

УДК 666.655

ИССЛЕДОВАНИЕ ЧАСТОТНОЙ ЗАВИСИМОСТИ ЭЛЕКТРИЧЕСКОЙ ПРОВОДИМОСТИ ПЬЕЗОКЕРАМИКИ ЦТС

ЛУЩИН С.П. канд. физ.-матем. наук, доцент кафедры физики Национального университета "Запорожская политехника", Запорожье, Украина, e-mail: luschin@zntu.edu.ua;
ЗОЛОТАРЕВСКИЙ А.И. ст. лаборант кафедры физики Национального университета "Запорожская политехника", Запорожье, Украина, e-mail: alek112@ukr.net.

Цель работы. Исследовать частотную зависимость электрической проводимости пьезокерамики на основе твердых растворов оксидов цирконата-титаната свинца.

Методы исследования. Для получения частотной зависимости электрической проводимости пьезокерамики на основе твердых растворов оксидов цирконата-титаната свинца использовалась методика измерения сопротивления образца с нанесенными на его противоположные грани электродами. По полученному значению сопротивления вычислялось значение электрической проводимости образца при различных частотах.

Полученные результаты. Авторами получена частотная зависимость удельной электрической проводимости пьезокерамики ЦТС-22 на основе твердых растворов оксидов цирконата-титаната свинца в диапазоне частот $0 < \nu < 60$ кГц. Удельная электрическая проводимость пьезокерамики ЦТС-22 увеличивалась во всем диапазоне исследованных частот. При частотах до 20 кГц наблюдался резкий рост удельной электрической проводимости. При частотах $\nu > 20$ кГц увеличение удельной электрической проводимости прекращалось, и при частотах $\nu > 30$ кГц ее значение выходило на насыщение. Максимальное значение удельной электрической проводимости $\gamma = 0,55 \cdot 10^{-6} \text{ Ом}^{-1} \cdot \text{м}^{-1}$ было получено при частоте 60 кГц. Проведен анализ частотной зависимости удельной электрической проводимости пьезокерамики ЦТС-22 в диапазоне частот $0 < \nu < 60$ кГц. Установлено, что в диапазоне частот $0 < \nu < 10$ кГц удельная электрическая проводимость пьезокерамики ЦТС-22 увеличивается по степенному закону. Обсуждается механизм изменения электрической проводимости пьезокерамики ЦТС при увеличении частоты электрического поля. Получена формула, удовлетворительно описывающая экспериментальную зависимость удельной электрической проводимости пьезокерамики ЦТС-22 от частоты переменного напряжения в диапазоне частот $0 < \nu < 10$ кГц и которая соответствует степенному закону А. Иончера. Удельная электрическая проводимость не поляризованной пьезокерамики ЦТС-19 увеличивается в диапазоне частот $0 < \nu < 100$ кГц. В диапазоне частот $0 < \nu < 20$ кГц наблюдается степенная зависимость, а при частотах $\nu > 20$ кГц происходит нарушение степенного закона и удельная электрическая проводимость постепенно увеличивается, не выходя на насыщение.

Научная новизна. Исследована частотная зависимость электрической проводимости пьезокерамики ЦТС-22 в диапазоне частот $0 < \nu < 60$ кГц. Установлено, что удельная электрическая проводимость пьезокерамики ЦТС-22 повышается с увеличением частоты электрического поля и в диапазоне частот $0 < \nu < 10$ кГц характер ее изменения соответствует степенному закону А. Иончера. Механизм изменения электрической проводимости обусловлен прыжковой проводимостью ионов и поляронов в диэлектрике и объясняется запаздыванием медленных механизмов поляризации. Характер зависимости удельной электрической проводимости пьезокерамики ЦТС-19 обусловлен тем, что процессы поляризации не дают заметного вклада в дисперсию электрической проводимости не поляризованной пьезокерамики и запаздывания медленных механизмов поляризации не наблюдается.

Практическая ценность. При эксплуатации пьезокерамики на основе твердых растворов оксидов цирконата-титаната свинца необходимо учитывать существенную зависимость ее электрической проводимости от частоты переменного электрического поля. Результаты исследований могут быть использованы для изучения механизма электрической проводимости пьезокерамических материалов на основе твердых растворов оксидов цирконата-титаната свинца, эксплуатируемых в электротехнических и электронных изделиях при воздействии переменных электрических полей различных частот.

Ключевые слова: частотная зависимость; удельная электрическая проводимость; пьезокерамика; цирконат-титанат свинца; механизм электрической проводимости.

1. ВВЕДЕНИЕ

Исследование электропроводности поликристаллических диэлектриков в зависимости от различных факторов представляет большой интерес для изучения

механизма электронных процессов и практического использования таких материалов в электротехнической и электронной промышленности [1]. Наиболее перспективным материалом, широко применяемым в современной промышленности, является пьезоэлек-

трическая керамика на основе твердых растворов оксидов цирконата-титаната свинца (ЦТС) $Pb(Zr,Ti)O_3$ [2]-[4]. Пьезокерамика ЦТС является сегнетоэлектрическим материалом, обладающим рядом специфических свойств: высокое значение диэлектрической проницаемости, способность легко поляризоваться и реагировать на различные внешние воздействия [5]-[7]. В настоящее время пьезокерамика ЦТС является базовым промышленным материалом и используется для создания многослойных керамических конденсаторов с высоким значением электрической емкости, различных пьезоэлектрических приборов, работающих в качестве электромеханических преобразователей [8]-[10]. Эксплуатация пьезокерамических материалов в переменных электрических полях в широком частотном диапазоне вызывает необходимость учета и контроля изменения основных электрофизических параметров таких диэлектриков, одним из которых является удельная электрическая проводимость.

