

# BiFeO<sub>3</sub>-BaTiO<sub>3</sub>-LaFeO<sub>3</sub> 三元多铁性陶瓷材料的制备及性能

张晓燕<sup>1,2,3</sup>, 杜强<sup>1,2</sup>, 赵晓楠<sup>2</sup>, 李金生<sup>1,2,3</sup>, 张敏<sup>1</sup>, 齐西伟<sup>1,2,3</sup>

(1. 东北大学, 辽宁 沈阳 110819)

(2. 东北大学秦皇岛分校, 河北 秦皇岛 066004)

(3. 河北省电介质与电解质功能材料重点实验室, 河北 秦皇岛 066004)

**摘要:** 采用固相法制备了  $1-x(0.71\text{BiFeO}_3-0.29\text{BaTiO}_3)-x\text{LaFeO}_3$  ( $x=0.0, 0.1, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5$ ) 三元多铁性陶瓷材料, 并研究了  $\text{LaFeO}_3$  含量对陶瓷物相结构、微观组织、电学性能和磁电耦合性能的影响。结果显示, 所有陶瓷均为单一钙钛矿结构, 但随  $\text{LaFeO}_3$  含量的增加, 伴随着结构相变。所得陶瓷晶粒尺寸均匀, 表现出良好的微观形貌, 陶瓷晶粒随  $\text{LaFeO}_3$  含量的增加而明显变小。虽然  $\text{LaFeO}_3$  的加入在一定程度上降低了陶瓷的介电常数, 但分析发现,  $x=0.1$  时能降低陶瓷的漏导, 其漏电流达到了最小值, 在  $10^{-7}\sim 10^{-8}$  A/cm<sup>2</sup> 数量级, 并且该陶瓷的剩余极化强度  $P_r$  和磁电耦合系数  $\alpha_{\text{ME}}$  均达到最大值, 分别为  $0.45 \mu\text{C}/\text{cm}^2$  和  $132.21 \text{ mV}/\text{cm}\cdot\text{Oe}$  (120 kHz)。因此, 与  $0.71\text{BiFeO}_3-0.29\text{BaTiO}_3$  陶瓷相比, 添加少量  $\text{LaFeO}_3$  可以在一定程度上增加陶瓷的铁电性和磁电耦合性能。

**关键词:** 多铁性陶瓷; 微观组织; 电学性能; 磁电耦合

**中图分类号:** TQ174.75<sup>+</sup>6

**文献标识码:** A

**文章编号:** 1002-185X(2020)02-0520-06

多铁性材料同时具有铁电性和铁磁性, 不但能用于单一铁性材料的应用领域, 而且能够通过磁电效应将磁化强度和电极化强度等可以表征信息的极化矢量紧密联系起来, 因此可以广泛应用于信息功能器件, 如四态存储器, 多铁性内存, 自旋电子器件等<sup>[1-5]</sup>。 $\text{BiFeO}_3$  具有高的铁电居里温度 ( $T_c=1123 \text{ K}$ ) 和反铁磁尼尔温度 ( $T_N=583 \text{ K}$ ), 是目前在室温下唯一同时具有铁电性和寄生弱铁磁性的单相多铁性材料, 具有很大的应用前景<sup>[6,7]</sup>。然而,  $\text{BiFeO}_3$  的合成温度范围较窄, 制备中容易出现各种杂相; 并且铋在高温烧结时很容易挥发, 同时铁离子的价态也容易发生波动, 这就容易出现氧空位, 导致产生很大的漏电流, 因而限制了其应用。研究显示, 将  $\text{BiFeO}_3$  与其他  $\text{ABO}_3$  型钙钛矿材料形成固溶体可以在一定程度上改进其漏电流大的问题<sup>[8-11]</sup>。

$\text{BiFeO}_3\text{-BaTiO}_3$  体系由于在室温下完全固溶, 并且随着  $\text{BiFeO}_3$  含量的不同, 固溶体的结构会发生变化<sup>[12,13]</sup>, 因此受到了人们广泛的关注。然而该体系虽然表现出良好的铁电性和压电性<sup>[14-16]</sup>, 但其铁磁性却相对较弱。由于  $\text{La}^{3+}$  离子半径与  $\text{Bi}^{3+}$  离子半径非常接

