

06,07

# Влияние концентрации $\text{PbZr}_{0.53}\text{Ti}_{0.47}\text{O}_3$ на степень размытия фазового перехода и температуру деполяризации в прозрачной керамике $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3 - x\text{PbZr}_{0.53}\text{Ti}_{0.47}\text{O}_3$

© Л.С. Камзина, В.Г. Залесский, К.В. Дьяконов

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН,  
Санкт-Петербург, Россия

E-mail: ASKam@mail.ioffe.ru

Поступила в Редакцию 12 мая 2025 г.

В окончательной редакции 27 мая 2025 г.

Принята к публикации 27 мая 2025 г.

В прозрачной керамике  $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3 - x\text{PbZr}_{0.53}\text{Ti}_{0.47}\text{O}_3$  (PMN- $x$ PZT) ( $x = 10, 16, 23, 33\%$ ) исследовано влияние содержания компоненты PZT( $x$ ) на степень размытия фазового перехода, а также на взаиморасположение температуры деполяризации ( $T_d$ ) и морфотропного фазового перехода ( $T_{F-R}$ ). С этой целью проводились диэлектрические, оптические и пьезоэлектрические измерения. Показано, что все изучаемые керамики являются релаксорами, причем в составах  $x = 23, 33\%$  наблюдается спонтанный сегнетоэлектрический фазовый переход первого рода в отсутствие электрического поля. Обнаружено, что во всех составах происходит одноэтапный переход поляризованного образца в релаксорную фазу, т.е. температуры  $T_d$  и  $T_{F-R}$  совпадают. Полученные результаты обсуждаются с точки зрения степени размытия фазового перехода и размеров полярных областей.

**Ключевые слова:** прозрачная керамика, релаксоры, сегнетоэлектричество, индуцированный фазовый переход.

DOI: 10.61011/FTT.2025.05.60752.127-25

## 1. Введение

Среди всех свинцово-содержащих сложных перовскитов керамика цирконата-титаната свинца  $\text{Pb}(\text{Zr,Ti})\text{O}_3$  или PZT исследовалась наиболее широко как с научной, так и с практической точки зрения [1–4]. Особое внимание было уделено составам на морфотропной фазовой границе (МРВ) с соотношением  $\text{Zr/Ti } 52/48$  и  $53/47$  из-за лучших электрических свойств в широкой области применений. Кроме того, разные модификации PZT с замещениями элементов донорными или акцепторными примесями также широко освещались в литературе [5–7]. Было проведено много исследований по модификации PZT релаксорным сегнетоэлектриком магно-ниобатом свинца ( $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$  или PMN), т.к. хорошо известно, что керамика твердого раствора релаксорных и нормальных сегнетоэлектриков является весьма перспективным материалом для электронных устройств, таких как конденсаторы, актюаторы, датчики, преобразователи и приборы для ультразвуковой медицинской диагностики [8–17].

Действительно, модификация PZT с PMN интересна, поскольку она представляет собой комбинацию желаемых свойств с высокой диэлектрической проницаемостью и большим коэффициентом электромеханической связи, а также имеет низкие потери, что особенно важно для использования в различных устройствах [11,12].

В последнее время прозрачная сегнетоэлектрическая керамика привлекает все большее внимание исследова-

телей из-за ряда преимуществ по сравнению с прозрачными монокристаллами, такими как низкая стоимость, простота изготовления, хороший контроль состава и т.д. [18]. Она обладает большими перспективами применения в областях электрооптических переключателей и электрооптических модуляторов, благодаря заметному электрооптическому (ЭО) эффекту. Прозрачная сегнетоэлектрическая керамика  $\text{PbZrTiO}_3$ , легированная La (PLZT), систематически исследовалась в течение многих лет из-за высокого ЭО эффекта по сравнению с прозрачными монокристаллами  $\text{LiNO}_3$  [19–22]. Однако керамика PLZT имеет большие потери на рассеяние, зависящие от поляризации, а также значительную задержку сигнала, вызванную полем, что ограничивает ее применение в высокочастотных динамических устройствах.

Недавно разработанная прозрачная керамика PMN- $x$ PZT лишена этих недостатков. В наших работах [23–26] мы впервые приготовили прозрачную керамику PMN- $x$ PZT с  $x = 10, 16, 23$  с высокой прозрачностью ( $\sim 65\%$ ) и большой величиной электрооптического эффекта. Наименьшая прозрачность наблюдалась в составах с  $x = 33\%$  ( $\sim 40\%$ ), что связано с более крупными сегнетоэлектрическими макродоменами, в то время как составы PMN- $x$ PZT ( $x = 10, 16, 23$ ) имели мелкие сегнетоэлектрические домены.

Было обнаружено, что все исследованные в работе образцы керамики имеют релаксороподобное поведение, причем чем больше содержание PZT, тем менее размыт

фазовый переход. Обнаружено, что в составах, лежащих ближе к МФГ ( $x = 23$  и  $33\%$ ), в отсутствие электрического поля наблюдается сегнетоэлектрический фазовый переход первого рода, в то время как составы, лежащие вдали от границы ( $x = 10$ ,  $16\%$ ), остаются в релаксорной кубической фазе вплоть до низких температур. Было найдено, что в составах с  $x = 33\%$  при высоких температурах в параэлектрической фазе величина квадратичного ЭО-коэффициента является наивысшим значением для сегнетоэлектриков при таких высоких температурах.

