

# 数据科学范式下的钙钛矿结构铁电新材料研究

于剑<sup>1</sup>, 褚君浩<sup>1,2\*</sup>

1. 东华大学功能材料研究所, 上海 201620

2. 中国科学院上海技术物理研究所; 红外物理国家重点实验室, 上海 200092

**摘要** 材料基因组计划倡导预测式新材料研发理念, 推进高通量数据生产和利用技术, 关注材料全生命周期价值。因此, 材料基因组计划的执行需要在材料科学系统工程的框架下, 集成统一计算、实验和理论等研究方法, 以数据科学新范式为牵引、协同运用实验观测、理论建模和计算仿真研究范式, 最终建立相关材料体系的性能与材料基因(原子系统的组成与结构)、工艺参数与使役条件之间的量化关系和数据库, 实现新材料的按需设计和应用。本文在简单探讨科学研究范式、材料基因组计划和材料科学系统工程基本概念和方法的基础上, 以钙钛矿结构氧化物铁电电压电材料研究为例, 探讨了数据科学范式下的新材料研究实践。结果表明, 数据挖掘驱动的新材料设计确实可以降低探索时间和实验任务, 加快新材料的发现和工程应用进程。

**关键词** 数据科学范式; 材料基因组; 数据挖掘; 钙钛矿氧化物; 铁电电压电陶瓷

材料的发现和利用历史, 是一部人类文明的发展史。纵观人类历史, 材料技术面临的一个巨大挑战是新材料开发周期过长, 即使在科学技术高速发达的今天依然如此。传统上, 材料科学是通过尝试、观测和分析材料对象来发现知识, 通过揭示材料系统的决定性特征、内部工作原理以及材料系统对外场响应结果的原理, 帮助人们理解材料、探索新材料。材料研究从试错式(trial-and-error)走向预测式的一个基石是材料数据的快速规模生产和有效利用, 近年来, 一种新的材料研究范式已呼之欲出。相对于实验观测、理论建模、计算仿真等研究范式, 数据科学范式下材料的研究框架是数据→信息→知识→智慧, 即通过对数据的挖掘获

得有价值的信息、转化为可靠的知识、上升为能够辅助决策的智慧, 通过发展原子堆积系统状态的裁剪原理和手段, 实现材料的按需设计和应用。

## 1 数据科学研究范式的缘起

科学研究范式(paradigm)是指科学研究群体赖以运作的理论基础和实践规范, 是关于研究的一系列基本观念、方法和规范<sup>[1-4]</sup>。在人类对材料认知和利用的过程中, 研究范式也在不断进化。时至今日, 经历了实验观测、理论建模、计算仿真和数据科学4种范式。实验观测范式主要以记录和描述自然现象为特征, 采用

收稿日期: 2018-04-11; 修回日期: 2018-10-15

基金项目: 国家自然科学基金项目(61771122)

作者简介: 于剑, 教授, 研究方向为钙钛矿结构磁电、压电、光电陶瓷新材料及压电陶瓷材料器件一体化技术, 电子信箱: jyu@dhu.edu.cn; 褚君浩(通信作者), 研究员, 中国科学院院士, 研究方向为红外光电功能材料与器件, 电子信箱: jhchu@mail.sitp.ac.cn

引用格式: 于剑, 褚君浩. 数据科学范式下的钙钛矿结构铁电新材料研究[J]. 科技导报, 2019, 37(11): 71-81; doi: 10.3981/j.issn.1000-7857.2019.11.009

的是归纳法。理论建模范式是借由观察实际存在的现象或逻辑推论得到某种理论,采用的是演绎法、不再局限于描述经验事实。计算仿真范式是以计算机为工具、对原子堆积系统进行模拟仿真,揭示材料的变化原理。

2011年,美国总统宣布启动材料基因组计划(Materials Genome Initiative, MGI)是材料研究历史上的一个标志性事件。它的总目标是通过集成计算、理论与实验,将先进材料从发现、开发、制造到使用的速度提高一倍(由原来的10~20年缩减到5~10年)、将成本降为原来的一小部分<sup>[5-7]</sup>。材料基因组计划研究理念、关键技术、研究目标等要素及其关系如图1所示。

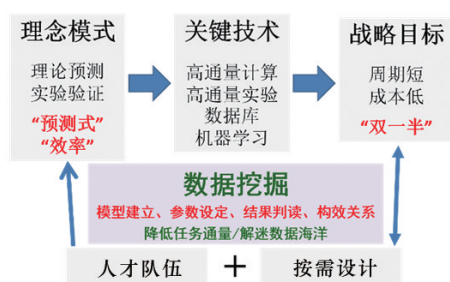


图1 材料基因组计划研究理念、关键技术、研究目标等要素及其关系

Fig. 1 Research idea and mode, key technologies, targets of MGI and their relationship

材料的物理化学特性因不同的应用要求进行相应的调整,材料特性在合成、生产和使用过程中会发生改变,对这些特性进行跟踪是一项艰巨的任务,伴随着大量的数据产生。传统的材料研究方式是试错式,即利用现有材料理论和经验,通过调整材料配比,进行表征测试和检验,最终找到满足需求的材料。MGI率先倡导新材料研发理念与模式转变,提倡和推进由经验指导实验转向理论预测、实验验证。MGI推进计算建模、实验工具、数据库一体化研究方法,寻求计算、实验和数据研究方法的无缝集成。其中,数据共享与计算工具开发对MGI的成功至关重要:一方面,计算材料学目前尚不具备预测所有材料性能的能力,要根据所研究的材料方向灵活地组合使用,才能获得较好的效果;另一方面,能否摒弃试错式、成功实现预测式材料设计的关键是数据挖掘、信息提取和知识获得。《易经·系辞》曾言:“形而上者谓之道,形而下者谓之器;化而裁之谓之道,推而行之谓之道。”仿真计算、实验观测和数据库等活动属于材料研究“器”的层面,侧重数据积累和管理,而数据挖掘可提供计算模型构建原则、设定合适的计

算输入参数、提供判读计算结果合理性的依据、发现材料的构效关系,属于材料研究“道”的层面,而道的认知是实现预测、降低任务通量、达到材料研发“双减半”战略目标的保障。

在MGI的推波助澜下,材料数据量正呈现爆炸性增长,人们已经面临了一个重要问题:无法使用目前的数据管理工具在能够容忍的时间内收集、管理和分析处理数据集。由此,数据科学范式开始浮出水面,科学研究方法也开始由传统的假设驱动的探索向数据驱动的探索转变。计算机将不再仅仅是数据采集、管理和仿真工具,还要进行分析总结、知识发现等人工智能。

大数据是一种现象、是一个问题、是一种挑战。它不仅包括数据量的挑战,还包括数据结构、数据融合和数据处理效率方面的挑战。数据科学的主要特征是采用计算机进行数据采集、传输、存储、管理,进行数据清洗和整合,通过机器学习等方法和技术挖掘数据之间的关联关系,完成知识的发现。数据科学范式是以数据的生产和利用为中心进行科学探索,它是在实验观测、理论建模和计算仿真范式基础上集成统一的新范式。

科学研究过程中,学者们经常过分重视科学数据加工后的成果,只取金字塔顶的价值来利用,而忽视了形成该成果之前链条的价值。位于塔底的支撑数据和过程演化数据的科学价值其实比结果的利用价值更高。它不仅可以帮助相关学者在做相似研究时更好地理解最终成果是如何形成的,还可以作为其他学者的研究材料;同时,实现数据共享,还可以起到学术监督作用。