II. АНАЛИЗ ИССЛЕДОВАНИЙ И ПУБЛИКАЦИЙ

Изменение электрической проводимости поликристаллических керамических материалов в зависимости от различных факторов являлось предметом исследований многих авторов. Исследовалось влияние температуры, влажности, давления, величины напряженности электрического поля и др. на электрическую проводимость различных диэлектриков [11]. В работе [12] рассматриваются возможные механизмы изменения электрической проводимости и отмечается, что в зависимости от физической природы носителей и свойств диэлектрика величина электрической проводимости при увеличении частоты электрического поля может как увеличиваться, так и уменьшаться. Повышение электрической проводимости обусловлено запаздыванием медленных механизмов поляризации. В настоящее время при рассмотрении механизмов электрической проводимости поликристаллических материалов используют модель, предложенную Моррисоном [13]. Согласно его модели структура спеченных при высоких температурах поликристаллических материалов представляет собой систему однородных частиц – кристаллитов, связанных между собой многочисленными контактами в виде тонких соединений в виде «шеек» (структура швейцарского сыра). Наличие таких контактов в значительной мере влияет на величину электрической проводимости на постоянном токе. Для описания электрической проводимости в таких поликристаллических структурах в настоящее время пользуются механизмом барьерной электропроводности, предложенной Слэтером и Петрицем [13]. В дальнейшем с целью получения информации об электропроводности самих кристаллитов были выполнены измерения электропроводности на высоких частотах в области СВЧ до $\sim 10^{10}$ Гц [13].

Исследование электрической проводимости керамики ЦТС при различных температурах в диапазоне низких частот от 10 мГц до 10 кГц в зависимости от вида легирующей примеси были выполнены Моро-

зовым М.И. [14]. В этой работе показано влияние различных легирующих добавок на механизм электропроводности сегнетомягких и сегнетожестких керамических материалов системы ЦТС.

В работе [15] исследовалась температурная зависимость электропроводности керамики ЦТС на фиксированных частотах, модифицированной гадолинием Gd^{3+} . В ней показано увеличение электропроводности ЦТС на переменном токе с увеличением температуры, которая имеет активационный характер.

В работе [16] на основе терминов фрактальной структуры проводящих кластеров и механизма прыжковой проводимости интерпретируются результаты измерений электропроводности на переменном токе сегнетоэлектрической керамики ЦТС с легирующими добавками Fe, Sb.

В работе [17] исследована частотная зависимость электрического сопротивления цилиндрического пьезокерамического излучателя на основе пьезокерамики ЦТС от вида поляризации, состава пьезокерамики и других факторов.

Авторами работы [18] исследовалось влияние кислородных вакансий на электрическую проводимость керамики ЦТС на переменном токе.

Анализ вышеприведенных исследований и публикаций показывает, что исследованию частотной зависимости электрической проводимости пьезокерамических материалов системы ЦТС уделялось достаточно мало внимания. В этой связи существует необходимость исследования зависимости электрической проводимости пьезокерамических материалов системы ЦТС от частоты переменного напряжения в диапазоне, соответствующем условиям эксплуатации. Такие исследования дают возможность судить о механизме электронных процессов, ответственных за электрическую проводимость пьезокерамических материалов системы ЦТС.

III. ЦЕЛЬ РАБОТЫ

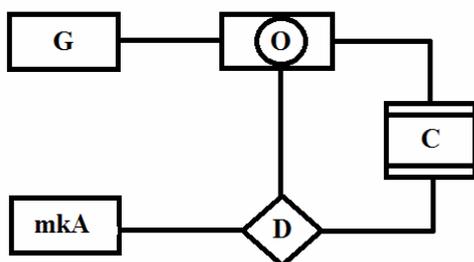
Ввиду широкого использования пьезокерамических материалов системы ЦТС в различных условиях эксплуатации целью данной работы является исследование частотной зависимости электрической проводимости пьезокерамики ЦТС в диапазоне частот $0 < \nu < 60$ кГц. Значительное изменение удельной электрической проводимости при частотах до 60 кГц послужило основанием для выбора диапазона исследуемых частот. Изучение характера изменения удельной электрической проводимости диэлектриков в этой области частот дает возможность судить о вероятном механизме электронных процессов, ответственных за электропроводность пьезокерамических материалов системы ЦТС.

IV. ИЗЛОЖЕНИЕ ОСНОВНОГО МАТЕРИАЛА И АНАЛИЗ ПОЛУЧЕННЫХ РЕЗУЛЬТАТОВ

Нами исследовалась частотная зависимость удельной электрической проводимости пьезокерами-

ки на основе твердых растворов оксидов цирконата-титаната свинца - пьезокерамика марки ЦТС-22, ЦТС-19 [19] в диапазоне частот $0 < \nu < 60$ кГц. На поверхность пьезокерамики ЦТС-22 по промышленной технологии были нанесены серебряные электроды путем вжигания серебряносодержащей пасты [2]-[3]. Образец пьезокерамики ЦТС-22 представлял собой диск толщиной 6 мм и диаметром 38 мм. Поляризация образца производилась по стандартной промышленной технологии [2]-[3]. Образец из пьезокерамики ЦТС-19 представлял собой квадратную пластину размерами $6 \times 6 \times 1$ мм. На его поверхности наносились никелевые электроды с помощью термического вакуумного напыления. Поляризация этого образца не производилась. Для измерений электрической проводимости использовалась схема, позволяющая определять сопротивление образца с нанесенными на его противоположные грани электродами [8].