В работах, посвященных этим системам, совсем нет сведений о взаимосвязи между температурой деполяризации предварительно поляризованных образцов  $T_d$  и температурой перехода из сегнетоэлектрической в релаксорную фазу  $T_{F-R}$ . Температура  $T_{F-R}$  очень важна для пьезоэлектрических применений, так как она ограничивает верхний температурный предел, выше которого материалы теряют свои макроскопические свойства. В отношении большинства приложений температура деполяризации  $T_d$  также является важным параметром, поскольку пьезо- и пирозэлектрический эффекты в меньшей степени зависят от дальнего порядка между локальными диполями и в большей степени от возможности сохранения макроскопической остаточной поляризации.

Как известно из литературы и наших работ [27–32], эти температуры могут совпадать друг с другом в ряде релаксоров, таких, как например, PLZT, PMN, PST, PSN, а могут различаться, например, в таких релаксорах, как PZN, твердые растворы PZN-PT,  $Na_{1/2}Bi_{1/2}TiO_3$  (NBT), твердые растворы NBT с  $BaTiO_3$  (NBT-BT) и  $(K_{0.5}Na_{0.5})NbO_3 - 0.02Ba_2NaNb_5O_{15}$  (KNN-BNN).

Совпадение температур  $T_d$  и  $T_{F-R}$  может иметь место в сегнетоэлектриках как с большой, так и с малой степенью размытия фазового перехода. В случае большого размытия количество полярных областей велико, и они имеют малые размеры. С понижением температуры размеры PNR увеличиваются, расстояние между ними уменьшается вплоть до температуры Фогеля-Фулчера  $T_f$ , ниже которой размеры PNR остаются практически неизменными, но достаточно малыми ( $\sim 10 - 30$  nm), возникает неэргодическая стекольная фаза. В электрическом поле с течением времени происходит индуцирование сегнетоэлектрической фазы. При нагревании поляризованного образца при температуре  $T_d$  разрушается не только макроскопическая поляризация, но и, вследствие образующихся PNR маленького размера, теряется взаимосвязь локальных диполей внутри доменов, т.е. процесс деполяризации и перехода образца в релаксорную фазу происходит практически при одной и той же температуре, т.е. температуры  $T_d$  и  $T_f$  совпадают.

В релаксорах с минимальной степенью размытия фазового перехода PNR в высокотемпературной эргодической фазе являются упорядоченными единицами достаточно больших размеров и взаимодействия между PNR приводят к спонтанному фазовому переходу

порядок-беспорядок в сегнетоэлектрическое состояние в отсутствие электрического поля. Число и концентрация полярных областей незначительная при температуре Кюри и при понижении температуры PNR могут значительно увеличиваться в размерах вплоть до макроскопических сегнетоэлектрических доменов. Температура спонтанного фазового перехода, при которой устанавливается сегнетоэлектрический дальний порядок, близка к температуре максимума диэлектрической проницаемости. Температура  $T_f$  практически совпадает в них с температурой четкого фазового перехода и, следовательно, и с температурой деполяризации. Так как обычно температура  $T_f$  описывается как температура замерзания системы в фрустрированное стекольное состояние, то использование ее в этом случае не является необходимым.

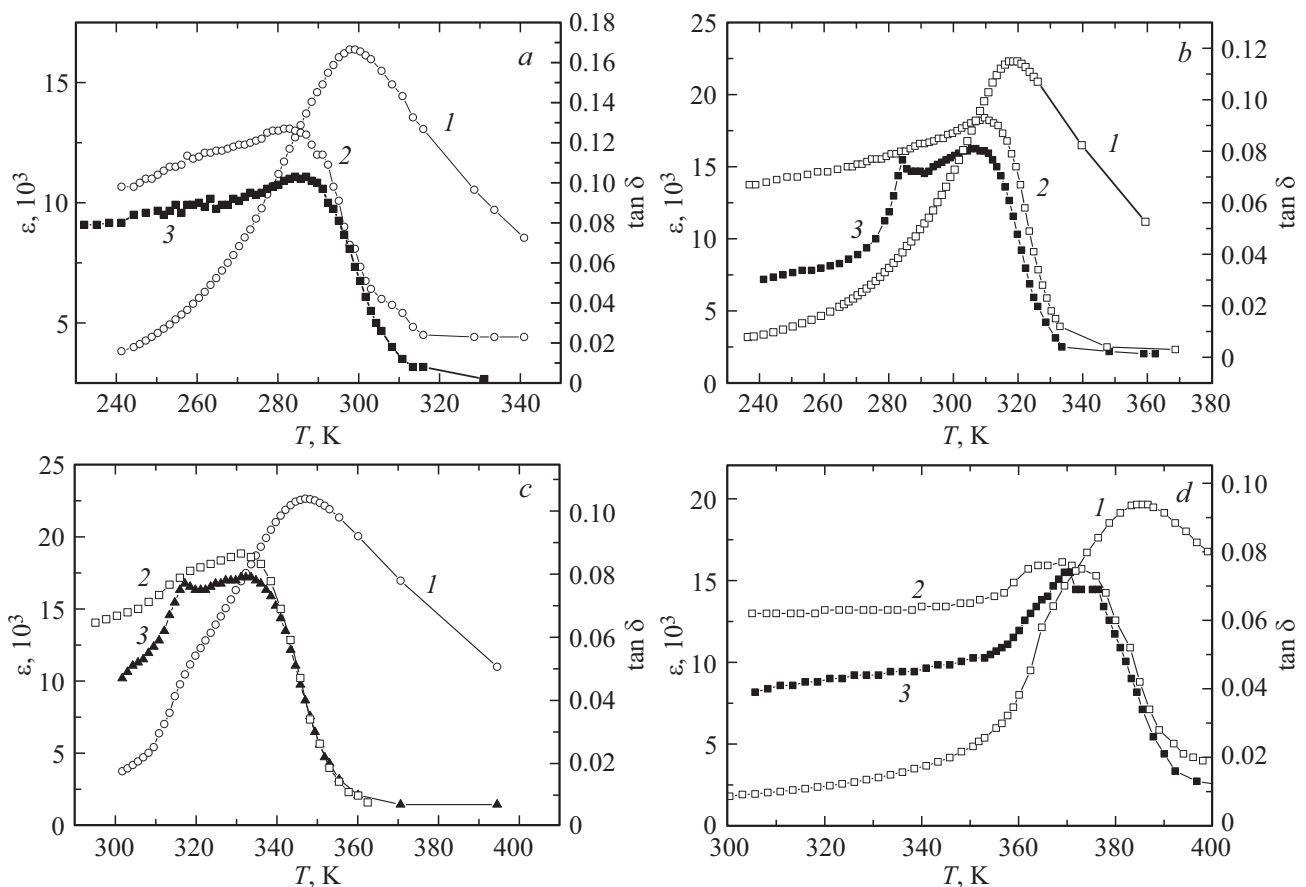
Несовпадение температур  $T_d$  и  $T_f$  обнаружено только в тех релаксорах, в которых в отсутствие электрического поля наблюдается размытый фазовый переход в сегнетоэлектрическое состояние. Процесс деполяризации в них проходит в два этапа.

