在微波可调器件中有应用前景. 两种薄膜样品介电常数的差异主要源于晶粒尺寸和致密度. 从介电频谱中看出介电常数随频率增加逐渐减小, 而薄膜的介电损耗随频率增加而增大, 这种频谱特性是空间电荷极化或 Maxwell-Wagner 型界面极化的原因^[22, 23].

图 4 是不同气氛烧结制得的 BNT-BKT-ST 薄膜的电滞回线图. 氮气气氛烧结得到薄膜极化强度(P_{max})为 $24 \mu\text{C}/\text{cm}^2$, 剩余极化强度($2P_r$)为 $12 \mu\text{C}/\text{cm}^2$. 氧气气氛烧结得到薄膜 P_{max} 为 $28 \mu\text{C}/\text{cm}^2$, $2P_r$ 为 $14 \mu\text{C}/\text{cm}^2$. 氧气气氛烧结得到薄膜铁电性能相对氮气气氛烧结得到薄膜得到了提高. P_r 值的提高主要是由于氧气气氛烧结得到薄膜晶粒较大, 缺陷和丁扎少, 极性纳米微区在电场下易反转, 从而提高了其极化强度值^[24].

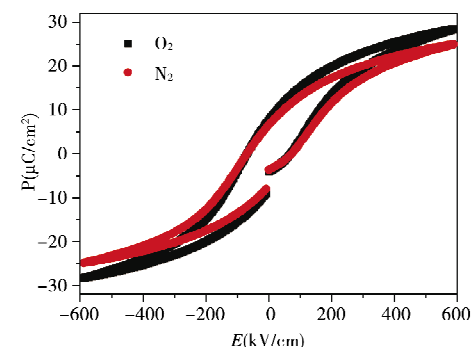


图 4 氧气和氮气气氛烧结得到 BNT-BKT-ST 薄膜的电滞回线

图 5 是不同气氛烧结制得的 BNT-BKT-ST 薄膜的压电响应曲线. 在不同气氛烧结得到的薄膜都呈现出典型的蝴蝶曲线形状. 氧气气氛烧结得到薄膜的压电响应曲线对称性高于氮气气氛烧结得到的薄膜. 曲线非对称可能是因为薄膜与上下电极界面处所产生的不同数量氧空位造成的^[25], 同时也反应了样

品中缺陷的含量. 在 10 V 的面外电压下氮气和氧气氛烧结得到薄膜的压电响应振幅分别为 0.52 nm, 0.54 nm. 由此计算出氮气和氧气氛烧结得到薄膜的局部有效压电系数 $d_{33,f}$ 值分别为 68 pm/V 和 82 pm/V. 薄膜有效压电系数高于其它薄膜的有效压电系数 ($\text{Na}_{0.5}\text{Bi}_{0.5}\text{TiO}_3$ 基压电薄膜: $d_{33,f}=31\text{-}75$ pm/V ($\text{K}_{0.5}\text{Na}_{0.5}$) NbO_3 基压电薄膜: $d_{33,f}=40\text{-}53$ pm/V))^[26-28], 表明 BNT-BKT-ST 薄膜是一种极具潜力的无铅压电薄膜. 通过比较氮气和氧气氛烧结得到薄膜的压电响应振幅和局部有效压电系数, 发现在氧气氛下烧结的薄膜可以得到较高的压电性能. 这是由于氧气氛烧结, 可以有效抑制 K, Na, Bi 离子的挥发, 薄膜化学计量比更准确, 减少了空位和缺陷, 降低了漏导. 另外, 在氧气氛下烧结薄膜晶粒增大而且均匀、空隙率低、结构致密, 电场诱导的极化转向和晶格畸变容易, 电畴移动和翻转也利于压电性能提高^[29,30].

