

ГИСТЕРЕЗИСНЫЕ СВОЙСТВА МОНОКРИСТАЛЛИЧЕСКИХ ТВЁРДЫХ РАСТВОРОВ PIN-PMN-PT

Н.Н. Большакова¹, Н.Ю. Дружинина², А.И. Иванова¹, Д.А. Иванов¹, Е.М. Семенова¹

ФГБОУ ВО «Тверской государственный университет»

170100, Россия, Тверь, ул. Желябова, 33

ФГКВООУ ВО «Военная академия воздушно-космическая обороны им. Маршала

Советского Союза Г.К. Жукова» Минобороны РФ

170022, Россия, Тверь, ул. Жигарева, 50

semenova_e_m@mail.ru

DOI: 10.26456/pcascnn/2023.15.064

Аннотация: В работе представлены результаты исследования гистерезисных свойств твёрдых растворов $24\% \text{Pb}(\text{In}_{1/2}\text{Nb}_{1/2})\text{O}_3 - 49\% \text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3 - 27\% \text{PbTiO}_3$, полученные при регистрации петель диэлектрического гистерезиса и температурных зависимостей переключаемой поляризации. Экспериментально установлено, что при $T = 293 \text{ K}$ и напряженностях переполяризующего поля $E = (140 - 301) \cdot 10^3 \text{ В} \cdot \text{м}^{-1}$ происходит лишь частичное переключение кристалла. В поле $271 \cdot 10^3 \text{ В} \cdot \text{м}^{-1}$ насыщенные петли диэлектрического гистерезиса для кристаллов наблюдаются в двух интервалах температур $373-383 \text{ K}$ и $437-440 \text{ K}$. Температурные зависимости диэлектрической проницаемости и переключаемой поляризации имеют две аномалии, первые из которых соответствуют области фазового перехода кристалла из сегнетоэлектрической ромбоэдрической фазы в тетрагональную. При температуре порядка 450 K кристалл переходит в параэлектрическое состояние. Электронно-микроскопические исследования структуры кристаллов показывают, что различные участки поверхности содержат неоднородности, отличающиеся по композиционному контрасту от матрицы, представленной химическими элементами, основной массовый процент которых составляют кислород и свинец. В элементный состав неоднородностей входит также титан.

Ключевые слова: монокристаллический твёрдый раствор, гистерезисные свойства, переключаемая поляризация, диэлектрическая проницаемость, фазовый переход.

1. Введение

Современные технологии микро- и нанoeлектроники неразрывно связаны с использованием материалов с особыми физическими свойствами. Среди различных задач, которые относятся к физике конденсированного состояния вещества, значительное внимание уделяется выяснению взаимосвязей между структурными состояниями и физическими свойствами сложных оксидных систем. К числу наиболее эффективных материалов относятся свинецсодержащие монокристаллические твёрдые растворы, лежащие вблизи морфотропной области диаграммы состояния. Они обладают хорошими механическими свойствами, позволяющими их эффективное применение в твердотельных актюаторах, медицинских ультразвуковых преобразователях, а также устройствах геолокации. Наиболее успешной оказалась система $\text{PbIn}_{1/2}\text{Nb}_{1/2}\text{O}_3 - \text{PbMg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3 - \text{PbTiO}_3$ (PIN – PMN – PT). Разнообразие

кристаллических фаз, образующихся при различных условиях приготовления, и особенности фазовых переходов в таких материалах являются предметом исследований [1-6].

Изучение монокристаллических твёрдых растворов сегнетоэлектриков тесно примыкает к общей проблеме физики твёрдого тела – влиянию реальной структуры кристаллов на их свойства. Корректное объяснение результатов исследований керамических твердых растворов часто невозможно из-за вторичных эффектов: влияния межкристаллитных прослоек, образования фаз, зависимости размера зерна от состава и т.д. [7, 8]. Важные особенности сегнетоэлектриков: доменная структура, явление переполяризации, анизотропия электрических и механических свойств могут быть изучены только на монокристаллах [4, 9].

Литературные источники, описывающие результаты исследований диэлектрических свойств кристаллов $PIN-PMN-PT$ различного состава, немногочисленны. Свойства кристаллов, расположенных вблизи морфотропной области диаграммы состояния, изучены достаточно подробно, но работ, посвященных изучению свойств кристаллов вдали от неё, насчитываются единицы [5, 10-12]. Настоящая работа поставлена с целью получения информации о диэлектрических свойствах и процессах переполяризации монокристаллических твёрдых растворов $PIN-PMN-PT$ в циклических переменных электрических полях.