Для проведения измерений использовалась экспериментальная установка, блок-схема которой приведена на рис. 1. Экспериментальная установка состояла из генератора переменного тока ГЗ-56/1, осциллографа С1-65, ячейки для измерения сопротивления, диодных мостиков из высокочастотных диодов и микроамперметра М1200. Частота генератора изменялась в диапазоне $0 < \nu < 100$ кГц. Напряжение генератора составляло 5 В.



G – генератор, *O* – осциллограф, *C* – ячейка для измерения сопротивления с образцом, *D* – диодный мостик, *mkA* – микроамперметр.

Рисунок 1. Блок-схема экспериментальной установки

Из рис. 1 видно, что от генератора переменный электрический ток подавался на ячейку для измерения сопротивления, которая представляла собой два медных прижимных электрода, между которыми помещался исследуемый образец. На поверхность пьезокерамики ЦТС-22 по промышленной технологии были нанесены серебряные электроды путем вжигания серебряносодержащей пасты. Образец пьезокерамики представлял собой диск толщиной 6 мм и диаметром 38 мм. Стабильность подаваемого напряжения контролировали с помощью осциллографа. Величину напряжения и тока на обкладках конденсатора после выпрямления диодными мостиками измеряли с помощью вольтметра и микроамперметра соответственно. Для расчета удельной электрической проводимости исследуемого образца использовалась формула

зависимости проводимости от геометрических размеров образца. Зависимость электрической проводимости пьезокерамики ЦТС-22 от частоты переменного напряжения была получена при атмосферном давлении и температуре $T = 295$ К.

На рис. 2 приведена зависимость удельной электрической проводимости пьезокерамики ЦТС-22 от частоты переменного напряжения.

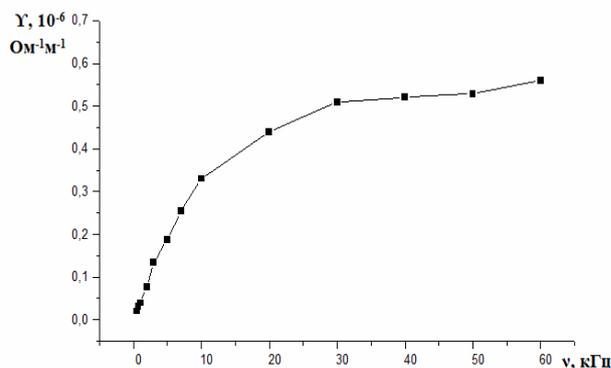


Рисунок 2. Зависимость удельной электрической проводимости пьезокерамики ЦТС-22 от частоты переменного напряжения

Для образца пьезокерамики ЦТС-19 зависимость удельной электрической проводимости от частоты переменного напряжения представлена на рис. 3.

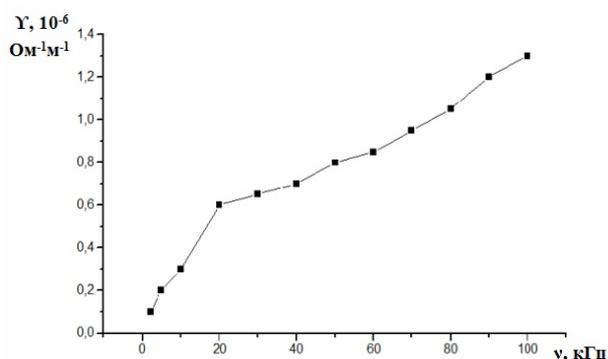


Рисунок 3. Зависимость удельной электрической проводимости пьезокерамики ЦТС-19 от частоты переменного напряжения

Анализ полученной зависимости удельной электрической проводимости от частоты переменного напряжения (рис. 2) показал, что удельная электрическая проводимость пьезокерамики ЦТС-22 увеличивалась во всем диапазоне исследованных частот от 0 Гц до 60 кГц. При частотах до 20 кГц наблюдался резкий рост удельной электрической проводимости. При частотах $\nu > 20$ кГц увеличение удельной электрической проводимости прекращалось, и при частотах $\nu > 30$ кГц ее значение практически выходило на насыщение (рис. 2). Максимальное значение удельной электрической проводимости $\gamma = 0,55 \cdot 10^{-6} \text{ Ohm}^{-1} \text{ m}^{-1}$ было получено при частоте 60 кГц.

Анализ зависимости удельной электрической проводимости от частоты переменного напряжения для пьезокерамики ЦТС-19 (рис. 3) показал, что эта зависимость имеет другой характер и представляет собой два участка. Наблюдается увеличение удельной электрической проводимости во всем диапазоне исследованных частот от 0 Гц до 100 кГц. На частоте $\nu = 20$ кГц наблюдается излом зависимости и с увеличением частоты при $\nu > 20$ кГц удельная электрическая проводимость постепенно увеличивается, не выходя на насыщение.

Для описания пьезоэлектрического резонатора и определения его параметров обычно используют эквивалентную электрическую схему [10], которая состоит из двух ветвей (рис. 4).