## 2 数据科学范式下的材料科学研究内涵

近现代科学研究体系的构建是以分析为主,把材料科学细分为不同的学科,而不同的学科关注不同的侧面,例如:材料化学侧重的内涵是研究组成-结构-性质之间的关系;陶瓷科学的内涵是研究组成-制备-微结构-性质之间的关系;材料科学的内涵是研究组成-制备-结构-性质之间的关系(图2(a))。科学本身是一个内在的整体,它被分解成一些学科门类,这不是取决于事物的本质,而是取决于人类认识能力的局限性。现如今,MGI包含了材料从基础发现、关键技术研发、规模制备到示范应用的全链条协同,涵盖了材料的全生命周期<sup>[5-9]</sup>。因此,我们需要把材料作为一个整体,从系统工程的角度重构材料科学研究的内涵(图2(b))。

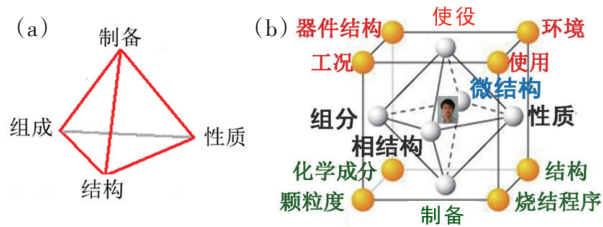


图2 材料科学研究内涵(a)传统版和(b)系统工程版  
Fig. 2 Material science compositions: (a) conventional version and (b) systematical engineering version

自然界中的万物是通过物理进化、化学进化、生物进化由物质、能量、信息(物质三维)有序积聚形成的。对材料而言,按某种方式排列聚集的原子集合是其物质维;不同的原子排列方式具有不同的自由能是其能量维;材料的性质是原子堆积系统特定状态对外界刺激的响应,属于信息维。人类对材料的认知就是不断探索物质、能量、信息三维存在的函数关系和关联关系的过程。

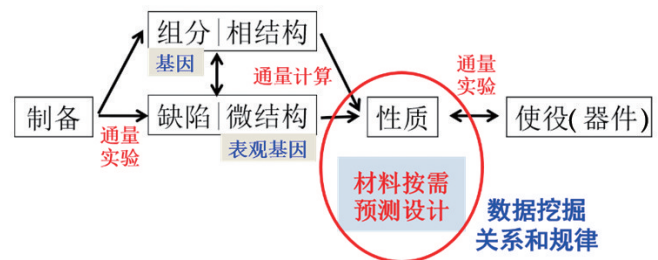
材料基因组计划是类比人类基因组计划得名的。人类的基因记录在DNA序列里,碱基对排列次序的不同称为表观基因,二者共同决定了人体的主要机能性状。与此类似,元素周期表中原子的性质和排列包括晶体结构和缺陷、人造“准原子”的性质和空间排列决定了材料的内在性能。材料科学系统工程的任务即是寻找和建立原子(准原子)及其排列方式(基因)、缺陷和显微结构(表观基因)与材料性能之间的关联关系,寻找和建立工艺条件、使役环境和条件对材料基因和表观基因(缺陷和显微结构)的剪裁和干预。

在核能领域,原子核的裂变/聚变反应涉及材料原子种类的变化,属于材料基因突变的范畴;高能粒子对材料的轰击涉及晶体结构、缺陷和显微结构等原子排列方式的变化,属于材料基因转变的范畴。而在非核能领域,化学反应和物理变化不涉及原子种类的变化,材料制备和加工工艺条件的不同、使役环境的变化干预的仅是晶体结构、缺陷和显微结构等原子排列方式的变化。由此可见,在非核能领域,选定组成材料的元素种类和比例后,材料的制备、加工、使用环境等条件的变化导致材料性质(性能)的变化都来源于原子排列状态的变化,“化而裁之、推而行之”变通的只是原子排列的状态。

先进制造工业面临的材料问题是“急需的新材料找不到、找到了又做不出、能做出来又做不好”。传统

材料研究好比炒菜,科学家凭经验与感觉,实验尝试不同配方,做出一个样品,测试一下性能。这样的数据生产方式耗时费力。在数据科学范式中,数据是研究的入口,当前面临的主要问题仍然是数据不足和缺失的问题。因此,MGI抓住这一主要矛盾,摒弃传统“一次一个任务”的研究模式,采用高通量实验和高通量计算并行技术来快速生产数据、发展数据库技术来储存管理数据、发展机器学习等人工智能分析数据,协同作用以期尽快获得材料的性能与材料基因(genome:组成与结构)、表观基因(epigenome:缺陷与显微结构)、工艺参数和使役条件之间的量化关系,最终建立新材料按需设计和可控制备的数据库。获得图2(b)所示材料不同内涵间的量化关系,是从传统经验“炒菜”走向理论预测、实验验证,最终实现材料按需设计和生产的关键。

科学发展到今天,人类已基本了解了每种元素的特性,期待基于元素周期表与晶格对称性等理论基础,通过结构计算和模拟优化、预测元素组合和原子空间排列确定后能得到哪些可能的优良性质。MGI倡导的高通量计算和高通量实验两大关键技术属于从薄到厚把小数据变成大数据的数据生产范畴。在图3中,从数据科学范式的角度给出了MGI推进的关键技术在材料不同内涵数据流中的位置,箭头方向标示数据流的方向。这个过程中,对海量数据的管理和挖掘,将超出人的管理和分析能力,迫切需要计算机的机器学习等人工智能工具执行相关工作。对于MGI关键技术的作用,必须清醒地认识到海量数据的生产不是目的,如何



注:箭头表示数据流方向。数据科学范式下的工作是采用高通量计算和高通量实验技术生产数据,沿着数据流的方向,挖掘材料不同内涵之间的量化关系和规律。材料设计是从使役需求、材料基因和制备工艺三条线出发,以量化构效关系和规律及其数据库为基础,在材料的性质内涵处交汇,实现预测式的按需设计和生产

图3 材料科学系统工程中材料研究的内涵、数据流和材料基因组计划推行的关键技术及其关系

Fig. 3 Research components, data-stream, MGI key technologies and their relationships in system engineering of material science

有效利用数据获得信息和知识才是科学研究的永恒主题。如果不能提高数据的利用和挖掘能力,不仅会躺在大数据上什么认知也得不到,还会淹没在数据海洋里葬送研究的生命。

数据科学范式下的主要工作是对数据进行清洗和管理、梳理数据之间的隐显关系,挖掘信息、发现知识,属于从厚到薄把大数据变成小数据的分析范畴。概念、属性、关系是理解和认知的基石,人类的智慧既包含对充足数据进行理性的逻辑推理,也包含对零散数据进行通情达理的直觉梳理;而机器不能把不同性质的东西联系起来,它对数据的处理主要表现为存储与计算,通过计算进行分类聚类、构建认知模型、辅助决策等<sup>[10-11]</sup>。与计算机相比,人会算计,能把对立的、看似不相干的数据进行整合;人会忽略那些非关键数据、忘记那些不重要信息,从而在诸多事物中游刃有余地提取特征、发现关联、跟随变化、定义概念和规范、把握因果等<sup>[11]</sup>。人脑的数据处理和运算能力虽然不及计算机,但计算机扮演的角色也只是人类用来分析数据的工具,起决定作用的终究还是人。