На первом этапе нагрев поляризованного образца выше  $T_d$  разрушает только макроскопическую поляризацию. Домены начинают колебаться за счет термической активации, но взаимосвязь локальных диполей внутри доменов не теряется. На втором этапе, когда материал нагревается до температуры  $T_{F-R}$  и выше, домены распадаются на PNR.

В исследуемой в данной работе керамике PMN- $x$ PZT доминирующей компонентой является PMN, в котором сегнетоэлектрический фазовый переход происходит только в присутствии электрического поля и температуры  $T_d$  и  $T_{F-R}$  совпадают [33]. PZT не является релаксором. В процессе работы предполагается выяснить, как изменение содержания компоненты PZT( $x$ ) влияет на взаиморасположение температур  $T_d$  и  $T_{F-R}$ . С этой целью будут измерены диэлектрические, оптические и пирозэлектрические свойства.

## 2. Исследуемые образцы и методика эксперимента

Высоко-прозрачная керамика PMN- $x$ PZT ( $x = 10, 16, 23, 33$ ) с соотношением Ti:Zr равным 53:47, изготавливалась с использованием необычного двухступенчатого метода спекания, описанного в нашей работе [24]. Для того чтобы увеличить вероятность образования перовскитовой фазы и уменьшить присутствие пироклорной фазы при приготовлении керамики, вместо цирконата свинца использовался цирконат-титанат свинца. Полученные образцы были высокого оптического качества. Диэлектрические и оптические свойства этих прозрачных керамик подробно исследовались в наших работах [23–26] и в работе [34]. Универсальный измеритель E7-11 использовался для диэлектрических измерений. Измерения диэлектрической проницаемости ( $\epsilon$ ) и  $\tan\delta$



**Рис. 1.** Температурные зависимости диэлектрической проницаемости  $\varepsilon$  (1) и тангенса угла диэлектрических потерь  $\tan \delta$  (2), полученные при нагревании в отсутствие электрического поля (ZFН режим) (кривые 1, 2) и  $\tan \delta$  (3), полученные в режиме (ZFNaFC) после охлаждения в поле 3 kV/cm для образцов PMN- $x$ PZT: *a* —  $x = 10\%$ , *b* —  $x = 16\%$ , *c* —  $x = 23\%$ , *d* —  $x = 33\%$

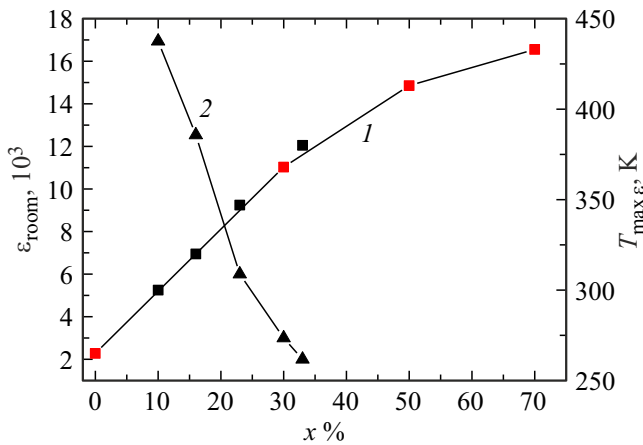
проводились на частоте 1 kHz в температурном интервале 290–400 K в двух режимах приложения электрического поля: при нагревании в отсутствие электрического поля (ZFН) и при нагревании после охлаждения образца в электрическом поле (ZFNaFC). Для исследования температурных зависимостей двупреломления  $\Delta n$  применялся He-Ne-лазер. Измерение термостимулированной деполяризации (ТСД) или пиротока подробно описано в нашей работе [35]. Охлаждение образцов проводилось во внешнем поле 3 kV/cm. Величина поляризации вычислялась интегрированием плотности тока ТСД по времени.