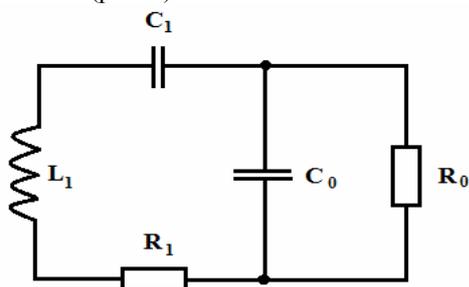


Рисунок 4. Эквивалентная электрическая схема пьезоэлектрического резонатора

Резистивно-индуктивно-емкостная ветвь R_1, L_1, C_1 эквивалентной схемы учитывает резонансные свойства пьезоэлектрического резонатора и называется динамической. Вторая ветвь содержит параллельную статическую емкость C_0 , которая характеризует емкость пьезоэлемента как конденсатора, а также емкость корпуса, держателя и монтажа. Емкость C_0 для пьезокерамики заметно зависит от частоты переменного напряжения и ее изменение является предметом исследования для контроля параметров пьезоэлементов. Сопротивления R_1 и R_0 учитывают потери на переменном и постоянном токах соответственно. Пьезокерамика ЦТС в различных условиях эксплуатации может иметь заметную проводимость на постоянном токе, которую учитывает параллельное сопротивление R_0 [10].

Эквивалентная электрическая цепь многофазной поликристаллической структуры пьезокерамики ЦТС может быть представлена комбинацией большого количества активных сопротивлений и емкостей, ввиду малых значений индуктивностей. С увеличением частоты переменного электрического поля электрическое сопротивление такой цепи должно уменьшаться и, соответственно, электрическая проводимость увеличиваться.

Явление дисперсии проводимости диэлектриков описывается с помощью универсального степенного закона, установленного А. Иончером [12]:

$$\sigma \sim \omega^n,$$

где показатель степенной функции $0,7 < n < 1$.

Такое соотношение характерно для многих механизмов движения заряженных частиц в переменном

электрическом поле. Повышение электрической проводимости диэлектриков с увеличением частоты электрического поля обусловлено движением ионов и полярных при своем «прыжковом» движении под действием электрического поля, поворотом диполей, а также движением других заряженных частиц и комплексов. При увеличении частоты различные заряженные частицы не успевают реагировать на изменение электрического поля и, соответственно, достигают позиций локализации. В то же время они непрерывно движутся, следуя за изменением электрического поля, и тем самым способствуют увеличению электрической проводимости. При таком движении заряженных частиц отсутствует вклад в поляризацию образца и наблюдается дисперсия диэлектрической проницаемости ϵ . Большое различие величины потенциальных барьеров и длины свободного пробега заряженных частиц объясняет непрерывный рост проводимости в широком частотном интервале. Нелинейный характер частотной зависимости электрической проводимости пьезокерамики ЦТС объясняется запаздыванием медленных механизмов поляризации [12].

Емкостной ток через пьезоэлектрик при переменном напряжении определяется формулой

$$I_C = \omega C U$$

где I_C – емкостной ток; ω – циклическая частота; C – электрическая емкость; U – напряжение.

Необходимо учесть, что электрическая емкость C также зависит от частоты переменного напряжения, ввиду дисперсии диэлектрической проницаемости пьезокерамики. Ранее нами была получена степенная зависимость диэлектрической проницаемости пьезокерамики ЦТС-22 от частоты переменного тока [20]-[21]:

$$\epsilon = k \omega^{-\alpha},$$

где α – показатель степенной функции; k – коэффициент пропорциональности для диэлектрической проницаемости.

Поэтому, подставляя ее в предыдущую формулу, мы получим:

$$I_C = \omega \frac{\epsilon \epsilon_0 S}{d} U = \omega \frac{k \omega^{-\alpha} \epsilon_0 S}{d} U = A \omega^{1-\alpha},$$

где $A = \frac{k \epsilon_0 S U}{d}$ – коэффициент пропорциональности для емкостного тока.

Учитывая, что характер зависимости емкостного тока отражает характер зависимости удельной электрической проводимости пьезокерамики ЦТС от частоты переменного тока, получим:

$$\gamma = B \omega^{1-\alpha} = B \omega^n,$$

где B – коэффициент пропорциональности для удельной электрической проводимости; $1 - \alpha = n$ – показатель степенной функции.

Полученная формула удовлетворительно описывает экспериментальную зависимость удельной электрической проводимости пьезокерамики ЦТС-22 от частоты

переменного напряжения в диапазоне частот $0 < \nu < 10$ кГц и соответствует степенному закону А. Иончера. Подтверждением этому является то, что зависимость удельной электрической проводимости от частоты переменного напряжения в логарифмических координатах имеет линейный характер в интервале частот $0 < \nu < 10$ кГц (рис. 5). Значение показателя степенной функции на этом участке составляет $n = 0,5$. Меньшее значение показателя степенной функции по сравнению с законом А. Иончера может быть связано с тем, что поляризованная керамика имеет доменную структуру и повороты стенок доменов при изменении частоты переменного поля затруднены. Линейность логарифмической зависимости удельной электрической проводимости от частоты нарушается при частотах $\nu > 10$ кГц, что может быть связано с изменением механизма проводимости на более высоких частотах.

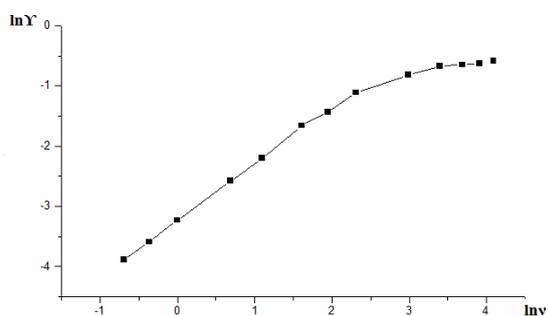


Рисунок 5. Зависимость удельной электрической проводимости пьезокерамики ЦТС-22 от частоты переменного напряжения в логарифмических координатах

Зависимость удельной электрической проводимости от частоты переменного напряжения для пьезокерамики ЦТС-19 в логарифмических координатах приведена на рис. 6 и состоит из двух участков.