虽然人们生活在大数据时代,但有用(效)的材料数据还是有限的,这样的数据贫乏会伴随我们相当长的时间。如何发挥人的能动性、在有限数据量的基础上进行预测式材料设计探索、降低任务通量呢?对此,美国洛斯阿拉莫斯国家实验室的T. Lookman研究组提出了一种基于有限数据量、机器学习优化预测、实验和计算交叉迭代的新材料共设计(codesign)回路方案<sup>[12]</sup>。共设计回路的中心思想是:针对一个特定的需求目标,设计一个有效算法,从现有理论、模拟和实验数据中为下一步实验和计算“学习”寻找候选材料体系,充分利用领域知识(domain knowledge)进行目标问题的约束迭代求解,在循环过程中不断优化学习模型和算法,直至获得所期待的材料。到目前为止,基于材料信息学和材料基因组学,人们已尝试算法模型、物理模型、数据库统计等多种新材料预测设计方法和研究回路,总结各方结果,提出如图4所示的数据科学范式下的新材料共设计回路图。

确定、优化材料组分/工艺需要领域知识,而领域知识(凝聚态物理理论、材料理论等)的构建毫无疑问需要一定的数据量。不管采用什么策略、什么技术,获得相对足够的数据量是任何研究活动的基本工作。

要实现材料的预测设计,既需要正向探索材料的

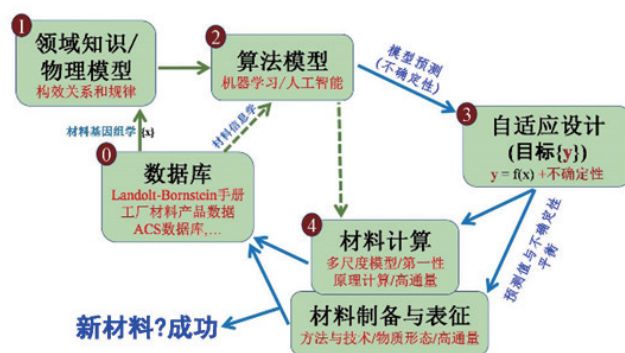


图4 数据科学范式下的新材料共设计方法和研究回路示意

Fig. 4 schematic material codesign research loop within paradigm of data science

组成单元-组装机理-协同性能之间的关系,又需要反向考虑材料的应用需求-结构和组成-制备工艺之间的关系;在正-反闭合迭代循环过程中,探明材料的基本构成、剪裁其排列方式、开发出适用的新材料体系及其制备加工工艺。

### 3 钙钛矿结构铁电材料构效关系数据挖掘

钙钛矿结构氧化物是一类奇特多变、性能丰富的功能材料。从20世纪40年代钛酸钡铁电材料发现至今,试错式的实验观测依然是钙钛矿铁电材料研究的主要范式。在实验观测基础上发展起来的朗道热力学相变理论、软模理论、电子杂化理论等属于理论建模第二范式;这些唯象理论是对观测结果进行事后解释思维方式的产物,表现出碎片化、补丁型特征。量子力学理论用于钙钛矿结构氧化物性能计算开创了计算仿真的范式研究,它是建立在原(离)子相互作用势函数已知的基础之上:相互作用势函数或相互作用力常数越准确,仿真计算结果的可靠性越高。否则,计算结果与观测事实之间的差别会过大,甚至计算数据没有实际意义。对复杂相互作用势函数的分析拟合、对复杂体系的仿真计算都需要计算机进行高速运算,以便尽快得到结果。

钙钛矿结构氧化物的化学通式是 $ABO_3$ ,其晶体结构元胞如图5(左上)所示,其中,A/B原子既可为一种元素,也可为复杂的元素组合。换句话说,选定钙钛矿晶体结构,复杂的化学组成构成一个巨大的相空间。钙钛矿结构氧化物的高温原型(prototypical)相为高对称

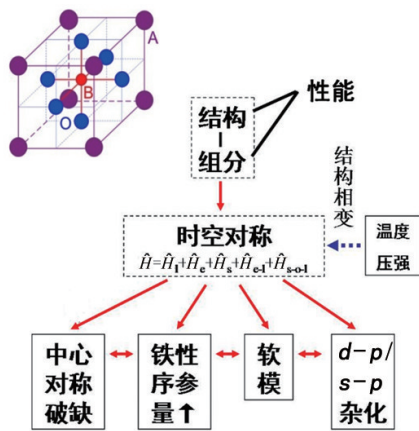


图5 钙钛矿结构氧化物元胞示意图(左上)和材料结构-组成-性质之间的逻辑关系

Fig. 5 Unit cell of perovskite-type oxides (left-upper corner) and the hierarchical relationships among the structure, composition and properties of perovskite

性的立方相;由于组成元素及其含量的不同,降低温度,立方相会发生结构相变进入低对称性的铁弹相、铁电相、铁磁相等有序相,表现出丰富的功能特性。显然,组成钙钛矿结构元素的性质(材料的基因)决定了有序相的性质。从固体物理量子力学哈密顿算符可见,原子质量控制系统的动能项,对称性和原(离)子大小等控制系统的势能项;虽然钙钛矿晶体结构中原子的相对位置关系不变,但不同原子堆积系统的动能项和势能项对最小自由能的贡献不同,导致钙钛矿结构在低温下具有不同低对称性的有序相。此时,人们自然会问钙钛矿结构氧化物什么时候发生结构相变,有序相的本质是什么,序参量如何,不同性质参数之间的定量关系如何等问题。

如图5所示,当选定了钙钛矿结构,通过机器学习等数据挖掘选择可能的元素组合、输入哈密顿量的计算参数,即可通过计算钙钛矿结构氧化物不同对称性晶体构型的稳定性、获得稳定的晶格构型,从晶格对称性可以判断有序相的本质,进而再计算晶格动力学声子谱、电子能带结构、电子态密度分布、极化强度、外场响应等性能。然后选择优化的体系进行合成制备和检测、验证计算的准确性。此即MGI倡导的计算预测、实验验证新材料研发模式。

由于组成钙钛矿结构氧化物的元素组合相空间非常大、简单的无规探索有太多可能性,基于试错式的高通量计算/实验工作量非常巨大,既耗时成本又高。这

些年,凝聚态物理和高性能计算取得长足发展,第一性原理计算已可以预测钙钛矿铁电体的弹性常数、原子间距、晶体结构、极化强度等物理性质,然而,考查钙钛矿结构氧化物仿真计算的发展状况,可以发现,钙钛矿铁电体的仿真计算结果仍差强人意,尚需在计算模型的准确性等方面下些大功夫<sup>[13-14]</sup>。环顾不同材料方向的发展状况,对钙钛矿铁电陶瓷材料而言,发展适用的高通量计算和高通量实验技术都还需要些时间。

自然(nature)是一台优异的“计算机”,虽然不知道它如何设定势函数、如何选择输入运算参数,但它给出了选定体系的稳态构型,可以直接实验测量“计算”输出结果的状态和外场响应性能。换句话说,数据科学范式是在即使不知道相互作用势函数具体形式的情况下,对材料的原子组成和排列选择合适的描述符(descriptor)<sup>[15]</sup>,通过对已知数据进行挖掘就可建立材料性质与组成元素、原子排列等材料基因之间的量化关系,建立材料不同性质数据之间的关联关系,为新材料预测设计和制造提供指导。近年来,于剑课题组对钙钛矿氧化物铁电材料做了些数据挖掘工作,取得一些结果。兹举几个例子如下。