### 3. Экспериментальные результаты и их обсуждение

На рисунке 1 (*a–d*) представлены температурные зависимости диэлектрической проницаемости  $\varepsilon$  (кривые 1) и тангенса угла диэлектрических потерь  $\tan \delta$  (кривые 2), полученные при нагревании в отсутствие электрического поля (ZFН режим), а также  $\tan \delta$  (кривые 3), полученные в режиме (ZFNaFC) после охлаждения в поле 3 kV/cm для всех исследованных образцов.

Из рисунка видно, что с увеличением содержания PZT температуры максимумов  $\varepsilon$  и  $\tan \delta$  сдвигаются в сторону высоких температур. Для всех образцов в отсутствие электрического поля наблюдается только один максимум  $\varepsilon$  и  $\tan \delta$ , причем для одного и того же образца температуры максимумов  $\varepsilon$  и  $\tan \delta$  не совпадают (кривые 1, 2), что свидетельствует о размытом характере перехода из релаксорной в параэлектрическую фазу. Никаких других резких аномалий, например, соответствующих МФП переходу, не наблюдается. Небольшой перегиб можно наблюдать на температурной зависимости  $\varepsilon$  в районе 360 K для  $x = 33\%$  (рис. 1, *d* — кривая 1) и 320 K для  $x = 23\%$  (рис. 1, *c* — кривая 1). Этот перегиб на кривой  $\varepsilon$  при нагреве образца может быть связан с МФП из сегнетоэлектрической ромбоэдрической (моноклинной) фазы в релаксорную тетрагональную фазу, которая разрушается вблизи температуры максимума  $\varepsilon$ . Эти составы близки к нормальному сегнетоэлектрику, так как расположены недалеко от морфотропной области.

Более четко аномалии проявляются в образцах, поляризованных в электрическом поле. Действительно,



**Рис. 2.** Зависимости температуры максимума  $\epsilon$  (кривая 1) и диэлектрической проницаемости, измеренной при комнатной температуре (кривая 2), от содержания PZT ( $x$ ). Данные, обозначенные красными точками, взяты из работы [16].

на кривых  $\tan\delta$  (кривые 3) в образцах с  $x = 16, 23, 33\%$  появился четкий максимум при температуре МФП. В образце с  $x = 10\%$ , расположенном вдали от МФП, при температуре МФП  $T_{F-R} \sim 250 - 260$  К (рис. 1, а — кривая 3) наблюдается только небольшая размытая аномалия.

На рис. 2 представлены зависимости диэлектрической проницаемости, измеренной при комнатной температуре, и температуры максимума  $\epsilon$  от содержания PZT ( $x$ ). Видно, что с увеличением содержания  $x$  температура  $T_{\max \epsilon}$  сдвигается монотонно в сторону высоких температур со средней скоростью  $\sim 4$  К/mol%. Эти данные хорошо согласуются с результатами работ [11,16]. Величина  $\epsilon$  при комнатной температуре уменьшается с ростом  $x$ .

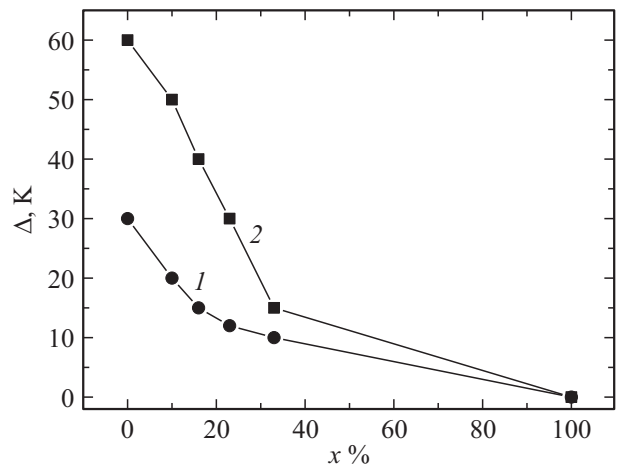
Более наглядно влияние содержания PZT( $x$ ) на степень размытия фазового перехода видно из рис. 3. На рис. 3 представлены концентрационные зависимости разницы между температурами максимумов  $\epsilon$  и  $\tan\delta$  ( $T_{\max \epsilon} - T_{\max \tan \delta}$ ) (кривая 1), а также разницы между температурами максимумов ( $T_{\max \epsilon}$ ) и морфотропного фазового перехода  $T_{F-R}$  ( $T_{\max \epsilon} - T_{F-R}$ ) (кривая 2) от содержания PZT( $x$ ).

Из рис. видно (кривая 1), что с увеличением содержания  $x$  температуры максимумов  $\tan\delta$  и  $\epsilon$  приближаются друг к другу, т.е. область существования релаксорной фазы сужается. Расстояние между температурами морфотропного фазового перехода  $T_{F-R}$  и  $T_{\max \epsilon}$  (кривая 2) также уменьшается с увеличением  $x$ , и составы с  $x > 33\%$  практически ведут себя как нормальные сегнетоэлектрики с очень малой долей релаксорной фазы. Симметрия соединений с содержанием  $x$  выше 33% чисто тетрагональная и при температуре  $T_{\max \epsilon}$  происходит переход из тетрагональной фазы в кубическую фазу, минуя релаксорную. В таких составах все характерные температуры, такие как  $T_{\max \epsilon}$  и  $T_{F-R}$ , согласно [36],