2. Объекты и методы исследования

Исследования выполнены на образцах монокристаллических твёрдых растворов $24\%Pb(In_{1/2}Nb_{1/2})O_3 - 49\%Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3 - 27\%PbTiO_3$ китайского производства, выращенных методом Бриджмена [2,3]. На плоскопараллельные пластины, размерами $5 \times 5 \times 1$ мм, полярного среза наносились серебряные электроды.

Емкость образцов измерена с помощью универсального моста ВМ-509. Петли диэлектрического гистерезиса получены методом Сойера-Тауэра на частоте 50 Гц. Расчеты диэлектрических проницаемостей и параметров петель гистерезиса проведены по стандартным методикам [13]. Погрешности при определении характеристик переключения кристаллов не превышали 10%. Изучение микроструктуры кристаллов осуществлено методом растровой электронной микроскопии (РЭМ JEOL 6610LV) при ускоряющих напряжениях 10-15 кВ в режимах вторичных и отраженных электронов [14]. Исследования химического и элементного состава образца проведены с помощью рентгеновского микроанализатора Oxford Instruments INCA Energy 350.

3. Экспериментальные результаты и обсуждение

На рис. 1 представлены результаты исследования диэлектрических свойств кристаллов $PIN-PMN-PT$ при различных температурах. Электроемкости объекта измерены на частоте 1 кГц в режиме непрерывного нагрева со скоростью $0,05 \text{ K}\cdot\text{c}^{-1}$.

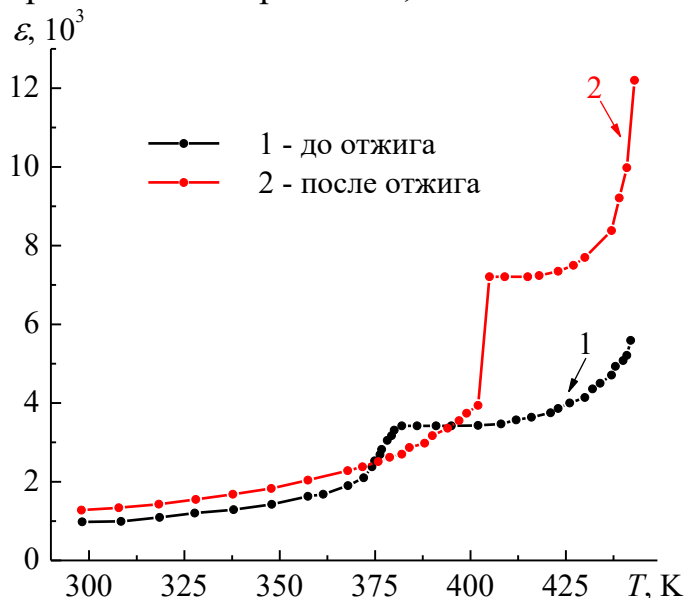


Рис. 1. Температурные зависимости диэлектрической проницаемости кристалла $PIN-PMN-PT$ в температурных интервалах 293-443 К.

Видно, что первичное нагревание образца в интервалах температур 293-390 К и 410-443 К (см. рис. 1, график 1) сопровождается монотонным ростом величины диэлектрической проницаемости от $1\cdot 10^3$ до $5,5\cdot 10^3$. Нагревание образца выше температуры фазового перехода в параэлектрическую фазу вызывает его отжиг. Для этого случая соответствующая температурная зависимость диэлектрической проницаемости представлена на рис. 1 (график 2). Видно, что нагревание образца от 293 К до 410 К сопровождается монотонным ростом диэлектрической проницаемости от $1,5\cdot 10^3$ до $4\cdot 10^3$. Далее значение диэлектрической проницаемости скачкообразно увеличивается до $7,5\cdot 10^3$. В интервале температур 410-443 К наблюдается монотонный рост кривой $\varepsilon(T)$, а величины ε возрастают до $13\cdot 10^3$.

Результаты исследования гистерезисных характеристик кристаллов $PIN-PMN-PT$ при $T=293 \text{ K}$ отражены на рис. 2, где представлены изображения петель диэлектрического гистерезиса, полученные при различных напряженностях реполяризующего поля. Видно, что во всех представленных случаях происходит лишь частичное переключение кристалла, что обусловлено, по-видимому, высоким значением его коэрцитивного поля.