近, 在  $\text{BiFeO}_3$  中掺杂  $\text{La}^{3+}$  离子早已引起了人们的兴趣<sup>[17-19]</sup>。研究表明,  $\text{La}^{3+}$  离子的掺入能在一定程度上提高材料的磁性能, 例如 Yuan 等人<sup>[19]</sup>通过在  $\text{BiFeO}_3$  的 A 位掺杂 15% 的  $\text{La}^{3+}$ , 得到的铁电、压电、磁性能均很优异。究其原因因为掺杂 15% 的  $\text{La}^{3+}$  调整了反铁磁序的倾斜角度, 导致  $\text{BiFeO}_3$  空间调制自旋结构的释放。此外  $\text{LaFeO}_3$  本身具有良好的反铁磁特性, 其尼尔温度高达  $467 \text{ }^\circ\text{C}$ 。因此,  $\text{LaFeO}_3$  可以很容易地固溶进  $\text{BiFeO}_3\text{-BaTiO}_3$  体系<sup>[20]</sup>, 有望改善材料的磁电耦合性能。综上所述, 本实验拟在前人已有研究成果的基础上, 通过引入第 3 组元  $\text{LaFeO}_3$ , 制备  $1-x(0.71\text{BiFeO}_3-0.29\text{BaTiO}_3)-x\text{LaFeO}_3$  ( $x=0.1, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5$ ) 三元多铁性材料, 并研究  $\text{LaFeO}_3$  含量对材料的物相结构、微观组织、电学性能和磁电耦合性能的影响。

## 1 实验

采用固相法制备  $1-x(0.71\text{BiFeO}_3-0.29\text{BaTiO}_3)-x\text{LaFeO}_3$  ( $x=0.0, 0.1, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5$ ) 陶瓷材料。为了补偿高温下铋元素的挥发, 在配料时加入 5% 过量的 Bi 元素。首先以分析纯氧化铋、氧化镧、氧化铁、氧

收稿日期: 2019-02-23

基金项目: 国家自然科学基金 (51972048)

作者简介: 张晓燕, 女, 1982 年生, 博士, 副教授, 东北大学秦皇岛分校资源与材料学院, 河北 秦皇岛 066004, 电话: 0335-8053004, E-mail: xyaaa2005@163.com

化钛和碳酸钡为原料,按化学计量比准确称量后,放入装有氧化锆球的球磨罐中,以无水乙醇为溶剂,180 r/min 的球磨速率,球磨 6 h。将前躯体干燥并研磨,在 700~800 °C 下预烧,得到 1-x(0.71BiFeO<sub>3</sub>-0.29BaTiO<sub>3</sub>)-xLaFeO<sub>3</sub> 粉体材料。然后将预烧后的粉体研磨,过筛,加入质量比为 5% 的聚乙烯醇,均匀造粒,过 166 μm (90 目)筛后,采用干压成型的方法,将粉料压制直径为 10 mm 的圆形素坯。采用叠片埋烧的方法,将素坯在 900~975 °C 下烧结并保温 2 h,然后随炉冷却,得到 1-x(0.71BiFeO<sub>3</sub>-0.29BaTiO<sub>3</sub>)-xLaFeO<sub>3</sub> 陶瓷样品。

采用日本理学的 Smart Lab 型 X 射线衍射仪 (XRD) 分析样品的物相组成,测试条件为 Cu 靶,波长 λ 为 0.154 06 nm,管电压 45 kV、管电流 200 mA,扫描速度 5°/min。通过阿基米德排水法测陶瓷密度,所用仪器为梅特勒·托利多的电子天平 (AL-104) 及相关密度组件。使用德国 ZEISS SUPRA-55 型场发射扫描电子显微镜 (SEM) 观察样品的微观组织,测试前样品表面需要喷金处理 60 s。将陶瓷片上下表面均匀打磨后,均匀涂覆银浆,并在 500 °C 下烧银 30 min,使其镀上电极,随后进行电学及磁电耦合等性能测试。其中,使用 Agilent 公司的 E4991A 射频阻抗分析仪测量样品在高频下的介电常数及介电损耗。材料漏电流采用 KEITHLEY 静电计 (6517B) 进行测试。采用美国 Radiant 公司生产的 Multiferroic 铁电分析仪测试陶瓷的电滞回线。采用自制的磁电性能测试系统测试材料的磁电耦合系数,频率对磁电耦合系数影响的测试条件为磁场 16 kA/m (200 Oe),测试频率 1~120 kHz。