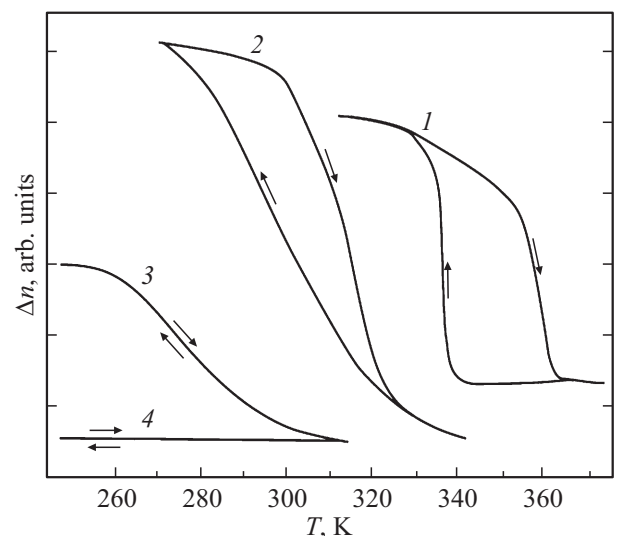
совпадают. С увеличением концентрации PZT( $x$ ) происходит постепенный переход из релаксорного в нормальное сегнетоэлектрическое состояние. В исследуемых в данной работе керамических образцах нормального сегнетоэлектрического состояния достичь не удалось

На рис. 4 представлены температурные зависимости дупреломления  $\Delta n$ , полученные в режиме охлаждения (ZFC) и нагрева (ZFH) в отсутствие электрического поля для всех исследованных в работе составов.

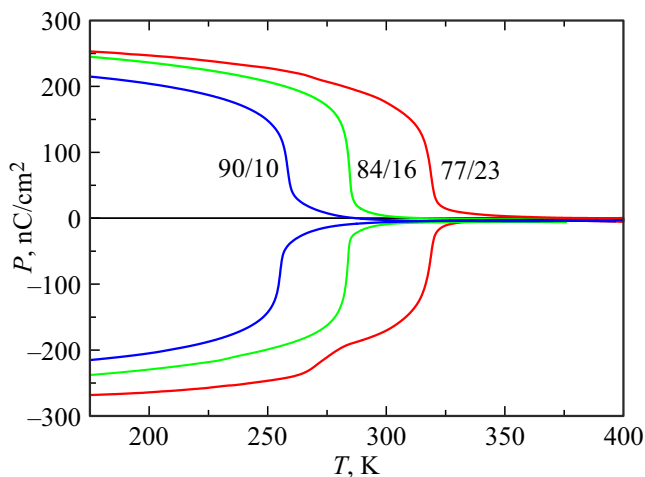
Оптические методы исследования являются более чувствительными по сравнению, например, с диэлектрическими методами, особенно для изучения изменения размеров неоднородностей при фазовых переходах. Это подтверждается данными рис. 4. Так, в составах с  $x = 23$



**Рис. 3.** Концентрационные зависимости разницы между температурами ( $T_{\max \epsilon} - T_{\max \tan \delta}$ ) (кривая 1) и ( $T_{\max \epsilon} - T_{F-R}$ ) (кривая 2) от содержания PZT( $x$ ).



**Рис. 4.** Зависимости  $\Delta n$  от температуры, полученные в режимах охлаждения (ZFC) и нагрева (ZFH) в отсутствие электрического поля для образцов PMN- $x$ PZT с  $x = 33$  (1), 23 (2), 16 (3), 10% (4).



**Рис. 5.** Температурные зависимости остаточной поляризации, полученные интегрированием тока термостимулированной деполяризации

и 33% в ходе охлаждения от высоких температур при температуре МФП появляется двупреломление (кривые 1, 2), в то время как на температурной зависимости  $\epsilon$  аномалия при МФП практически не заметна (рис. 1, c, d, кривая 1). Возникновение двупреломления связано с увеличением размеров неоднородностей, превышающих длину волны света. Наблюдаемый температурный гистерезис  $\sim 10$  К для состава  $x = 23\%$  и  $\sim 20$  К для состава  $x = 33\%$  свидетельствует о спонтанном фазовом переходе первого рода в этих составах.

Для состава с  $x = 16\%$  (рис. 4, кривая 3) при охлаждении наблюдается только возрастание  $\Delta n$ , связанное с постепенным увеличением числа и размеров сегнетоэлектрических областей, находящихся в кубической релаксорной матрице. Фазового перехода в макродоменное состояние в этом составе не происходит, так как отсутствует гистерезис при охлаждении и нагревании. В составе с  $x = 10\%$   $\Delta n$  не возникает вплоть до низких температур (рис. 3, кривая 4), т.е. размеры сегнетоэлектрических областей слишком малы, и образец остается в кубическом релаксорном состоянии.

Как видно из приведенных выше рисунков, никаких дополнительных аномалий, например, при температуре деполяризации  $T_d$ , при измерении диэлектрических и оптических свойств в исследованных керамиках не обнаружено. Из этого можно сделать вывод, что, по видимому, температуры  $T_d$  и  $T_{F-R}$  совпадают.

Для проверки этого предположения мы провели измерения пиротока и остаточной поляризации. Температура  $T_d$  — это температура деполяризации предварительно поляризованного образца.  $T_{F-R}$  является температурой перехода из сегнетоэлектрической в релаксорную фазу.  $T_d$  — это температура, при которой наблюдается максимум пирозлектрического тока, что соответствует точке перегиба на кривой остаточной поляризации.

На рис. 5 представлены температурные зависимости остаточной поляризации для керамики  $x = 23\%$ ,  $x = 16\%$  и  $x = 10\%$ . Из рисунка видно, что деполяризация всех трех образцов происходит резко, а величина поляризации увеличивается с увеличением  $x$ .