70多年的发展,钙钛矿结构氧化物铁电材料研究已积累了相当多的数据、发展了朗道热力学相变理论等唯象理论,允许人们采用数据科学范式,按材料科学的系统工程观点,综合运用理论探索、计算仿真、实验观测和数据挖掘方法协同开展工作,以构建铁电材料按需预测设计和可控制备的理论体系和数据库。例如,铁电-顺电结构相变居里温度( $T_c$ )是决定材料工作温度范围和温度老化稳定性的一个关键参数。对于钙钛矿结构二元固溶体,实验已观测到相变居里温度与浓度( $x$ )存在线性: $T_c(x)=a+bx$ 和非线性关系: $T_c(x)=a+bx+cx^2$ 量化关系<sup>[16-17]</sup>。此处,固溶体浓度仅是构成钙钛矿结构氧化物元素组成的比例参数,不属于原子理论揭示的质量、尺寸、形状等原子的特征量。热力学相变理论给出的结构相变临界条件是涨落(包括热涨落和量子零点涨落)与序参量相等;晶格动力学量子理论表明涨落是由动能项描述,而动能项只与原子的质量有关;为此我们可以定义一个钙钛矿结构氧化物元胞的约合质量( $\mu$ )作为涨落的描述符。使用Origin数据处理软件包对钙钛矿结构二元固溶体居里温度数据进行再拟合,于剑课题组发现居里温度 $T_c$ 与元胞约合质量 $\mu$ 之间满足 $T_c(\mu)=a+b\mu+c\mu^2$ 关系,其中 $a$ 、 $b$ 和 $c$ 为量化系

数。进一步的数据挖掘表明,  $T_c$ 与 $\mu$ 间的量化关系在钙钛矿结构氧化物材料中具有普适性, 它不仅可以描述二元固溶体, 还可以描述三元、四元固溶体和简单钙钛矿结构等氧化物的铁电结构相变温度; 甚至适用于描述钙钛矿结构氧化物的铁弹结构相变温度<sup>[18-19]</sup>。量化系数( $a$ 、 $b$ 和 $c$ )与元素的种类有关, 可以用量化系数对元素的性质进行分类: (1)  $b < 0$ 和 $c > 0$ , 居里温度单调上升, 例如简单钙钛矿  $\text{ATiO}_3$  ( $A = \text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba}$  和  $\text{Pb}$ ) 及其固溶体,  $\text{PbTiO}_3\text{-Bi}(\text{Zn}_{1/2}\text{Ti}_{1/2})\text{O}_3$ ,  $\text{PbTiO}_3\text{-BiFeO}_3$ ,  $(\text{Pb}_{0.6-x}\text{Bi}_{0.4}\text{Ca}_x)(\text{Ti}_{0.75}\text{Zn}_{0.15}\text{Fe}_{0.10})\text{O}_3$  ( $x \leq 0.18$ ); (2)  $b > 0$ 和 $c < 0$ , 居里温度在 $\mu_m$ 处极大, 偏离 $\mu_m$ 后居里温度下降, 例如  $\text{PbTiO}_3\text{-BiBO}_3$  ( $B = \text{Sc}, \text{Mg}_{1/2}\text{Ti}_{1/2}/\text{Mg}_{3/4}\text{W}_{1/4}$ ) 固溶体。

钙钛矿结构氧化物的相变温度与元胞约合质量的定量关系仅回答了什么时候会发生晶体结构相变, 与相变前后晶体对称性的具体形式没有关系。铁性相变的本质是由序参量的性质决定的。对于钙钛矿结构氧化物, 由离子大小定义的结构容忍因子( $t$ )是一个预测铁弹结构相变的好描述符, 采用Shannon离子半径数据(室温)计算钙钛矿结构氧化物的 $t$ 值, 数据挖掘表明: (1)  $t > 1$ 时, 晶体发生立方-四方结构相变, 比如  $\text{BaTiO}_3$  和  $\text{PbTiO}_3$  (铁电-铁弹体); (2)  $t = 1$ 时, 晶体处于立方相, 比如  $\text{SrTiO}_3$  (量子顺电-铁弹体); (3)  $t < 1$ 时, 晶体发生立方-三方(或正交、单斜)相变, 例如  $\text{BiFeO}_3$  (铁电-反铁磁-铁弹体),  $\text{PbZrO}_3$  (反铁电-铁弹体),  $\text{CaTiO}_3$  和  $\text{KTaO}_3$  (量子顺电-铁弹体),  $\text{LaAlO}_3$  (铁弹体)。由于铁电相变是铁弹相变, 但铁弹相变不一定是铁电相变, 因此 $t$ 不是预测铁电相变的好描述符。

铁电体的首要基本特征是自发极化在电场作用下可以反向, 即具有电滞回线; 对晶体对称性进行挖掘, 钙钛矿结构材料具有铁电性的晶体点群只有 2, 3, 4,  $m$ ,  $mm2$ ,  $3m$  和  $4mm$  这 7 种。从晶体结构角度讲, 铁电体产生自发极化的必要条件是铁电活性离子偏离对称中心位置。S. Abrahams 曾给出一个未证明的铁电体的判断规则:  $0 < r < 0.01 \text{ nm}$ , 式中  $r$  为离子偏离对称中心的距离, 不等式中的上限设定有一定的随意性, 但它远小于近邻离子的键长<sup>[20]</sup>。实验也确实观测到钛酸钡和钛酸铅铁电自发极化强度( $P_s$ )与铁电活性离子偏离对称中心的距离成正比( $P_s \propto r$ )、居里温度与 $r$ 的平方成正比( $T_c \propto r^2$ )<sup>[21]</sup>。换句话说, 钙钛矿结构氧化物能否发生铁电相变的必要条件是 B 位离子小于  $\text{BO}_6$  八面体的间隙, 即 B 位离子体积和氧八面体间隙体积是决定铁电相变

的材料基因, 铁电活性离子偏离对称中心的距离 $r$ 可作为原子尺度描述铁电性的描述符<sup>[19]</sup>。

对铁性有序相, 还需要能够预测序参量的大小。铁弹体的序参量是自发应变。对于四方相钙钛矿结构氧化物, 铁弹序参量 $\delta$ 可用四方相结构畸变( $cla$ )来描述:  $\delta = \frac{c}{a} - 1$ 。对于钛酸钡和钛酸铅, 铁电相变居里温度与自发极化强度、与自发应变存在下述关系<sup>[21]</sup>:  $T_c \propto P_s^2 \propto \delta$ 。数据挖掘发现, 钙钛矿结构氧化物居里温度与自发应变序参量存在线性和非线性两种量化关系, 前者包括四方相  $\text{PbTiO}_3\text{-Bi}(\text{Zn}_{1/2}\text{Ti}_{1/2})\text{O}_3$ ,  $\text{PbTiO}_3\text{-BiFeO}_3$  等体系, 后者包括四方相  $\text{PbTiO}_3\text{-BiScO}_3$ ,  $(\text{Pb}, \text{Ba}, \text{Sr})\text{TiO}_3$ ,  $(\text{Pb}_{0.6-x}\text{Bi}_{0.4}\text{Ca}_x)(\text{Ti}_{0.75}\text{Zn}_{0.15}\text{Fe}_{0.10})\text{O}_3$  ( $x \leq 0.18$ ) 等体系<sup>[19, 22-23]</sup>。

对于铁电序参量, 朗道热力学理论模型分析和简单钙钛矿体系实验测量虽然也观察到一些量化关系。然而, 由于实验对象通常是“脏(dirty)”的, 一方面很难获得完美的材料对象, 实际样品或多或少都会含有带电缺陷、局域微观应变等不完整性; 另一方面, 为调控性能常常还会人为引入杂质、缺陷等晶格不完整性, 因此, 实验测量的极化强度是包含铁电自发极化、缺陷偶极子、应变诱导极化等多种因素的综合结果。此时, 人工对多变量关联关系进行数据挖掘显得力不从心, 需要使用计算机的模式识别、主动机器学习等人工智能辅助数据挖掘<sup>[24]</sup>。