## 2 结果与讨论

### 2.1 物相组成

为了确定烧结温度,在 900~975 °C 下对每个组分样品进行烧结,并对得到的陶瓷样品进行 XRD 和铁电性能测试。以 x=0.4 的组分为例,其 XRD 图谱和电滞回线如图 1 所示。根据杂相少,铁电性能相对较好的原则,确定 x=0.4 的陶瓷的烧结温度为 975 °C。其他样品 x=0.0、x=0.1、x=0.2、x=0.3、x=0.5 的烧结温度可依此确定为 925、950、925、950、975 °C。在以后的讨论中,如未说明,温度均为选取的最佳烧结温度。

图 2 是 1-x(0.71BiFeO<sub>3</sub>-0.29BaTiO<sub>3</sub>)-xLaFeO<sub>3</sub> 陶瓷的 XRD 图谱。由图 2 可以看出,在现有 LaFeO<sub>3</sub> 含量和各自的最佳烧结温度下,所制备的陶瓷均能够形成固溶体。随着 LaFeO<sub>3</sub> 含量的增加,陶瓷的晶体结构发生相变。为了更好地看清楚衍射峰的变化趋势,在 44°~47°、55°~58°之间进行局部慢扫,如图 3 所示。

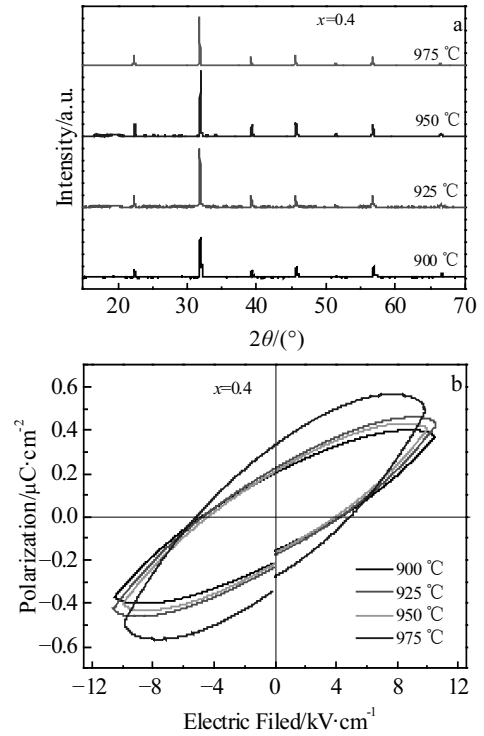


图 1 0.6(0.71BiFeO<sub>3</sub>-0.29BaTiO<sub>3</sub>)-0.4LaFeO<sub>3</sub> 陶瓷在不同烧结温度下的 XRD 图谱和电滞回线

Fig.1 XRD patterns (a) and Hysteresis loops (b) of 0.6(0.71BiFeO<sub>3</sub>-0.29BaTiO<sub>3</sub>)-0.4LaFeO<sub>3</sub> ceramic sintered at different temperatures

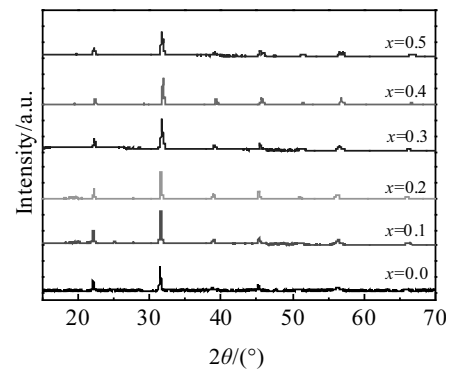


图 2 1-x(0.71BiFeO<sub>3</sub>-0.29BaTiO<sub>3</sub>)-xLaFeO<sub>3</sub> 陶瓷的 XRD 图谱

Fig.2 XRD patterns of 1-x(0.71BiFeO<sub>3</sub>-0.29BaTiO<sub>3</sub>)-xLaFeO<sub>3</sub>

由图 3 可以看出,随着 LaFeO<sub>3</sub> 含量的增加,44°~47°处的(200)单峰逐渐分裂为(002)、(200)双峰,55°~58°处的(211)单峰逐渐分裂为(112)、(211)双峰,晶体由 x=0 时的菱方相逐渐转变为正交相。同时,随着 LaFeO<sub>3</sub> 含量的增加,A 位上 Ba<sup>2+</sup> (半径 0.135 nm)