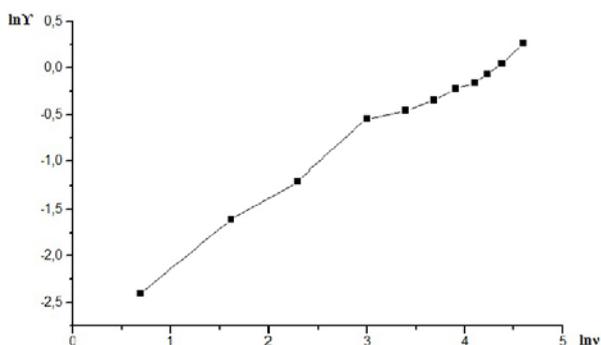


Рисунок 6. Зависимость удельной электрической проводимости пьезокерамики ЦТС-19 от частоты переменного напряжения в логарифмических координатах

На первом участке в диапазоне частот $0 < \nu < 20$ кГц наблюдается практически линейная зависимость, что подтверждает степенной характер частотной зависимости удельной электрической проводимости. Значение показателя степенной функции на этом участке составляет $n = 0,8$, что соответствует закону А. Иончера. На втором участке при частотах $\nu > 20$ кГц проис-

ходит нарушение линейности и отклонение от степенного закона. Такой характер частотной зависимости удельной электрической проводимости вероятно связан с тем, что исследуемый образец был не поляризованным. Поэтому механизм электрической проводимости пьезокерамики ЦТС-19 в диапазоне частот $0 < \nu < 20$ кГц обусловлен процессами прыжковой проводимости ионов и поляронов, при этом происходит запаздывание медленных механизмов поляризации. А при частотах $\nu > 20$ кГц механизм электрической проводимости имеет другой характер, так как процессы поляризации не дают заметного вклада в дисперсию электрической проводимости не поляризованной пьезокерамики и запаздывания медленных механизмов поляризации не наблюдается.

V. ВЫВОДЫ

Исследована частотная зависимость электрической проводимости пьезокерамики ЦТС-22 в диапазоне частот $0 < \nu < 60$ кГц. Установлено, что удельная электрическая проводимость пьезокерамики ЦТС-22 повышается с увеличением частоты электрического поля и в диапазоне частот $0 < \nu < 10$ кГц и характер ее изменения соответствует степенному закону А. Иончера. Механизм изменения электрической проводимости обусловлен прыжковой проводимостью ионов и поляронов в диэлектрике и объясняется запаздыванием медленных механизмов поляризации. Характер зависимости удельной электрической проводимости пьезокерамики ЦТС-19 обусловлен тем, что процессы поляризации не дают заметного вклада в дисперсию электрической проводимости не поляризованной пьезокерамики и запаздывания медленных механизмов поляризации не наблюдается.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- [1] Физические основы, методы исследования и практическое применение пьезоматериалов [Текст] / В.А. Головин, И.А. Каплунов, О.В. Малышкина и др. - М.: Техносфера, 2013. - 272 с. ISBN: 978-5-94836-352-3.
- [2] Глозман, И.А. Пьезокерамика [Текст] / И.А. Глозман. - М.: Энергия, 1972. - 288 с.
- [3] Яффе, Б. Пьезоэлектрическая керамика [Текст] / Б. Яффе, У. Кук, Г. Яффе. - М.: Мир, 1974. - 288 с.
- [4] Bell A.J. Ferroelectrics: The Role of Ceramic Science and Engineering / A.J. Bell // J. Eur. Ceram. Soc. - 2008. - Vol. 28(7). - P. 1307-1317.
- [5] Лайнс, М. Сегнетоэлектрики и родственные материалы [Текст] / М. Лайнс, А. Глас. - М.: Мир, 1981. - 736 с.
- [6] Физика сегнетоэлектрических явлений [Текст] / Г.А. Смоленский, В.А. Исупов, Р.Е. Пасынков и др.; отв. ред. Г.А. Смоленский. - Л.: Наука: Ленингр. отд., 1985. - 396 с.
- [7] Физика сегнетоэлектриков: современный взгляд [Текст] / под ред. К.М. Рабе, Ч.Г. Ана, Ж.-М. Трискона; пер. с англ. - М.: БИНОМ. Лаборатория знаний,

2011. - 440 с.

[8] Трофимов, А.И. Пьезоэлектрические преобразователи статических нагрузок [Текст] / А.И. Трофимов. – М.: Машиностроение, 1979. – 95 с.

[9] Шарапов, В.М. Пьезоэлектрические датчики [Текст] / В.М. Шарапов, М.П. Мусиенко, Е.В. Шаропова; под ред. В.М. Шаропова. – М.: Техносфера, 2006. – 632 с. ISBN 5-94836-100-4.

[10] Пьезоэлектрические резонаторы: Справочник [Текст] / В.Г. Андросова, Е.Г. Бронникова, А.М. Васильева и др.; Под ред. П.Е. Кандыбы и П.Г. Позднякова. – М.: Радио и связь, 1992. – 392 с. ISBN 5-256-00634-7.

[11] Тареев, Б.М. Физика диэлектрических материалов [Текст] / Б.М.Тареев. - М.: Энергоиздат, 1982. - 320 с.