铁电体具有压电效应, 即力-电交叉耦合效应。铁电材料的介电性质是描述外加电场作用下极化强度的变化响应, 压电性质是外加应力场作用下极化强度的变化响应。既然介电性质和压电性质都反映的是极化强度对外场的响应, 它们之间存在关联关系。朗道热力学唯象理论给出  $d_{33} = 2Q_{11}P_3\epsilon_{33}$ , 式中  $d_{33}$  和  $\epsilon_{33}$  分别为平行极化方向的压电常数和介电常数,  $P_3$  为诱导极化强度,  $Q_{11}$  为电致伸缩系数。根据电介质理论, 诱导极化强度包括极化强度的变化及其与此关联的退极化场的变化两部分, 由此上述  $d_{33}$  与  $\epsilon_{33}$  关系经数学变换转化为下列形式:  $d_{33} = \alpha\epsilon_{33} - \beta\epsilon_{33}^2$ , 式中  $\alpha$  和  $\beta$  不是固定常数<sup>[25-26]</sup>。收集铁电陶瓷材料的工厂和文献数据, 用Origin数据处理软件包经最小二乘法拟合, 于剑课题组发现  $d_{33}$  和  $\epsilon_{33}$  满足  $d_{33} = 0.24\epsilon_{33} - 0.000018\epsilon_{33}^2$  统计关系<sup>[27]</sup>。铁电陶瓷压电常数  $d_{33}$  与介电常数  $\epsilon_{33}$  间的量化关联关系表明, 要获得高的压电响应、需要寻找那些高介电常数的材料体系。进一步的数据挖掘发现, 钛酸铅(PZT)压电陶瓷材料之所以形成一系列规格的商用材料, 是综合利

用了组成元素、结构相界、掺杂和显微结构调控等方法。因此,探索铁电压电陶瓷新材料,介电常数和压电响应性质的调控应综合运用组成元素、结构相界、掺杂和显微结构等调控方法;构建固溶体结构相界仅仅是其中的一个重要调控因素,当前,学术界有把它万能化的倾向。

上述工作打开了数据科学范式的冰山一角,还有更多的关联关系等待我们去挖掘;与此同时,对这些量化关系进行模型建构和解读也是当务之急。

#### 4 数据挖掘驱动的钙钛矿铁电新材料设计

超声回波测量法是工业应用三大无损检测方法之一,压电陶瓷是制作超声波发生器和检波器的核心功能材料。压电加速度传感器/振动传感器用于测量振动、冲击、速度、位移和倾斜等,是基于物联网技术的在线监控基础传感器。与机械式、光学式传感器相比,压电式加速度传感器具有灵敏度高,体积小重量轻,带域宽、高频响应以及动态响应特性好,机械强度高,环境适应性好等特点。在压电传感器种类繁多的应用领域里,在飞机发动机和燃气轮机、核电站反应堆、石油测井、石油化工管道等 200℃以上的高温环境它们具有不可替代的作用<sup>[28-29]</sup>。2016年,国务院发布的“十三五”重大专项<sup>[30]</sup>包括“航空发动机及燃气轮机”和“大型先进压水堆及高温气冷堆核电站”两项强国重大工程<sup>[30]</sup>,极端环境振动监测和无损检测压电传感器是关系这些系统安全运行的基础传感器、超高性能高温压电陶瓷是制作这些传感器的核心功能材料。目前商用的类钙钛矿偏铌酸铅和钛酸铋压电陶瓷材料性能较低,当下只是暂且解决了有无问题。要构建中国具有国际竞争力的现代产业技术体系,上述重大工程对高温压电传感器的灵敏度和分辨率都提出了新挑战,研发与偏铌酸铅、钛酸铋等陶瓷材料居里温度相当、具有更高压电响应性能的铁电压电陶瓷新材料就成为一项迫切任务。

20世纪50年代,钙钛矿结构PZT铁电固溶体陶瓷的发明开创了高性能压电陶瓷材料广泛应用的时代,在水下导航、通讯和监控、工业生产质量检测、设备运行监控、身体健康检查、家用电器等领域的市场规模超过20亿美元。PZT压电陶瓷材料中,铅的比重超过60%,从环境保护和生物兼容角度出发,世界主要国家对铅的使用都推出了限制政策。铌酸钾钠、钛酸铋钠-

钛酸钡等压电陶瓷虽已经广泛研究,但高稳定性环境友好无铅压电陶瓷新材料依然是空白<sup>[31-32]</sup>。现阶段,发展超高性能高温压电陶瓷、高稳定性环境友好无铅压电陶瓷新材料是关系国家重大工程和国计民生的一个基础工作。

对铁电压电陶瓷材料进行数据挖掘,可以发现:(1)在三方-四方准同型结构相界附近,通过Zr/Ti组分控制和使用微量添加元素对PZT陶瓷的晶体结构和电学性能进行调控,可以方便地获得所需的综合性能;然而,商用PZT压电陶瓷的居里温度 $T_c < 387^\circ\text{C}$ ,不适合200℃以上的高温应用。铁电材料压电常数 $d_{33}$ 与介电常数 $\epsilon_{33}$ 间的定量关系表明,与组分关联的晶体结构相界仅仅是增强压电响应性能众多因素中的一个结构因素。(2)通过对铌酸钾钠、钛酸铋钠-钛酸钡等无铅压电陶瓷进行组分调控,它们的压电响应性能已提高到与PZT陶瓷相当;然而,结构相界附近的这些体系在 $T_c$ 温度以下存在温度诱导的铁电-(反)铁电结构相变,这一结构特征导致铌酸钾钠、钛酸铋钠-钛酸钡等无铅压电陶瓷温度稳定性很差,至今无法走向工业应用<sup>[32]</sup>。对控制温度稳定性的因素挖掘可知,提高钙钛矿结构氧化物的居里温度、去除 $T_c$ 温度以下的结构相变(或结构相界垂直化)是提高压电陶瓷温度稳定性的必要条件。

钙钛矿结构氧化物居里温度 $T_c$ 与元胞约合质量 $\mu$ 的量化关系为我们选择元素提示了重要方向,即要选择那些 $\mu$ 大的钙钛矿氧化物进行高温压电陶瓷新材料的探索。对Landolt-Börnstein手册<sup>[33]</sup>和美国化学会数据库等进行挖掘,目前已知的热力学稳定、高居里温度的简单钙钛矿结构氧化物只有铁酸铋 $\text{BiFeO}_3$ ( $T_c=830^\circ\text{C}$ )和钛酸铅 $\text{PbTiO}_3$ ( $T_c=490^\circ\text{C}$ );同时,三方相 $\text{BiFeO}_3$ 与四方相 $\text{PbTiO}_3$ 结构容忍因子有较大差异,理论和实践都表明它们可构成连续固溶体,具有类似PZT的结构相界, $\text{BiFeO}_3-x\text{PbTiO}_3$ (BF-PT)二元固溶体四方-三方/四方共存结构相界附近材料的 $T_c=632^\circ\text{C}$ ( $x=0.33$ )。虽然钛酸钡 $\text{BaTiO}_3$ 的 $T_c$ 只有 $120^\circ\text{C}$ ,但 $\text{BiFeO}_3-x\text{BaTiO}_3$ (BF-BT)固溶体三方-立方结构相界附近 $T_c\sim 480^\circ\text{C}$ ( $x\sim 0.30$ )。因此,钙钛矿结构BF-PT和BF-BT固溶体是研发高温铁电压电陶瓷材料的候选体系。然而,有两个问题困扰着BF-PT、BF-BT固溶体的实验研究:(1) $\text{BiFeO}_3$ 基陶瓷材料具有较大的漏电流和介电损耗,限制了铁电、压电等电学性能的实验测量;(2)四方相BF-PT固溶体和 $\text{PbTiO}_3$ 陶瓷材料具有恶劣的机械性能。要