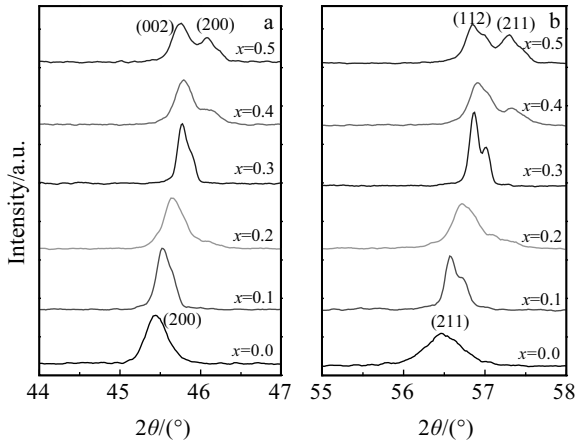


图 3  $1-x(0.71\text{BiFeO}_3-0.29\text{BaTiO}_3)-x\text{LaFeO}_3$  陶瓷的局部慢扫 XRD 图谱

Fig.3 XRD patterns of  $1-x(0.71\text{BiFeO}_3-0.29\text{BaTiO}_3)-x\text{LaFeO}_3$  ceramics in the  $2\theta$  range of  $44^\circ\sim 47^\circ$  (a) and  $55^\circ\sim 58^\circ$  (b)

逐渐被  $\text{La}^{3+}$  (0.1032 nm)离子置换,  $B$  位上  $\text{Ti}^{4+}$  (0.0605 nm)逐渐被  $\text{Fe}^{3+}$  (0.055 nm)离子置换, 小半径离子替换大半径离子使晶格发生了收缩, 从而导致 XRD 图谱中的衍射峰向高角度方向移动。

2.2 陶瓷密度

图 4 为  $1-x(0.71\text{BiFeO}_3-0.29\text{BaTiO}_3)-x\text{LaFeO}_3$  陶瓷的密度和相对密度图。从图中可以明显看出, 所得陶

瓷的相对密度均在 86%以上, 且陶瓷的密度和相对密度均随  $\text{LaFeO}_3$  含量的增加而逐渐减小。

2.3 微观形貌

图 5 为  $1-x(0.71\text{BiFeO}_3-0.29\text{BaTiO}_3)-x\text{LaFeO}_3$  陶瓷断面的扫描电镜图。由图 5 可知, 不同成分的陶瓷断面晶粒形状较规则, 晶界清晰, 晶粒大小分布较均匀。随着  $\text{LaFeO}_3$  含量的增加, 陶瓷晶粒明显变小。例如,  $x=0.0$  时, 陶瓷的晶粒粒径平均为  $2\ \mu\text{m}$ , 而  $x=0.5$  时, 陶瓷的晶粒粒径减小为  $0.4\ \mu\text{m}$  左右, 说明  $\text{LaFeO}_3$  的加入使得晶界移动变得困难, 对陶瓷的晶粒长大有抑

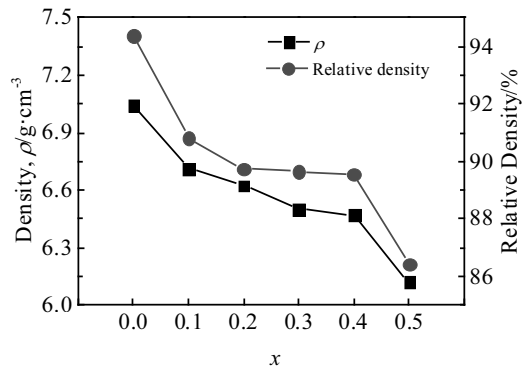


图 4 陶瓷密度和相对密度随  $\text{LaFeO}_3$  含量的变化

Fig.4 Variation of density and relative density as a function of  $\text{LaFeO}_3$  content