[12] Поплавко, Ю.М. Физика диэлектриков [Текст] / Ю.М. Поплавко. - К.: Вища школа, 1980. - 400 с.

[13] Киселев, В.Ф., Электронные явления в адсорбции и катализе на полупроводниках и диэлектриках [Текст] / В.Ф. Киселев, О.В. Крылов – М.: Наука, 1979. - 112 с.

[14] Morozov, M.I. Charge migration in Pb(Zr,Ti)O₃ ceramics and its relation to ageing, hardening and softening / M.I. Morozov, D. Damjanovic // J. of Applied Physics. – 2010. – Vol. 107, issue 3, 034106. <https://doi.org/10.1063/1.3284954>.

[15] Azad, Subhash Chandra. Study of Dielectric and Transport Properties of Gadolinium (Gd³⁺) Modified Lead Zirconate Titanate [PZT] Ceramics / Subhash Chandra Azad, R. Ranjan, N.K. Singh // Intern. J. of Research and Scientific Innovation. – 2016. – V. III, iss. XI. – P.

67-69. ISSN 2321-2705.

[16] Osak, Andrzej. AC low frequency conductivity in PZT PFS ferroelectric ceramics / Andrzej Osak // Technical Transactions. – 2017. – Vol. 1. – P. 173-185. DOI: 10.4467/1353737XCT.17.015.6112.

[17] Лейко, А.Г. Электрические свойства цилиндрических пьезокерамических излучателей силовой и компенсированной конструкции с окружной поляризацией [Текст] / А.Г. Лейко, Н.Д. Гладких, А.И. Нижин, Я.И. Старовойт // Electronics and Communication. – 2014, Vol. 19. – С.62-72.

[18] G. Deng, G. Li, A. Ding, Q. Yin. Evidence for oxygen vacancy inducing spontaneous normal-relaxor transition in complex perovskite ferroelectrics // Appl. Phys. Lett. – 2005, Vol. 87, Iss. 19, 192905. DOI: 10.1063/1.2125110.

[19] ОСТ II 0444-87. Материалы пьезокерамические. Технические условия [Текст]. – М.: 1987. – 144 с.

[20] Золотаревский, А.И. Исследование спектральной зависимости диэлектрической проницаемости некоторых полярных диэлектриков в диапазоне низких частот [Текст] / А.И. Золотаревский, С.П. Лушин // Електротехніка та електроенергетика. - №1. - 2017. - С. 5-10. DOI: 10.15588/1607-6761-2017-1-1.

[21] Золотаревский, А.И. Исследование частотно-температурной зависимости диэлектрической проницаемости пьезокерамики ЦТС в диапазоне низких частот [Текст] / А.И. Золотаревский, С.П. Лушин // Електротехніка та електроенергетика. - №1. - 2018. - С. 15-21. DOI: 10.15588/1607-6761-2018-1-2.

Стаття надійшла до редакції 18.02.2020

ДОСЛІДЖЕННЯ ЧАСТОТНОЇ ЗАЛЕЖНОСТІ ЕЛЕКТРИЧНОЇ ПРОВІДНОСТІ П'ЄЗОКЕРАМІКИ ЦТС

ЛУЩИН С.П.

канд. фіз.-матем. наук, доцент кафедри фізики Національного університету «Запорізька політехніка», Запоріжжя, Україна, e-mail: luschin@zntu.edu.ua;

ЗОЛОТАРЕВСЬКИЙ
О.І.

ст. лаборант кафедри фізики Національного університету «Запорізька політехніка», Запоріжжя, Україна, e-mail: alek112@ukr.net.

Мета роботи. Дослідити частотну залежність електричної провідності п'єзокераміки на основі твердих розчинів оксидів цирконата-титанату свинцю.

Методи дослідження. Для отримання частотної залежності електричної провідності п'єзокераміки на основі твердих розчинів оксидів цирконата-титанату свинцю використовувалась методика вимірювання опору зразка з нанесеними на його протилежні грані електродами. За отриманого значення опору обчислювалося значення питомої електричної провідності зразка при різних частотах.

Отримані результати. Авторами отримана частотна залежність питомої електричної провідності п'єзокераміки ЦТС-22 на основі твердих розчинів оксидів цирконата-титанату свинцю в діапазоні частот $0 < \nu < 60$ кГц. Питома електрична провідність п'єзокераміки ЦТС-22 збільшувалася у всьому діапазоні досліджених частот. При частотах до 20 кГц спостерігалось різке зростання питомої електричної провідності. При частотах $\nu > 20$ кГц збільшення питомої електричної провідності припинялось, і при частотах $\nu > 30$ кГц її значення виходило на насичення. Максимальне значення питомої електричної провідності $\gamma = 0,55 \cdot 10^{-6} \text{ Ом}^{-1} \cdot \text{м}^{-1}$ було отримано при частоті 60 кГц. Проведено аналіз частотної залежності питомої електричної провідності п'єзокераміки ЦТС-22 в діапазоні частот $0 < \nu < 60$ кГц. Встановлено, що в діапазоні частот $0 < \nu < 10$ кГц

питома електрична провідність п'єзокераміки ЦТС-22 збільшується за степеневим законом. Обговорюється механізм зміни електричної провідності п'єзокераміки ЦТС при збільшенні частоти електричного поля. Отримана формула, задовільно описує експериментальну залежність питомої електричної провідності п'єзокераміки ЦТС-22 від частоти змінної напруги в діапазоні частот $0 < \nu < 10$ кГц і яка відповідає степеневому закону А. Іончера. Питома електрична провідність не поляризованої п'єзокераміки ЦТС-19 збільшується в діапазоні частот $0 < \nu < 100$ кГц. В діапазоні частот $0 < \nu < 20$ кГц спостерігається степенева залежність, а при частотах $\nu > 20$ кГц відбувається порушення степеневого закону і питома електрична провідність поступово збільшується, не виходячи на насичення.