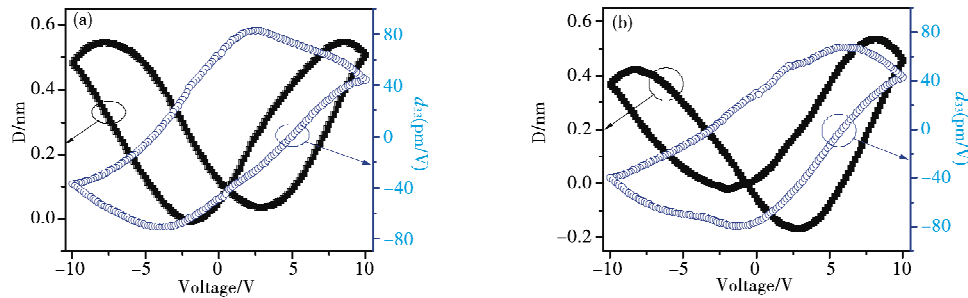


图5 氧气(a)和氮气(b)气氛烧结得到 BNT-BKT-ST 薄膜的压电响应曲线和有效压电系数曲线

3 结论

本文采用溶胶-凝胶法在 Pt(111)/Ti/SiO₂/Si 基片上制备了 BNT-BKT-ST 无铅压电薄膜, 并在氧气气氛和氮气气氛下分别对薄膜烧结处理. 研究了烧结气氛对薄膜材料结晶、显微结构, 漏导特性、介电性能、铁电性能和压电性能的影响. 结果表明: 两种烧结气氛都可以使薄膜形成结晶良好的钙钛矿结构, 但是烧结气氛对薄膜的显微结构和电学性能有较大的影响. 氧气气氛下烧结制得薄膜的晶粒较大, 结构致密; 氧气气氛烧结使得薄膜的离子挥发减少, 从而有效抑制氧空位的产生, 有效降低了薄膜的漏导, 同时减少了电畴移动和翻转时候缺陷的丁扎效应, 使得薄膜获得了更加优异的介电性能、铁电性能和压电性能.

参 考 文 献

- [1] Li P, Zhai J, Shen B, et al. Ultrahigh piezoelectric properties in textured (K, Na)NbO₃-based lead-free ceramics[J]. *Adv Mater*, 2018, 30: 1705171.
- [2] 贺敦敏, 郑齐信, 伍晓春, 等. 无铅压电陶瓷研究进展[J]. *四川师范大学学报*, 2010, 33: 117-131.
- [3] Kang G Q, Yao K, Wang J. 0.90(Na_{0.5}Bi_{0.5}TiO₃)-0.06BaTiO₃-0.04K_(0.5)Na_(0.5)NbO₃ Ferroelectric thin films derived from chemical solutions[J]. *J Am Ceram Soc*, 2011, 94: 1331-1335.
- [4] Zhang S T, Kounga A B, Aulbach E, et al. Giant strain in lead-free piezoceramics Bi_{0.5}Na_{0.5}TiO₃-BaTiO₃-K_{0.5}Na_{0.5}NbO₃ system[J]. *Appl Phys Lett*, 2007, 91: 112906.
- [5] Hao J, Xu Z, Chu R, et al. Fatigue-resistant, temperature-insensitive strain behavior and strong red photoluminescence in Pr-modified 0.92(Bi_{0.5}Na_{0.5})TiO₃-0.08(Ba_{0.90}Ca_{0.10})(Ti_{0.92}Sn_{0.08})O₃ lead-free ceramics[J]. *J Eur Ceram Soc*, 2017, 37: 877-882.
- [6] Yao Q, Wang F, Xu F, et al. Electric field-induced giant strain and photoluminescence-enhancement effect in rare-earth modified lead-free piezoelectric ceramics[J]. *ACS Appl Mater Interfaces*, 2015, 7: 5066-5075.
- [7] Martin A, Khansur N II, Webber K G. Electric field-induced changes in the ferroelastic behavior of (Na_{1/2}Bi_{1/2})TiO₃-BaTiO₃[J]. *J Eur Ceram Soc*, 2018, 38: 4623-4630.
- [8] Hao J, Shen B, Zhai J, et al. Phase transitional behavior and electric field-induced large strain in alkali niobate-modified Bi_{0.5}(Na_{0.80}K_{0.20})_{0.5}TiO₃ lead-free piezoceramics[J]. *J Appl Phys*, 2014, 115: 034101.
- [9] Ge W, Luo C, Devreugd C P, et al. Direct evidence of correlations between relaxor behavior and polar nano-regions in relaxor ferroelectrics: A case study of lead-free piezoelectrics Na_{0.5}Bi_{0.5}TiO₃-x%BaTiO₃[J]. *Appl Phys Lett*, 2013, 103: 241914.
- [10] Patterson E A, Cann D P, Roedel J. Relaxor to ferroelectric transitions in (Bi_{1/2}Na_{1/2})TiO₃-Bi(Zn_{1/2}Tl_{1/2})O₃ solid solutions[J]. *J Am Ceram Soc*, 2012, 95: 3509-3513.
- [11] Zhang H, Fu S J, Long W J, et al. Temperature-dependent electrical properties of B-site zinc substituted bismuth sodium titanate piezoceramics[J]. *Ceram Int*, 2012, 38: 3237-3242.
- [12] Jo W, Rödel J. Electric-field-induced volume change and room temperature phase stability of (Bi_{1/2}Na_{1/2})TiO₃-x mol% BaTiO₃ piezoceramics[J]. *Appl Phys Lett*, 2011, 99: 042901.