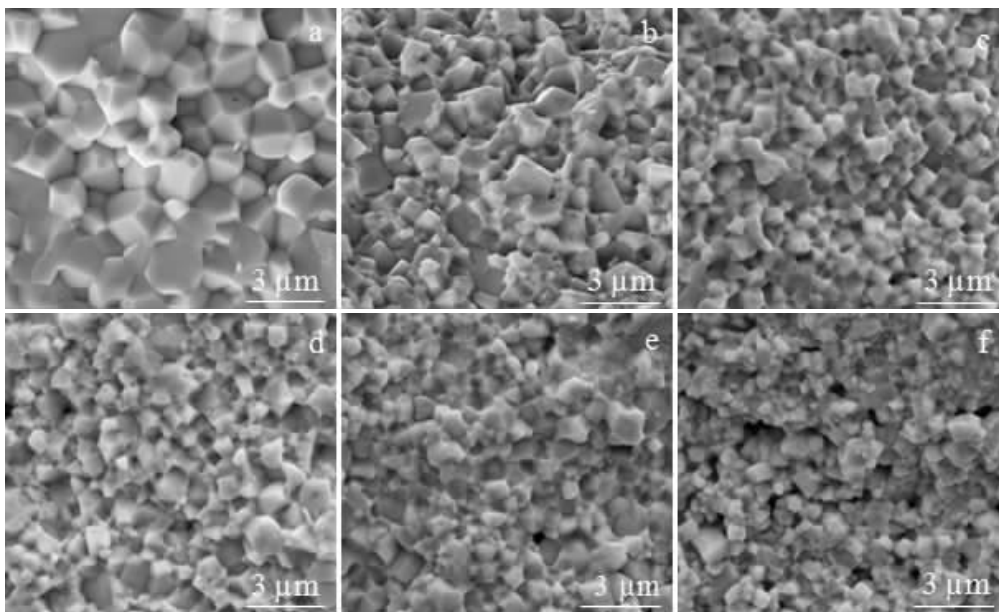


图 5  $1-x(0.71\text{BiFeO}_3-0.29\text{BaTiO}_3)-x\text{LaFeO}_3$  陶瓷断面的 SEM 图

Fig.5 SEM images of  $1-x(0.71\text{BiFeO}_3-0.29\text{BaTiO}_3)-x\text{LaFeO}_3$ : (a)  $x=0.0$ , (b)  $x=0.1$ , (c)  $x=0.2$ , (d)  $x=0.3$ , (e)  $x=0.4$ , and (f)  $x=0.5$

制作用。此外,随着 LaFeO<sub>3</sub> 的增加,陶瓷内部的孔洞增多,可能是由于烧结过程中 Bi<sup>3+</sup>不同程度的挥发造成的,这也是导致密度下降的一个重要原因。

### 2.4 介电性质

图 6 为室温下 1-x(0.71BiFeO<sub>3</sub>-0.29BaTiO<sub>3</sub>)-xLaFeO<sub>3</sub> 陶瓷介电常数实部和介电损耗随频率的变化曲线,测试频率为 10 MHz~1 GHz。为便于分析,用实部代表介电常数来进行讨论。由图 6a 可以看出,陶瓷介电常数整体随频率增加而逐渐降低,但下降速度较为平缓。LaFeO<sub>3</sub> 含量对陶瓷介电常数有较大的影响。例如 100 MHz 下, x=0.0 时陶瓷 ε'最大,约为 471,而 x=0.5 时,陶瓷的 ε'最小,约为 152。可见频率一定时,介电常数随 LaFeO<sub>3</sub> 含量的增加而逐渐降低。原因可能是随着 LaFeO<sub>3</sub> 含量的增加,晶胞缩小和畸变的程度增加,降低了陶瓷的介电性能。从图 6b 可知,介电损耗随频率变化存在小范围的波动,整体基本处于 0.1~0.2 范围内,并且 x=0.0 时陶瓷的介电损耗最小。

### 2.5 漏电流及铁电性质

1-x(0.71BiFeO<sub>3</sub>-0.29BaTiO<sub>3</sub>)-xLaFeO<sub>3</sub> 陶瓷的漏电流密度随电场变化曲线如图 7 所示。从图中可以看出,陶瓷的漏电流密度随着 LaFeO<sub>3</sub> 含量的增加,呈现出先