Наукова новизна. Досліджено частотну залежність електричної провідності п'єзокераміки ЦТС-22 в діапазоні частот $0 < \nu < 60$ кГц. Встановлено, що питома електрична провідність п'єзокераміки ЦТС-22 підвищується зі збільшенням частоти електричного поля і в діапазоні частот $0 < \nu < 10$ кГц характер її зміни відповідає степеневому закону А. Іончера. Механізм зміни електричної провідності обумовлений стрибковою провідністю іонів і поляронів в діелектрику і пояснюється запізненням повільних механізмів поляризації. Характер залежності питомої електричної провідності п'єзокераміки ЦТС-19 обумовлений тим, що процеси поляризації не дають помітного внеску в дисперсію електричної провідності не поляризованої п'єзокераміки і запізнювання повільних механізмів поляризації не спостерігається.

Практична цінність. При експлуатації п'єзокераміки на основі твердих розчинів оксидів цирконата-титанату свинцю необхідно враховувати суттєву залежність її електричної провідності від частоти змінного електричного поля. Результати досліджень можуть бути використані для вивчення механізму електричної провідності п'єзокерамічних матеріалів на основі твердих розчинів оксидів цирконата-титанату свинцю, що експлуатуються в електротехнічних і електронних виробках при впливі змінних електричних полів різних частот.

Ключові слова: частотна залежність; питома електрична провідність; п'єзокераміка; цирконат-титанат свинцю; механізм електричної провідності.

INVESTIGATION OF THE FREQUENCY DEPENDENCE OF THE ELECTRICAL CONDUCTIVITY IN PZT PIEZOCERAMICS

LUSHCHIN S.P. cand. phys-math. sci., associate professor of department of physics, National University "Zaporizhzhia Polytechnic", Zaporizhzhia, Ukraine, e-mail: luschin@zntu.edu.ua;

ZOLOTAREVSKIY A.I. senior assistant of the department of physics of National University "Zaporizhzhia Polytechnic", Zaporizhzhia, Ukraine e-mail: alek112@ukr.net;

Purpose. To investigate the frequency dependence of the electrical conductivity in piezoelectric ceramics based on solid solutions of lead-zirconate titanate oxides.

Methodology. To obtain the frequency dependence of the electrical conductivity in piezoelectric ceramics based on solid solutions of lead-zirconate titanate oxides, we used a technique for measuring the resistance of a sample with electrodes deposited on its opposite faces. Using the obtained resistance value, the value of the electrical conductivity of the sample was calculated at various frequencies.

Findings. The frequency dependence of the specific electrical conductivity in PZT-22 piezoceramics based on solid solutions of lead-zirconate titanate oxides in the frequency range of $0 < \nu < 60$ kHz has been obtained by the authors. The specific electrical conductivity in PZT-22 piezoceramics increased over the entire range of frequencies studied. A sharp increase in specific electrical conductivity was observed at frequencies up to 20 kHz. At frequencies of $\nu > 20$ kHz the increase in specific electrical conductivity ceased and at frequencies of $\nu > 30$ kHz its value reached saturation. The maximum value of specific electrical conductivity $\gamma = 0.55 \cdot 10^{-6} \text{ Ohm}^{-1} \cdot \text{m}^{-1}$ was obtained at a frequency of 60 kHz. The frequency dependence of the specific electrical conductivity in PZT-22 piezoceramics in the frequency range of $0 < \nu < 60$ kHz is analyzed. It was found that the specific electrical conductivity in PZT-22 piezoceramics increases according to a power law in the frequency range of $0 < \nu < 10$ kHz. The mechanism of changing the electrical conductivity in PZT piezoceramics with increasing frequency of the electric field is discussed. A formula is obtained that satisfactorily describes the experimental dependence of the specific electrical conductivity in PZT-22 piezoceramics on the frequency of an alternating voltage in the frequency range of $0 < \nu < 10$ kHz and which corresponds to the power law of A. Ioncher. The specific electrical conductivity in the unpolarized PZT-19 piezoceramics increases in the frequency range of $0 < \nu < 100$ kHz. In the frequency range of $0 < \nu < 20$ kHz a power law dependence is observed and at frequencies of $\nu > 20$ kHz a power law is violated and the specific electrical conductivity gradually increases without reaching saturation.

Originality. The frequency dependence of the electrical conductivity in PZT-22 piezoceramics in the frequency range of $0 < \nu < 60$ kHz is studied. It is established that the specific electrical conductivity in PZT-22 piezoceramics

increases with increasing frequency of the electric field and in the frequency range of $0 < \nu < 10$ kHz, the nature of its change corresponds to the power law of A. Ioncher. The mechanism of change in electrical conductivity is due to the hopping conductivity of ions and polarons in a dielectric and is explained by the delay of slow polarization mechanisms. The nature of the dependence of the specific electrical conductivity in PZT-19 piezoelectric ceramics is due to the fact that polarization processes do not make a noticeable contribution to the dispersion of the electrical conductivity of unpolarized piezoceramics and the delay of slow polarization mechanisms is not observed.