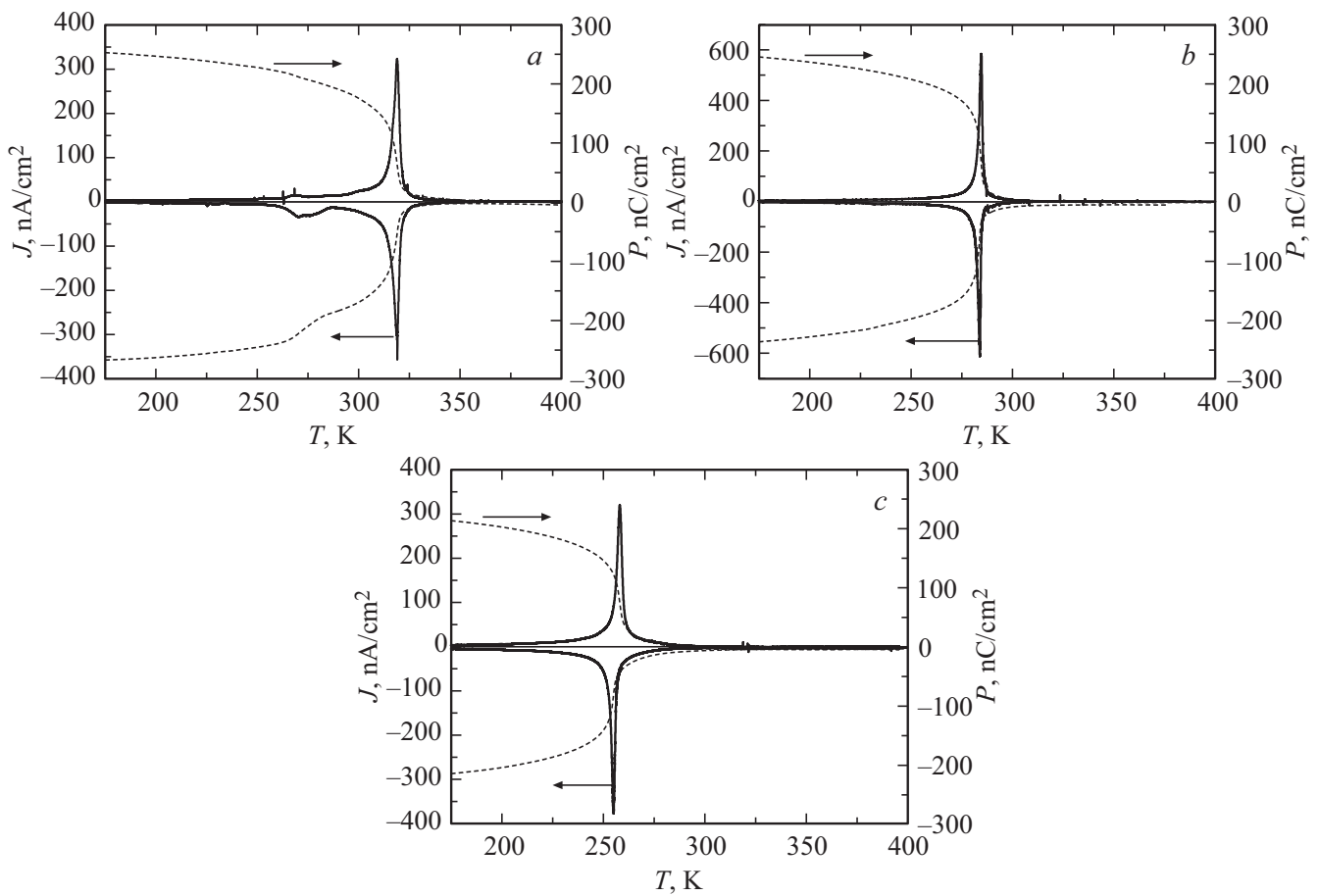
На рис. 6, a, b, c представлены температурные зависимости пирозлектрического тока (ток термостимулированной деполяризации) для керамики  $x = 23\%$  (a),  $x = 16\%$  (b) и  $x = 10\%$  (c). Пунктирной кривой показана температурная зависимость остаточной поляризации.

Из рис. видно, что при той же температуре, при которой происходит перегиб на кривой остаточной поляризации, наблюдается как максимум пиротока, так и максимум  $\tan\delta$  (рис. 1 кривые 3), соответствующий температуре  $T_{F-R}$ . Это температура перехода является температурой распада замороженной полярной конфигурации из макродоменного состояния в микродоменное.

Из рис. 6 видно, что во всех образцах, несмотря на разную структуру низкотемпературной фазы, температуры  $T_d$  и  $T_{F-R}$  совпадают. Релаксоры могут иметь два разных состояния при низких температурах: неэргодическое или эргодическое релаксорное состояние. В одних релаксорах при охлаждении от высоких температур ниже температуры  $T_f < T_{\max\epsilon}$  возникает неэргодическая релаксорная фаза, а в других — эргодическая релаксорная фаза [37]. При приложении электрического поля неэргодическое релаксорное состояние необратимо трансформируется в сегнетоэлектрическое состояние, которое при нагреве разрушается при температуре выше  $T_{F-R}$  ( $T_d$ ), которая очень близка к  $T_f$ , и возникает эргодическое релаксорное состояние. Эргодическое релаксорное состояние, наблюдаемое при низких температурах, обратимо переходит в сегнетоэлектрическую фазу в отсутствие поля, которое при нагреве разрушается при температуре спонтанного перехода, близкой к  $T_{F-R}$  ( $T_d$ ). Действительно, в керамиках с  $x = 10, 16\%$ , как следует из рис. 4, в отсутствие электрического поля не существует спонтанного фазового перехода, и низкотемпературная фаза является неэргодической релаксорной фазой. В этом случае при нагревании поляризованного образца, вследствие образующихся PNR маленького размера, при температуре  $T_d$  теряется не только макроскопическая поляризация, но и взаимосвязь локальных диполей внутри доменов, т.е. температуры  $T_d$  и  $T_{F-R}$  совпадают.