使铁电 BF-BT、BF-PT 固溶体物质成材, 离不开材料设计与制备新原理和新方法的发展与突破, 这两个问题的解决将奠定研发高性能高温钙钛矿结构铁电电压电陶瓷新材料的基础。

铁电体必须为高阻绝缘体, 制备高电阻、低介电损耗的铁电陶瓷材料是材料研究和工程应用的基本要求。迄今, 铋元素挥发、杂相共存、 $\text{Fe}^{3+}/\text{Fe}^{2+}$  共存、钙钛矿结构相的热力学稳定性低等机制被用于解释铁酸铋基材料的高漏电、高损耗现象。国内外学者对此进行了多方探索, 取得了诸多重要进展。对结构相界附近组分的 BF-BT 基陶瓷, 上海大学程晋荣和四川师范大学侯敏课题组获得的介电损耗  $\tan\delta$  最小在 4.2% 的水平; 于剑课题组获得了目前国内外最低的介电损耗  $\tan\delta \sim 3.3\%$ 。于剑课题组采用改进的固相反应电子陶瓷工艺、基于三元固溶体的双元素掺杂技术, 已在  $\text{BiFeO}_3$ - $\text{Bi}(\text{Zn}_{0.5}\text{Ti}_{0.5})\text{O}_3$  (BZT)- $\text{ATiO}_3$  (A=Pb, Ba, Sr, Ca) 等多种三元固溶体中获得了  $\tan\delta$  低于 2% 的低介电损耗的铁酸铋基陶瓷材料, 并澄清了导致铁酸铋基陶瓷材料高介电损耗的物理化学机制<sup>[25-27,34]</sup>。需要指出的是, 国内外很多文献都没有给出铁酸铋基陶瓷材料工程应用至关重要的介电损耗数据。

对四方相 BF-PT 和  $\text{PbTiO}_3$  铁电体, 通常把陶瓷的粉化归结于四方相具有较大的结晶学各向异性和负体积热膨胀系数共同作用导致的张应力。反观 PZT 体系, 数据挖掘表明,  $\text{PbZrO}_3$  加入  $\text{PbTiO}_3$  后使得结构相界

附近组分固溶体的热膨胀系数在零附近, 这是 PZT 压电陶瓷材料具有优异力、电综合性能的一个重要原因<sup>[33]</sup>。通过添加 BZT 等第三组元调控热膨胀系数, 国内外多个课题组获得了多种机械性能良好的 BF-PT 基铁电陶瓷<sup>[35-36]</sup>。

材料基因组计划要求新材料的研究方式从“试错式”走向“预测式”。综合上述数据科学范式下的材料基因组学数据挖掘结果, 于剑课题组选定了 BF-BZT-PT 和 BF-BZT-BT 两个三元固溶体作为铁电电压电陶瓷新材料研究的候选体系: 它们具备在 500~700°C 范围内裁剪居里温度; 它们具备构建固溶体结构相界、调控介电常数和压电响应的充要条件; 三元固溶体有利于提高铁酸铋钙钛矿结构相的热力学稳定性, 获得高阻低介电损耗陶瓷制品; 三元固溶体有利于调控热膨胀系数, 获得机械性能良好的陶瓷制品。2010 年以来, 于剑课题组率先在 BF-PT 固溶体中添加 BZT, 在三元固溶体结构相界附近较大组分范围内获得了具有良好机械性能、高电阻、低介电损耗的陶瓷制品, 实现了在 500°C~700°C 范围内裁剪铁电相变居里温度  $T_c$ ; 在结构相界附近, 通过对组分选择, 通过对陶瓷晶粒尺寸、冷却速度等工艺参数进行调控, 如表 1 所示, 获得了与目前商用的类钙钛矿偏铋酸铅/钛酸铋陶瓷材料具有相等的居里温度、但更高压电响应性能的 BF-BZT-BT/BF-BZT-PT 铁电电压电陶瓷新材料体系; 与 PZT 类似, 它们具有广阔的性能调控组分相空间<sup>[25-27,37-39]</sup>。

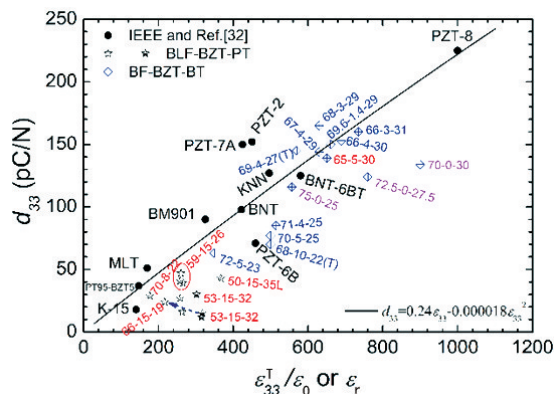
表 1 于剑课题组获得的钙钛矿型高性能高温 BF-BZT-PT 和 BF-BZT-BT 压电陶瓷材料性能总结<sup>[25-27,37-39]</sup>

Table 1 summary of piezoelectric properties of perovskite-type high temperature BF-BZT-PT and BF-BZT-BT ceramics<sup>[25-27,37-39]</sup>

	$\epsilon_{33}^T/\epsilon_0(\epsilon_r)$	$\tan\delta$	$d_{33}(\text{pC/N})$	$T_c/\text{°C}$	来源
0.05wt%MnO <sub>2</sub> -doped 0.70BF-0.04BZT-0.26PT	183	0.015	28	640	本工作
0.70BF-0.08BZT-0.22PT	177	0.030	29	~670	本工作
0.66BF-0.15BZT-0.19PT	(217)	0.020	24	630	本工作
0.60BF-0.14BZT-0.26PT	264	0.020	16	590	本工作
0.59BF-0.15BZT-0.26PT	258	0.023	41	582	本工作
0.53BF-0.15BZT-0.32PT	302	0.021	30	560	本工作
0.07wt%MnO <sub>2</sub> :0.68BF-0.10BZT-0.22BT	(504)	0.055	70	630	本工作
0.17wt%MnO <sub>2</sub> :0.69BF-0.04BZT-0.27BT	578	0.034	145	510	本工作
0.22wt%MnO <sub>2</sub> :0.696BF-0.014BZT-0.29BT	660	0.033	150	513	本工作
钛酸铅 (MLT)	170	0.008	51	495	现商用
偏铋酸铅 (BM901)	325	0.010	90	490	现商用
钛酸铋 (K-15)	140	0.030	18	~620	现商用

注: 现阶段, MLT、BM901 和 K-15 等商用高温压电陶瓷的性能也列于此以作对比。

数据挖掘结果不仅可以预测材料设计的方向,还可用作实验结果水平的判据。图6给出了一些典型压电陶瓷材料的压电常数 $d_{33}$ 与介电常数 $\epsilon_{33}$ ,给出了数据挖掘获得的压电陶瓷材料 $d_{33}$ 与 $\epsilon_{33}$ 统计量化关系的计算结果。包括表1结果在内于剑课题组在BF-BZT-PT和BF-BZT-BT高温压电陶瓷材料研究过程中获得的实验结果也一并在图中给出。从图6可以看到,实验得到的BF-BZT-BT陶瓷材料的压电常数分布在实线两侧,这说明BF-BZT-BT铁电陶瓷材料的压电性能与数据挖掘量化关系预测的一致;而实验得到的BF-BZT-PT陶瓷材料的压电常数分布在实线下侧,低于数据挖掘预测的结果。对BF-BZT-PT等多种铁酸铋基三元固溶体进行的结构相变、残余应力、铁电极化反转等综合实验测量发现,BF-BZT-PT陶瓷材料的低压电性能是源于“热缩冷胀”中间相导致的残余张应力对铁电极化的钉扎作用,导致极化处理过程中铁电极化反转不充分的结果<sup>[25,38,40]</sup>。这为下一步提升BF-BZT-PT陶瓷材料的压电性能指明了方向。