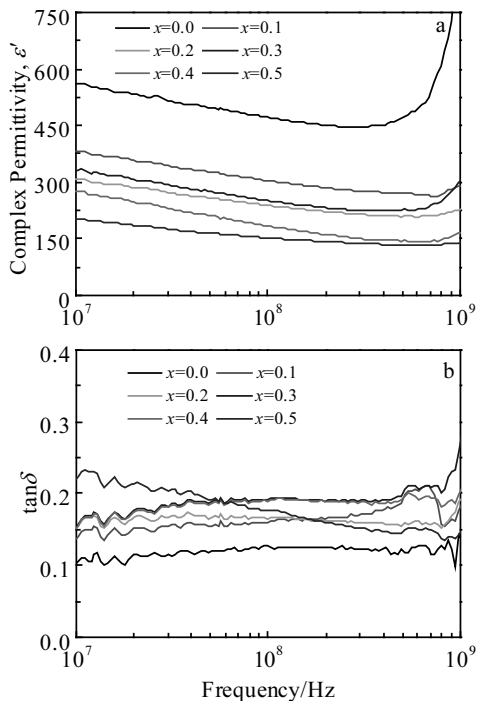


图 6 室温下陶瓷的介电常数和介电损耗随频率的变化曲线

Fig.6 Frequency dependence of dielectric constant ε' (a) and dielectric loss tanδ (b) of ceramics at room temperature

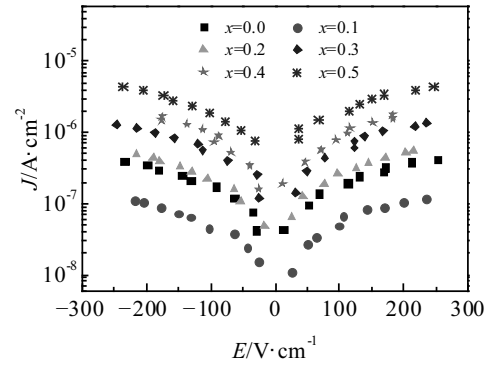


图 7 1-x(0.71BiFeO<sub>3</sub>-0.29BaTiO<sub>3</sub>)-xLaFeO<sub>3</sub> 陶瓷的漏电流密度  
Fig.7 Leakage current density of 1-x(0.71BiFeO<sub>3</sub>-0.29BaTiO<sub>3</sub>)-xLaFeO<sub>3</sub> ceramics

减小后增大的趋势。未添加 LaFeO<sub>3</sub> (x=0.0)的陶瓷漏电流密度在 10<sup>-6</sup>~10<sup>-7</sup>A/cm<sup>2</sup> 数量级,当 LaFeO<sub>3</sub> 含量为 0.1 时漏电流减小了约 1 个数量级,达到了 10<sup>-7</sup>~10<sup>-8</sup> A/cm<sup>2</sup>,当含量为 0.5 时,漏电流又增大到了 10<sup>-5</sup>~10<sup>-6</sup> A/cm<sup>2</sup> 数量级。漏电流的变化进一步影响到了陶瓷的铁电性能。

图 8 为室温下 1-x(0.71BiFeO<sub>3</sub>-0.29BaTiO<sub>3</sub>)-xLaFeO<sub>3</sub> 陶瓷的电滞回线。可以看出,所得陶瓷样品均呈现出一定的铁电性,但电滞回线均未饱和,说明存在一定的漏导。从上面的漏电流分析可以看出,随着 LaFeO<sub>3</sub> 含量的增加,陶瓷的铁电性与漏电流的变化规律相一致。当 LaFeO<sub>3</sub> 含量 x=0.1 时,比未添加 LaFeO<sub>3</sub> 的陶瓷(x=0.0),剩余极化强度 P<sub>r</sub> 有所提高,其值约为 0.45 μC/cm<sup>2</sup>。但随着 LaFeO<sub>3</sub> 含量继续增加,陶瓷的漏导变得更加严重,剩余极化强度逐渐下降,且均小于未添加 LaFeO<sub>3</sub> 的陶瓷。这可能一方面是由于陶瓷晶