- [13] Teranishi T, Kajiyama S, Hayashi H, et al. Polarization behavior of sol-gel-derived relaxor Ba(Zr, Ti)O₃ films[J]. *J Am Ceram Soc*, 2017, 100: 1542-1550.
- [14] Wu Y, Wang X, Zhong C, et al. Microstructure and electric properties of (Na_{0.85}K_{0.15})_{0.5}Bi_{0.5}TiO₃ composited films with alternative TiO₂ layers[J]. *J Am Ceram Soc*, 2017, 100: 3935-3942.
- [15] Lin Q, Ding R, Li Q, et al. Large piezoelectricity and ferroelectricity in Mn-Doped (Bi_{0.5}Na_{0.5})TiO₃-BaTiO₃ thin film prepared by pulsed laser deposition[J]. *J Am Ceram Soc*, 2016, 99: 2347-2353.
- [16] Li P, Zhai J, Zeng H, et al. Crystallographic orientation dependence of piezoelectric and dielectric properties of BNT-based thin films [J]. *J Eur Ceram Soc*, 2016, 36: 3139-3145.
- [17] Li W, Li P, Zeng H, et al. The optimization of electric properties of multilayered BNT-BT-ST/BCST thin films by configuration[J]. *RSC Adv*, 2015, 5: 6181-6185.
- [18] Li W, Zeng H, Hao J, et al. Enhanced dielectric and piezoelectric properties of Mn doped (Bi_{0.5}Na_{0.5})TiO₃- (Bi_{0.5}K_{0.5})TiO₃-SrTiO₃ thin films[J]. *J Alloy Compd*, 2013, 580: 157-161.
- [19] Brutchey R L, Cheng G, Gu Q, et al. Positive temperature coefficient of resistivity in donor-doped BaTiO₃ ceramics derived from nanocrystals synthesized at low temperature[J]. *Adv Mater*, 2008, 20: 1029-1033.
- [20] Chang S T, Lee J Ym. Electrical conduction mechanism in high-dielectric-constant (Ba_{0.5}, Sr_{0.5})TiO₃ thin films[J]. *Appl Phys Lett*, 2002, 80: 655.
- [21] Pabst G W, Martin L W, Chu Y H, et al. Leakage mechanisms in BiFeO₃ thin films[J]. *Appl Phys Lett*, 2007, 90: 072902.
- [22] Pontes F M, Leite E R, Longo E, et al. Effects of the postannealing atmosphere on the dielectric properties of (Ba, Sr)TiO₃ capacitors. Evidence of an interfacial space charge layer[J]. *Appl Phys Lett*, 2000, 76: 2433-2435.
- [23] Setter N, Waser R. Electroceramic Materials[J]. *Acta Mater*, 2000, 48: 151-178.
- [24] Le D T, Kwon S J, Yeom N R, et al. Effects of the domain size on local d₃₃ in tetragonal (Na_{0.53}K_{0.45}Li_{0.02}) (Nb_{0.8}Ta_{0.2})O₃ ceramics [J]. *J Am Ceram Soc*, 2013, 96: 174-178.
- [25] Zhai J W, Yao X, Shen B, et al. Dielectric and ferroelectric properties of Ba(Zr_{0.35}Ti_{0.65})O₃ thin films grown by a sol-gel process[J]. *J Electroceram*, 2003, 12: 157-161.
- [26] Wang D Y, Chan N Y, Li S, et al. Enhanced ferroelectric and piezoelectric properties in doped lead-free (Bi_{0.5}Na_{0.5})_{0.94}Ba_{0.06}TiO₃ thin films[J]. *Appl Phys Lett*, 2010, 97: 212901.
- [27] Lee H J, Kim I W, Kim J S, et al. Ferroelectric and piezoelectric properties of Na_{0.52}K_{0.48}NbO₃ thin films prepared by radio frequency magnetron sputtering[J]. *Appl Phys Lett*, 2009, 94: 092902.
- [28] Ahn C W, Won S S, Ullah A, et al. Large piezoresponse of lead-free Bi_{0.5}(Na_{0.85}K_{0.15})_{0.5}TiO₃ thin film[J]. *Curr Appl Phys*, 2012, 12: 903-907.
- [29] Lin Q R, Wang D Y, Li S, et al. Strong effect of oxygen partial pressure on electrical properties of 0.5Ba(Zr_{0.2}Ti_{0.8})O₃-0.5(Ba_{0.7}Ca_{0.3})TiO₃ thin films[J]. *J Am Ceram Soc*, 2015, 98: 2094-2098.
- [30] Zhao K Y, Yu H Z, Zou Jian, et al. Influence of oxygen pressure on the domain dynamics and local electrical properties of BiFe_{0.95}Mn_{0.05}O₃ thin films studied by piezoresponse force microscopy and conductive atomic force microscopy[J]. *Mater*, 2017, 10: 1258.