注:图中实线为 $d_{33}=0.24\epsilon_{33}-0.000018\epsilon_{33}^2$ 的计算结果。xx-xx-xx表示三元固溶体的组分

图6 压电陶瓷材料压电常数 $d_{33}$ 与介电常数 $\epsilon_{33}$ 关系

Fig. 6 Correlation between piezoelectric constant  $d_{33}$  and dielectric constant  $\epsilon_{33}$  for various kinds of piezoceramics

对BF-BZT-BT铁电陶瓷材料,实验没有观测到 $T_c$ 以下存在铁电-铁电结构相变,因此,它们具有优异的时间和温度老化稳定性。例如,极化处理饱和的质量分数为0.17% $\text{MnO}_2$ 掺杂0.69BF-0.04BZT-0.27BT陶瓷样品,经3年室温老化后, $d_{33}=140$  pC/N,  $\tan\delta\sim 0.033$ ,在-40~100°C温度范围内厚度谐振频率和径向谐振频率的温度系数为-0.09%,厚度机电耦合系数 $k_t$ 的温度系数为2.3%。至此,可以看到,环境友好BF-BZT-BT压电陶

瓷新材料业已具备替代PZT-7A, PZT-2, BM901等含铅压电陶瓷材料应用的技术基础。同时,与PZT、偏铋酸铅等陶瓷相比,BF-BZT-BT陶瓷一样可以采用固相反应电子陶瓷工艺低成本地大规模生产,没有任何生产设备和技术改造负担。

## 5 结论

材料基因组计划的推进毫无疑问将产生大量的数据,大数据的管理和利用需要数据科学的范式。材料基因组计划倡导的理论预测、实验验证研究理念以及关注材料全生命周期价值链必将带来材料工作者思维方式与工作模式的转换,需要基于材料科学系统工程来构建数据库平台,综合利用数据挖掘、数学计算、材料原理等方法来预测某种需求材料的组成,然后通过实验合成和检测,验证其是否符合要求。本文以钙钛矿结构氧化物铁电材料为例,开展了数据科学范式下预测式进行新材料设计和发现的研究活动,期望促进对数据科学范式下材料科学系统工程的认知深化和实践发展。未来,随着钙钛矿结构氧化物计算模型的成熟,人们不仅将利用计算机的强大运算能力,还将利用计算机的数据自动化处理能力,由此赋予研究人员强大的预测能力。

## 参考文献 (References)

- [1] Hey T. The fourth paradigm: Data-intensive scientific discovery [C]. At International Symposium on Information Management in a Changing World (IMCW). Ankara, 2012.
- [2] 邓仲华, 李志芳. 科学研究范式的演化——大数据时代的科学研究第四范式[J]. 情报资料工作, 2013, 4: 19-23.  
Deng Zhonghua, Li Zhifang. The evolution of scientific research paradigm—The fourth paradigm of scientific research in the era of big data[J]. Intelligence & Materials Work, 2013, 4: 19-23.
- [3] 赵斌. 第四范式: 基于大数据的科学研究[EB/OL]. (2015-10-26) [2018-10-20]. <http://blog.sciencenet.cn/blog-502444-931155.html>.
- [4] Zhao Bin. Fourth paradigm: Scientific research based on big data[EB/OL]. (2015-10-26) [2018-10-20]. <http://blog.sciencenet.cn/blog-502444-931155.html>.
- [4] Agrawal A, Choudhary A. Perspective: Materials informatics and big data: Realization of the "fourth paradigm" of science

- in materials science[J]. *APL Materials*, 2016, 4: 053208.
- [5] Holdren J P. Materials genome initiative for global competitiveness[R]. Washington, DC: NSTC, 2011.
- [6] 汪洪, 向勇, 项晓东, 等. 材料基因组——材料研发新模式[J]. *科技导报*, 2015, 33(10): 13–19.  
Wang Hong, Xiang Yong, Xiang Xiaodong, et al. Materials genome enables research and development revolution[J]. *Science & Technology Review*, 2015, 33: 13–19.
- [7] “材料基因工程关键技术与支撑平台”重点专项 2018 年度项目申报指南[Z]. 北京: 科学技术部, 2017.  
2018 Key project application guideline for "Key technology and support platform for material genome engineering"[Z]. Beijing: Ministry of science and technology, 2017.
- [8] 顾秉林. 材料科学系统工程: 建立我国新材料产业体系的关键[J]. *科技导报*, 2015, 33(10): 1.  
Gu Binglin. System engineering of materials science: the key to establish China's new material industry system[J]. *Science & Technology Review*, 2015, 33(10): 1.
- [9] 陈立泉. 师昌绪先生与中国版“材料基因计划”[J]. *科技导报*, 2015, 33(10): 126.  
Chen Liqun. Mr. Shi Changxu and Chinese version of Material Genome Initiative[J]. *Science & Technology Review*, 2015, 33(10): 126.
- [10] 刘伟. 关于人工智能若干重要问题的思考[J]. *学术前沿*, 2016, 4(上): 6–11.  
Liu Wei. Some important questions on artificial intelligence [J]. *The Academic Frontier*, 2016, 4: 6–11.
- [11] 刘伟. 人机智能融合: 人工智能发展的未来方向[J]. *学术前沿*, 2017, 10(下): 26–31.  
Liu Wei. Human-computer intelligent integration: the future of artificial intelligence[J]. *The Academic Frontier*, 2017, 10: 26–31.
- [12] Lookman T, Alexander F J, Bishop A R. Perspective: Code-sign for materials science: An optimal learning approach[J]. *APL Mater*, 2016, 4: 053501.
- [13] Resta R. Macroscopic polarization in crystalline dielectrics: the geometric phase approach[J]. *Review Modern Physics*, 1994, 66: 899–916.
- [14] Armiento R, Kozinsky B, Fornari M, Ceder G. Screening for high-performance piezoelectrics using high-throughput density functional theory[J]. *Physics Review B*, 2011, 84: 014103.
- [15] Butler K T, Frost J M, Skelton J M, et al. Computational materials design of crystalline solids[J]. *Chemical Society Reviews*, 2016, 45: 6138–6146.
- [16] Lines M E, Glass A M. Principles and applications of ferroelectrics and related materials[M]. Oxford: Clarendon Press, 2001.
- [17] Stringer C J, Shrout T R, Randall C A, et al. Classification of transition temperature behavior in ferroelectric  $\text{PbTiO}_3$ -Bi ( $\text{Me}^{\text{Me}''})\text{O}_3$  solid solutions[J]. *Journal of Applied Physics*, 2006, 99: 024106.
- [18] Zhang L L, Yu J, Itoh M. Structural phase transitions of robust insulating  $\text{Bi}_{1-x}\text{La}_x\text{Fe}_{1-y}\text{Ti}_y\text{O}_3$  multiferroics[J]. *Journal of Applied Physics*, 2014, 115: 123523.
- [19] Yu J, An F F, Cao F. Ferroic phase transition of tetragonal  $\text{Pb}_{0.6-x}\text{Ca}_x\text{Bi}_{0.4}(\text{Ti}_{0.75}\text{Zn}_{0.15}\text{Fe}_{0.1})\text{O}_3$  ceramics: Factors determining Curie temperature[J]. *Japanese Journal of Applied Physics*, 2014, 53: 051501.
- [20] Abrahams S C. Systematic prediction of new ferroelectrics in space groups P31 and P32[J]. *Acta Crystallographica Section B*, 2003, 59: 541–556.
- [21] Abrahams S C, Kurtz S K, Jamieson P B. Atomic displacement relationship to Curie temperature and spontaneous polarization in displacive ferroelectrics[J]. *Physics Review*, 1968, 172: 551–553.
- [22] Sai Sunder V V S S, Halliyal A, Umarji A M. Investigation of tetragonal distortion in the  $\text{PbTiO}_3$ - $\text{BiFeO}_3$  system by high-temperature X-ray diffraction[J]. *Journal of Materials Research*, 1995, 10: 1301–1306.
- [23] Suchomel M R, Davies P K. Enhanced Tetragonality in  $x\text{PbTiO}_3$ - $(1-x)\text{Bi}(\text{Zn}_{1/2}\text{Ti}_{1/2})\text{O}_3$  and Related Solid Solution Systems [J]. *Applied Physics Letters*, 2005, 86: 262905.
- [24] 陆文聪, 李国正, 刘亮, 等. 化学数据挖掘方法与应用[M]. 北京: 化学工业出版社, 2011.  
Lu Wencong, Li Guozheng, Liu Liang, et al. Chemical data mining and applications[M]. Beijing: Chemical Industry Press, 2011.
- [25] Zhang L L, Hou X B, Yu J. Ferroelectric and piezoelectric properties of high temperature (Bi, La) $\text{FeO}_3$ - $\text{Bi}(\text{Zn}_{1/2}\text{Ti}_{1/2})\text{O}_3$ - $\text{PbTiO}_3$  ceramics at rhombohedral/tetragonal coexistent phase [J]. *Japanese Journal of Applied Physics*, 2015, 54: 081501.
- [26] Lin Y, Zhang L L, Zheng W L, et al. Structural phase boundary of  $\text{BiFeO}_3$ - $\text{Bi}(\text{Zn}_{1/2}\text{Ti}_{1/2})\text{O}_3$ - $\text{BaTiO}_3$  lead-free ceramics and their piezoelectric properties[J]. *Journal of Materials Science Materials in Electronics*, 2015, 26: 7351–7360.
- [27] Hou X B, Yu J. Perovskite-structured  $\text{BiFeO}_3$ - $\text{Bi}(\text{Zn}_{1/2}\text{Ti}_{1/2})\text{O}_3$ - $\text{PbTiO}_3$  solid solution piezoelectric ceramics with Curie temperature about 700°C[J]. *Journal of the American Ceramic Society*, 2013, 96: 2218–2224.
- [28] 传感器: “感知中国”的瓶颈[EB/OL]. (2016–12–05) [2018–10–20]. <http://news.sciencenet.cn/htmlnews/2016/12/362734.shtm>.  
Sensors: The bottleneck of Sensing China[EB/OL]. (2016–12–05) [2018–10–20]. <http://news.sciencenet.cn/htmlnews/2016/12/362734.shtm>.
- [29] Stevenson T, Martin D G, Cowin P I. Piezoelectric materials