В релаксоре с  $x = 23\%$ , согласно оптическим измерениям (рис. 4), существует спонтанный фазовый переход в отсутствие электрического поля, и низкотемпературная фаза является эргодической сегнетоэлектрической фазой. Сегнетоэлектрические взаимодействия между PNR приводят к сегнетоэлектрическому макроскопическому порядку. Температура  $T_f$  практически совпадает в них с температурой четкого фазового перехода и, следовательно, и с температурой деполяризации  $T_d$ .

Следует отметить, что ширина пика пиротока очень узкая во всех исследованных керамиках. В работе [12] авторы исследовали температурную зависимость остаточ-



**Рис. 6.** Температурные зависимости пьроэлектрического тока и остаточной поляризации для керамик  $x = 23\%$  (a),  $x = 16\%$  (b) и  $x = 10\%$  (c).

ной поляризации и пиротока в керамике PMN–0.11PZT. Температуры максимумов пиротока из наших измерений и из работы [12] совпадает, однако полуширина пиков в нашей работе составляет всего несколько градусов, в то время как в работе [12] больше 50 градусов.

Одной из возможных причин широкого максимума пиротока в [12] может быть смешанная фазовая структура и сосуществование полярных областей разной симметрии и разных размеров. Приложенное электрическое поле привело к неполной монодоменизации образца и индуцированию сегнетоэлектрического дальнего порядка только в части объема образца и, как следствие, сосуществованию доменов сегнетоэлектрической ромбоэдрической (или моноклинной) фазы с доменами релаксорной тетрагональной фазы в широком интервале температур. Эти домены разной симметрии по-разному выстраиваются во внешних полях и имеют различные температуры перехода. Узкий пик тока депольаризации, обнаруженный нами во всех исследуемых образцах, свидетельствует о том, что монодоменизация произошла во всем объеме одновременно, и приложенного электрического поля достаточно для переориентации всех доменов по полю. Это, по-видимому, свидетельствует

о практически однородной структуре низкотемпературной фазы. Наличие такого узкого пика свидетельствует о хорошем качестве исследуемых керамик. В нашей работе [24] при изучении оптического пропускания в керамиках PMN– $x$ PZT ( $x = 10, 16\%$ ) мы обнаружили, что они имеют очень высокую оптическую прозрачность  $\sim 65\%$  для видимой и инфракрасной областей спектра. Вообще, получение высокопрозрачной керамики является очень сложной проблемой, включающей множество факторов, таких как синтез порошка, процесс спекания, плотность, фазовая структура, однородность состава, свойства границ зерен и многие другие факторы. В этой же работе при проведении исследований на сканирующем электронном микроскопе мы обнаружили, что в образцах PMN– $x$ PZT ( $x = 10, 16\%$ ) наблюдается полностью плотная микроструктура без очевидных наблюдаемых пор и тонкие, нерегулярные сегнетоэлектрические домены, что и обеспечивает высокую прозрачность и однородность состава. Заметим, что из данных, приведенных в [24], в керамике PMN– $x$ PZT ( $x = 23, 33\%$ ) домены больше, чем в керамиках с  $x = 10, 16\%$ , что привело к уменьшению оптического пропускания в видимой области спектра к

керамике PMN–23PZT до 50%, а в PMN–33PZT до ~ 40%.

#### 4. Заключение

В настоящей работе исследовано влияние компоненты PZT ( $x$ ) в прозрачной керамике  $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3 - x\text{PbZr}_{0.53}\text{Ti}_{0.47}\text{O}_3$  (PMN– $x$ PZT) ( $x = 10, 16, 23, 33\%$ ) на степень размытия фазового перехода, а также на взаиморасположение температуры деполяризации ( $T_d$ ) и морфотропного фазового перехода ( $T_{F-R}$ ). Показано, что с увеличением  $x$  поведение керамики меняется: составы с малой величиной  $x = 10, 16\%$  обнаруживают чисто релаксорные свойства и при охлаждении от высоких температур ниже температуры  $T_f < T_{\max\epsilon}$  в них возникает неэргодическая релаксорная фаза.

Составы с  $x = 23, 33\%$ , наряду с релаксорным поведением, претерпевают спонтанный фазовый переход 1 рода в сегнетоэлектрическую фазу в отсутствие электрического поля, и низкотемпературная фаза является эргодической фазой. Обнаружено, что во всех образцах, несмотря на разную структуру низкотемпературной фазы, при одной и той же температуре, соответствующей температуре морфотропного фазового перехода  $T_{F-R}$ , наблюдаются максимум пиротока (ток термостимулированной деполяризации), перегиб на кривой остаточной поляризации и максимум  $\tan\delta$  поляризованного образца. Это свидетельствует об одноэтапном переходе поляризованного образца в релаксорную фазу, т.е. температуры деполяризации  $T_d$  и  $T_{F-R}$  совпадают. Узкий пик тока деполяризации и резкое изменение остаточной поляризации, обнаруженный нами во всех исследуемых образцах, свидетельствует о том, что монодоменизация произошла во всем объеме одновременно, и приложенного электрического поля достаточно для переориентации всех доменов.