Practical value. When using piezoceramics based on solid solutions of lead-zirconate titanate oxides, it is necessary to take into account the significant dependence of its electrical conductivity on the frequency of an alternating electric field. The research results can be used to study the mechanism of electrical conductivity of piezoceramic materials based on solid solutions of lead-zirconate titanate oxides, which are used in electrical and electronic products under the influence of alternating electric fields of various frequencies.

Keywords: frequency dependence; specific electrical conductivity; piezoceramics; lead-zirconate titanate; electrical conductivity mechanism.

REFERENCES

- [1] Golovnin, V.A., Kaplunov, I.A., Malyshkina, O.V. i dr., (2013). Fizicheskie osnovy, metody issledovanija i prak-ticheskoe primenenie p'ezomaterialov. Moscow: Tehnosfera, 272. ISBN: 978-5-94836-352-3.
- [2] Glozman, I.A. (1972). P'ezokeramika. M. Jenergija, 288.
- [3] Jaffe, B., Kuk, U., Jaffe, G., (1974). P'ezojelekticheskaja keramika. Moscow.: Mir, 288.
- [4] Bell, A.J., (2008). Ferroelectrics: The Role of Ceramic Science and Engineering. *J. Eur. Ceram. Soc.*, 28(7), 1307-1317.
- [5] Lajns, M., Glas, A., (1981). Segnetojelektрики i rodstvennye materialy. Moscow: Mir, 736.
- [6] Smolenskij, G.A., Isupov, V.A., Pasyukov R.E. i dr. Otv. red. G.A. Smolenskij, (1985). Fizika segnetoelektriqueskih yavlenij. Leningrad.: Nauka: Leningr. otd.-nie, 396.
- [7] Fizika segnetojelektrikov: sovremennij vzgljad / pod red. K.M. Rabe, Ch.G. Ana, Zh.-M. Triskona; per. s angl., (2011). Moscow: BINOM. Laboratorija znanij, 440.
- [8] Trofimov, A.I. P'ezojelektriqueskie preobrazovateli staticheskikh nagruzok, (1979). Moscow: Mashinostroenie, 95.
- [9] Sharapov, V.M., Musienko, E.V., Sharapova, M.P. Pod red. V.M. Sharapova, (2006). P'ezojelektriqueskie datchiki. Moscow: Tehnosfera, 632. ISBN 5-94836-100-4.
- [10] Androsova, V.G., Bronnikova, E.G., Vasil'eva, A.M. i dr. Pod red. P.E. Kandyby i P.G. Pozdnjakova, (1992). P'ezojelektriqueskie rezonatory: Spravochnik M.: Radio i svjaz', 392. ISBN 5-256-00634-7.
- [11] Tareev, B.M., (1982). Fizika dielektriqueskih materialov, Moscow: Energoizdat, 320.
- [12] Poplavko, Yu.M., (1980). Fizika dielektrikov K.: Visha shkola, 400.
- [13] Kiselev, V.F., Krylov, O.V., (1979). Elektronnye yavleniya v adsorbicii i katalize na poluprovodnikah i dielektrikah. Moscow: Nauka, 112.
- [14] Morozov, M.I., Damjanovic, D. (2010). Charge migration in Pb(Zr,Ti)O₃ ceramics and its relation to ageing, hardening and softening. *J. of Applied Physics*, 107, 3, 034106. DOI: 10.1016/0893-6080(88)90334-6
- [15] Azad, Subhash Chandra, Ranjan, R., Singh, N.K., (2016). Study of Dielectric and Transport Properties of Gadolinium (Gd³⁺) Modified Lead Zirconate Titanate [PZT] Ceramics. *Intern. J. of Research and Scientific Innovation*, III, XI, 67-69. ISSN 2321-2705.
- [16] Osak, Andrzej., (2017). AC low frequency conductivity in PZT PFS ferroelectric ceramics. *Technical Transactions*, 1, 173-185. DOI: 10.4467/1353737XCT.17.015.6112.
- [17] Lejko, A.G., Gladkih, N.D., Nizhin, A.I., Starovojt, Ja.I., (2014). Jeletktricheskie svojstva cilindricheskikh p'ezokeramicheskikh izluchatelej silovoj i kompensirovannoj konstrukcii s okruzhnoj poljarizaciej. *Electronics and Communication*, 19, 62-72. (in Russian)
- [18] Deng, G., Li, G., Ding, A., Yin, Q., (2005). Evidence for oxygen vacancy inducing spontaneous normal-relaxor transition in complex perovskite ferroelectrics. *Appl. Phys. Lett.*, 87, 19, 192905. DOI: 10.1063/1.2125110.
- [19] OST II 0444-87. Materialy pezokeramicheskije. Tehnicheskie usloviya. (1987). Moscow, 144.
- [20] Zolotarevskij, A.I., Lushchin, S.P., (2017). Issledovanie spektralnoj zavisimosti dielektriqueskoj pronicaemosti nekotoryh polyarnih dielektrikov v diapazone nizkih chastot [The study of the spectral relationship of the dielectric permittivity of polar dielectrics in the low frequency range]. *Elektrotehnika i elektroenergetika*, 1, 5-10. (in Russian) DOI: 10.15588/1607-6761-2017-1-1.
- [21] Zolotarevskij, A.I., Lushchin, S.P., (2018). Issledovanie chastotno-temperaturnoj zavisimosti dielektriqueskoj pronicaemosti pezokeramiki CTS v diapazone nizkih chastot [Investigation of the frequency-temperature relationship of the dielectric permittivity of the PZT piezoceramics in the low frequency range]. *Elektrotehnika i elektroenergetika*, 1, 15-21. (in Russian) DOI: 10.15588/1607-6761-2018-1-2.