Effects of Annealing Atmosphere on the Structural and Electrical Properties of BNT-BKT-ST Thin Film

SHANG Xin-ting AI Cai-jiao GU Ya-xin LUO Jin-cheng LI Wei

(School of Materials Science and Engineering, Liaocheng University, Liaocheng 252059, China)

Abstract The piezoelectric materials have been widely applied in storage, micro-sensor and micro-actuator due to their outstanding ferroelectric, piezoelectric and dielectric properties. In this study, the lead-free BNT-BKT-ST thin films were deposited on Pt(111)/Ti/SiO₂/Si substrates by a sol-gel processing technique and subsequently annealed in O₂ and N₂ atmospheres, respectively. The effects of annealing atmospheres on the structural, ferroelectric, piezoelectric and dielectric properties of the BNT-BKT-ST thin films were investigated in detail. The BNT-BKT-ST thin films annealed in O₂ atmospheres exhibits larger grain size and denser structure. Extremely reduced leakage current ($J = 1.3 \times 10^{-7} \text{ A/cm}^2$) was observed in the BNT-BKT-ST thin films annealed in O₂ atmospheres due to the depression of V_o's vacancy. Moreover, it exhibits enhanced dielectric ($\epsilon = 470, \eta = 49\%$), ferroelectric ($2P_r = 14 \mu\text{C/cm}^2$) and piezoelectric properties ($d_{33,f} = 80 \text{ pm/V}$).

Key words BNT films; sol-gel; annealing atmosphere; piezoelectric properties; dielectric properties