Высказано предположение, что наличие такого узкого пика свидетельствует о хорошем качестве исследуемых керамик и о практически однородной структуре низкотемпературной фазы.

#### Конфликт интересов

Авторы сообщают об отсутствии конфликта интересов.

#### Список литературы

- [1] B. Jaffe, W.R. Cook, H. Jaffe. Piezoelectric Ceramics. Academic Press, London and New York (1971). 302 p.
- [2] G.H. Haertling. J. Am. Ceram. Soc. **82**, 4, 797 (1999).
- [3] L.E. Cross. Mater. Chem. Phys. **43**, 108 (1996).
- [4] W. Cao, L.E. Cross. Phys. Rev. B **47**, 9, 4285 (1993).
- [5] S. Takahashi. Ferroelectrics **41**, 143 (1982).
- [6] S.Y. Chu, T.Y. Chen, I.T. Tsai. Integr. Ferroelectr. **58**, 1293 (2003).
- [7] X.M. Chen, J.S. Yang. J. Eur. Ceram. Soc. **18**, 1059 (1998).
- [8] B. Noheda, D.E. Cox, G. Shirane, J.A. Gonzalo, L.E. Cross, S.E. Park. Appl. Phys. Lett. **74**, 14, 2059 (1999).
- [9] S.E. Park, T.R. Shout. J. Appl. Phys. **82**, 4, 1804 (1997).
- [10] J. Kelly, M. Leonard, C. Tantigate, A. Safari. J. Am. Ceram. Soc. **80**, 4, 957 (1997).
- [11] V. Koval, C. Alemany, J. Briancin, H. Brunckova. J. Electroceram. **10**, 19 (2003).
- [12] A.V. Shilnikov, A.V. Sopit, A.I. Burkhanov, A.G. Luchaninov. J. Eur. Ceram. Soc. **19**, 1295 (1999).
- [13] J.C. Shaw, K.S. Lin, I.N. Lin. Scripta. Mater. **29**, 981 (1993).
- [14] C.H. Wang. J. Eur. Ceram. Soc. **22**, 2033 (2002).
- [15] R. Yimnirun, S. Ananta, P. Laoratanakul. Mater. Sci. and Eng. B **112**, 79 (2004).
- [16] R. Yimnirun, S. Ananta, P. Laoratanakul. J. Eur. Ceram. Soc. **25**, 3235 (2005).
- [17] S. Wongsanmai, Y. Laosiritaworn, S. Ananta, R. Yimnirun. Mater. Sci. and Eng. B **128**, 83 (2006).
- [18] G.H. Haertling, C.E. Land. J. Am. Ceram. Soc. **54**, 1 (1971).
- [19] X.N. Zhang, B. Xia, X. Zeng, P.S. Qiu, W.X. Cheng, X.Y. He. J. Am. Ceram. Soc. **97**, 1389 (2014).
- [20] M. Nakada, K. Ohashi, J. Akedo. J. Cryst. Growth. **275**, 1275 (2005).
- [21] G.S. Snow. J. Am. Ceram. Soc. **56**, 91 (1973).
- [22] Y. Yoshikawa, K. Tsuzuki. J. Am. Ceram. Soc. **75**, 2520 (1992).
- [23] Л.С. Камзина, W. Ruan, G. Li, J. Zeng. ФТТ **54**, 10, 1899 (2012).
- [24] W. Ruan, G. Li, J. Zeng, L.S. Kamzina, H. Zeng, L. Zheng, A. Ding. J. Am. Ceram. Soc. **95**, 2103 (2012).
- [25] Л.С. Камзина, Л.А. Кулакова, G. Li. ФТТ **61**, 1, 104 (2019).
- [26] Л.С. Камзина. ФТТ **62**, 6, 925 (2020).
- [27] X. Tan, E. Aulbach, W. Jo, T. Granzow, J. Kling, M. Marsilius, H.J. Kleebe, J. Rödel. J. Appl. Phys. **106**, 4, 044107 (2009).
- [28] E. Sapper, S. Schaab, W. Jo, T. Granzow, J. Rödel. J. Appl. Phys. **111**, 1, 014105 (2012).
- [29] Y. Hiruma, H. Nagata, T. Takenaka. J. Appl. Phys. **105**, 8, 084112 (2009).
- [30] Л.С. Камзина. ФТТ **64**, 6, 665 (2022).
- [31] A.B. Kounga, T. Granzow, E. Aulbach, M. Hinterstein, J. Rödel. J. Appl. Phys. **104**, 2, 024116 (2008).
- [32] Л.С. Камзина. ФТТ **64**, 11, 1792 (2022).
- [33] V. Bobnar, Z. Kutnjak, R. Pirc, A. Levstik. Phys. Rev. B **60**, 9, 6420 (1999).
- [34] W. Zhao, W. Ruan, J. Zeng, L. Huang, K. Zhao, L. Zheng, H. Zeng, Y. Zhou, H. Yang, X. Ruan, G. Li. Appl. Phys. Lett. **104**, 062907 (2014).
- [35] Л.С. Камзина, В.Г. Залесский. ФТТ **67**, 323 (2025).
- [36] G.D. Adhikary, B. Mahale, B. N. Rao, A. Senyshyn, R. Ranjan. Phys. Rev. B **103**, 184106 (2021).
- [37] A.A. Bokov, Z.-G. Ye. J. Mat. Sci. **41**, 31 (2006).

Редактор В.В. Емцев