- for high temperature transducers and actuators[J]. *Journal of Materials Science: Mater. Electron*, 2015, 26: 9256–9267.
- [30] 国务院“十三五”国家科技创新规划[R/OL]. (2016–08–08) [2018–11–20]. [http://www.gov.cn/zhengce/content/2016–08/08/content\\_5098072.htm](http://www.gov.cn/zhengce/content/2016–08/08/content_5098072.htm).
- The State Council's 13th five-year program for national science and technology innovation[R/OL]. (2016–08–08) [2018–11–20]. [http://www.gov.cn/zhengce/content/2016–08/08/content\\_5098072.htm](http://www.gov.cn/zhengce/content/2016–08/08/content_5098072.htm).
- [31] Oeko-Institut E V, Fraunhofer-Institut I Z M. Report for the European Commission[R]. 2016.
- [32] Rodel J, Jo W, Seifert K T P, et al. Perspective on the Development of Lead-free Piezoceramics[J]. *Journal of the American Ceramic Society*, 2009, 92: 1153–1177.
- [33] Adachi M, Akishige Y, Deguchi K, et al. Perovskite-type oxides, in Landolt-Börnstein numerical data and functional relationships in science and technology: Ferroelectrics and related substances[B]. Group 3 Volume 36, Subvolume A1, 2001, 67–505.
- [34] Zhang L L, Yu J. Robust insulating La and Ti co-doped Bi-FeO<sub>3</sub> multiferroic ceramics[J]. *Journal of Materials Science: Mater. Electron*, 2016, 27: 8725–8733.
- [35] Chen J, Xing X R, Sun C, et al. Zero thermal expansion in Pb-TiO<sub>3</sub>-based perovskites[J]. *Journal of the American Chemical Society*, 2008, 130: 1144–1145.
- [36] An F F, He W Z, Wang T T, et al. Preparation and electrical properties of modified lead titanate ceramics[J]. *Ferroelectrics*, 2010, 409: 62–65.
- [37] Lin Y, Zhang L L, Yu J. Piezoelectric and ferroelectric property in Mn-doped 0.69BiFeO<sub>3</sub>–0.04Bi(Zn<sub>1/2</sub>Ti<sub>1/2</sub>)O<sub>3</sub>–0.27BaTiO<sub>3</sub> lead-free piezoceramics[J]. *Journal of Materials Science: Mater. Electron*, 2016, 27: 1955–1965.
- [38] Zheng W L, Yu J. Residual tensile stresses and piezoelectric properties in BiFeO<sub>3</sub>–Bi(Zn<sub>1/2</sub>Ti<sub>1/2</sub>)O<sub>3</sub>–PbTiO<sub>3</sub> ternary solid solution perovskite ceramics[J]. *AIP Advances*, 2016, 6: 085314.
- [39] Yu J, Zhang L L, Hou X B, et al. Novel perovskite-type ferroelectrics with high curie temperature and piezoresponse[A]. *IEEE Xplore*, doi: 10.1109/ISAF.2016.7578087.
- [40] Zhang L L, Yu J. Residual tensile stress in robust insulating rhombohedral Bi<sub>1-x</sub>La<sub>x</sub>Fe<sub>1-y</sub>Ti<sub>y</sub>O<sub>3</sub> multiferroic ceramics and its ability to pin ferroelectric polarization switching[J]. *Applied Physics Letters*, 2015, 106: 112907.

## Design of new perovskite-type oxide ferroelectric materials within data science paradigm

YU Jian<sup>1</sup>, CHU Junhao<sup>1,2\*</sup>

1. Institute of Functional Materials, Donghua University, Shanghai 201620, China

2. National Laboratory for Infrared Physics, Shanghai Institute of Technical Physics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200092, China

**Abstract** The materials genome initiative (MGI) issued in 2011 convokes a new paradigm of data science complementing with empirical observation, theoretical model and computation simulation, and comprehensively integrates computing, experimental and theoretical methods to produce and deal with big-data under the framework of system engineering of material science. Thereafter, the relationships between properties and material genome (composition and structure of atom systems), processing parameters and service conditions are mined out of data for designing and deployment of new material in accordance with the desired goal. In this article, research paradigms, MGI and system engineering of material science are briefly introduced. Then how to design new materials within data science paradigm is presented in detail through an example in the field of perovskite-type oxide ferroelectric piezoceramics. Finally the result demonstrates that the method of data-mining driven designing within data science paradigm is able to reduce time-to-insight and human effort on synthesis, thus accelerating new materials discovery and deployment.

**Keywords** data science paradigm; material genome approach; data-mining; perovskite-type oxides; ferroelectric piezoceramics ●



(责任编辑 祝叶华)