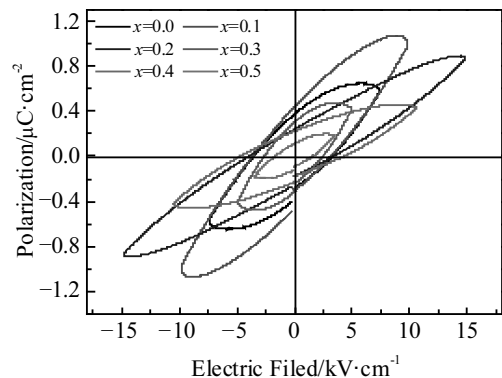


图 8 室温下陶瓷的电滞回线

Fig.8 Hysteresis loops of ceramics at room temperature

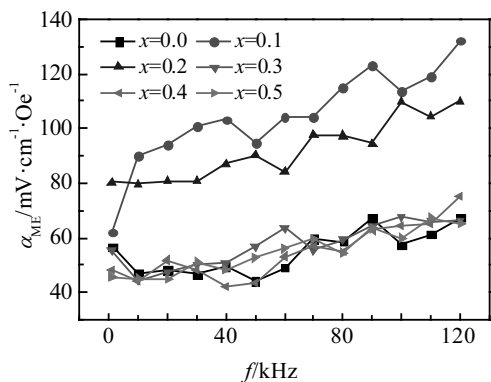


图 9 陶瓷的磁电耦合系数随频率变化曲线

Fig.9 Magnetolectric coefficient  $\alpha_{ME}$  at various applied frequencies of  $1-x(0.71\text{BiFeO}_3-0.29\text{BaTiO}_3)-x\text{LaFeO}_3$  ceramics

体结构的变化,  $x=0.1$  的样品处于菱方相向正交相的过渡, 其漏电流最小, 铁电性最佳; 另一方面是因为  $\text{LaFeO}_3$  本身并没有铁电性, 所以当含量继续增加时, 铁电性逐渐减弱。因此, 添加少量的  $\text{LaFeO}_3$  ( $x = 0.1$ ) 能在一定程度上改善陶瓷的铁电性。

### 2.6 磁电耦合性质

图 9 为  $1-x(0.71\text{BiFeO}_3-0.29\text{BaTiO}_3)-x\text{LaFeO}_3$  陶瓷的磁电耦合系数随频率的变化曲线。由图可以看出, 不同组分陶瓷的磁电耦合系数均随着频率的升高而逐渐增大。例如,  $x=0.1$  成分下测试频率为 1 kHz 时, 磁电耦合系数为 62.05 mV/cm.Oe, 随着测试频率增大到 120 kHz, 磁电耦合系数  $\alpha_{ME}$  增大到 132.21 mV/cm.Oe。频率一定条件下,  $\text{LaFeO}_3$  含量为 0.1 和 0.2 时可有效地增强陶瓷的磁电耦合效应, 而含量继续增大, 磁电耦合系数与未添加  $\text{LaFeO}_3$  的陶瓷相比没有明显区别。

### 3 结 论

1) 采用固相法可以制备系列  $1-x(0.71\text{BiFeO}_3-0.29\text{BaTiO}_3)-x\text{LaFeO}_3$  陶瓷材料。

2) 随着  $\text{LaFeO}_3$  含量的增加, 该材料从  $x=0.0$  时的菱方相逐渐转变为正交相, 并且陶瓷晶粒明显变小, 介电常数呈现下降趋势。

3)  $x=0.1$  时陶瓷的漏电流最小, 在  $10^{-7}\sim 10^{-8}$  A/cm<sup>2</sup> 数量级。而陶瓷的剩余极化强度  $P_r$  和磁电耦合系数均在  $x=0.1$  时达到最大值。因此, 添加少量  $\text{LaFeO}_3$  可以在一定程度上增加陶瓷的铁电性和磁电耦合性能。

### 参考文献 References

[1] Duan Chungang(段纯刚). *Progress in Physics*(物理学进展)[J], 2009, 29(3): 215

[2] Cheong S W, Mostovoy M. *Nature Materials*[J], 2007, 6: 13

[3] Wang K F, Liu J M, Ren Z F. *Advances in Physics* [J], 2009, 58(4): 321

[4] Qi X W, Zhou J, Yue Z X et al. *Advanced Functional Materials* [J], 2004, 14(9): 920

[5] Niu Liwei(牛利伟), Xing Hui(邢 辉), Chen Changle(陈长乐) et al. *Rare Metal Materials and Engineering* (稀有金属材料与工程)[J], 2017, 46(5): 1315

[6] Popa M, Crespo D, Calderon-Moreno J M et al. *Journal of the American Ceramic Society*[J], 2007, 90(9): 2723

[7] Palai R, Katiyar R S, Schmid H et al. *Physical Review B*[J], 2008, 77(1): 14 110

[8] Li Haimin, Qiu Chunli, Zhu Jianguo et al. *Rare Metal Materials and Engineering*[J], 2016, 45(6): 1449

[9] Sufyan M, Atiq S, Abbas S K et al. *Materials Letters*[J], 2019, 238: 10

[10] Ryu G H, Hussain A, Lee M H et al. *Journal of the European Ceramic Society*[J], 2018, 38: 4414

[11] Ning Haixia(宁海霞), Hou Xianbo(侯现博), Yu Jian(于 剑). *Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与工程)[J], 2016, 45(5): 1249

[12] Kumar M M, Srinivas A, Suryanarayana S V. *Journal of Applied Physics*[J], 2000, 87(2): 855

[13] Zhang M, Zhang X Y, Qi X W et al. *Ceramics International* [J], 2017, 43: 16 957

[14] Hang Q M, Xing Z B, Zhu X H et al. *Ceramics International* [J], 2012, 38: 411

[15] Wei J X, Fu D Y, Cheng J R et al. *Journal of Materials Science*[J], 2017, 52: 10 726

[16] Zhu L F, Zhang B P, Duan J Q et al. *Journal of the European Ceramic Society*[J], 2018, 38: 3463

[17] Gao S Y, Wang Q, Lin Y et al. *Journal of Alloys and Compounds*[J], 2019, 781: 723

[18] Abdel-Khalek E K, Ibrahim I, Salama T M et al. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* [J], 2018, 465: 309

[19] Yuan G L, Baba-Kishi K Z, Liu J M et al. *Journal of Applied Physics*[J], 2006, 100(2): 241

[20] Zhou C R, Yang H B, Zhou Q et al. *Ceramics International* [J], 2013, 39: 4307

## Preparation and Properties of Multiferroic BiFeO<sub>3</sub>-BaTiO<sub>3</sub>-LaFeO<sub>3</sub> Ceramics

Zhang Xiaoyan<sup>1,2,3</sup>, Du Qiang<sup>1,2</sup>, Zhao Xiaonan<sup>2</sup>, Li Jinsheng<sup>1,2,3</sup>, Zhang Min<sup>1</sup>, Qi Xiwei<sup>1,2,3</sup>

(1. Northeastern University, Shenyang 110819, China)

(2. Northeastern University at Qinhuangdao Branch, Qinhuangdao 066004, China)

(3. Key Laboratory of Dielectric and Electrolyte Functional Material, Hebei Province, Qinhuangdao 066004, China)

**Abstract:** A series of multiferroic ceramics  $1-x(0.71\text{BiFeO}_3-0.29\text{BaTiO}_3)-x\text{LaFeO}_3$  ( $x=0.0, 0.1, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5$ ) were synthesized by solid state reaction. The effects of LaFeO<sub>3</sub> content in 0.71BiFeO<sub>3</sub>-0.29BaTiO<sub>3</sub> system on phase, microstructure, electric and magnetoelectric properties were investigated. The results show that all the ceramics form a single phase perovskite structure, and structural phase transition occurs with the increase of LaFeO<sub>3</sub>. The ceramics show good microscopic appearance. The grain sizes are uniform and decrease obviously with increasing the LaFeO<sub>3</sub>, which acts as an inhibitor for grain growth. The dielectric constants decrease with the doping of LaFeO<sub>3</sub>. The ceramic of  $x=0.1$  exhibits low leakage current density  $J$  with the value around  $10^{-7}\sim 10^{-8}$  A/cm<sup>2</sup>. With the increase of LaFeO<sub>3</sub>, the remnant polarization and the magnetoelectric coefficient  $\alpha_{\text{ME}}$  of the ceramics attain the maximum at  $x=0.1$ , with the value of  $P_r = 0.45$   $\mu\text{C}/\text{cm}^2$  and  $\alpha_{\text{ME}}=132.21$  mV/cm·Oe, respectively. These results suggest that the ferroelectricity properties and ferromagnetism effect can be improved simultaneously by adding suitable LaFeO<sub>3</sub>.

**Key words:** multiferroic ceramics; microstructure; electric properties; magnetoelectric effect

---

Corresponding author: Qi Xiwei, Ph. D., Professor, Northeastern University at Qinhuangdao Branch, Qinhuangdao 066004, P. R. China, Tel: 0086-335-8053004, E-mail: xiweiqi1974@163.com