В Таблице 1 приведены результаты расчетов характеристик переключения кристалла, соответствующих рис. 2: эффективной диэлектрической проницаемости ε_{eff} , максимальных переключаемых поляризации P_m^+ и P_m^- , коэрцитивных полей E_c^+ и E_c^- , поля смещения E_{cm} , коэффициентов прямоугольности k и униполярности η петли, тангенса угла диэлектрических потерь $tg\delta$.

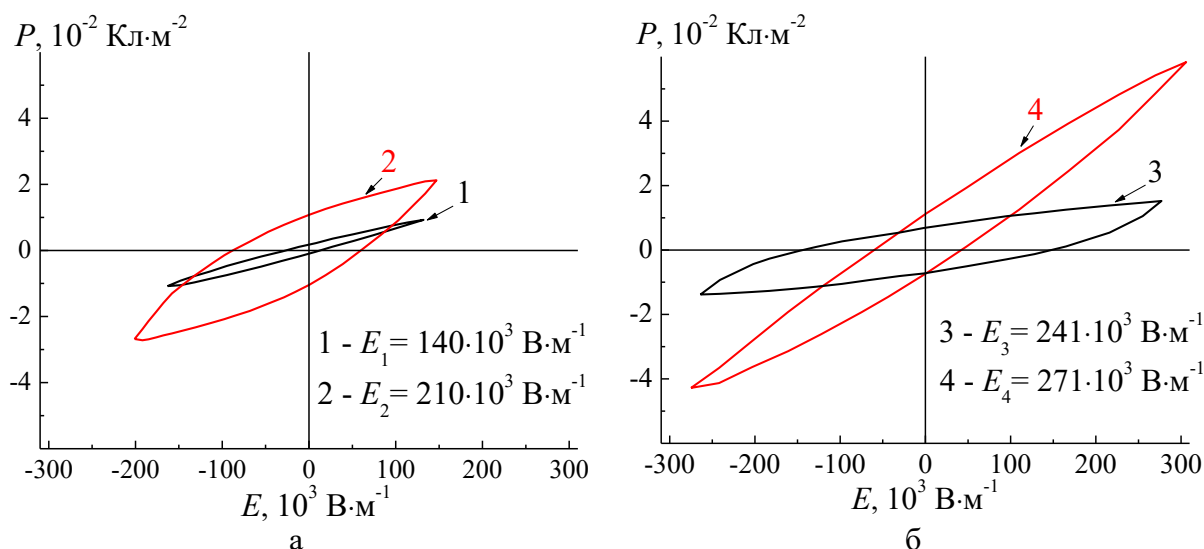


Рис. 2. Изображения петель диэлектрического гистерезиса кристаллов $PIN - PMN - PT$ при температуре $T = 293$ K для различных напряженностей переполяризующего поля.

Таблица 1. Основные гистерезисные характеристики кристаллов $PIN - PMN - PT$.

$E, 10^3$ В·м $^{-1}$	$\varepsilon_{eff},$ 10^3	$P_m^+, 10^{-2}$ Кл·м $^{-2}$	$P_m^-, 10^{-2}$ Кл·м $^{-2}$	$E_c^+, 10^3$ В·м $^{-1}$	$E_c^-, 10^3$ В·м $^{-1}$	$E_{cm}, 10^3$ В·м $^{-1}$	k	η	$tg\delta$
140	8,5	1,0	1,1	16,7	27,4	11	0,13	0,10	0,03
210	5,9	0,93	1,2	65,8	92,2	26	0,45	0,26	0,09
241	5,9	1,4	1,1	127	142	15	0,44	0,24	0,07
271	23	5,7	5,4	38,7	60,3	22	0,15	0,05	0,02

Видно, что с ростом напряжённости переполяризующего поля значения основных характеристик переключения (эффективной диэлектрической проницаемости, переключаемой поляризации, коэрцитивного поля и поля смещения) имеют тенденцию к увеличению, а коэффициента униполярности и тангенса угла диэлектрических потерь – к уменьшению. Увеличение приложенного к кристаллу поля до $271 \cdot 10^3$ В·м $^{-1}$ позволяет достичь в некоторых температурных интервалах полного переключения образца. На рис. 3 представлены температурные зависимости диэлектрической проницаемости и переключаемой поляризации в широком температурном диапазоне, включающем точку фазового перехода кристалла в параэлектрическое состояние.

Сопоставление кривых, представленных на рис. 3, позволяет

предположить, что в интервале температур 360-410 К происходит фазовый переход кристалла из сегнетоэлектрической ромбоэдрической фазы с вектором спонтанной поляризации вдоль направления [111] в тетрагональную с вектором спонтанной поляризации, направленным вдоль [001].

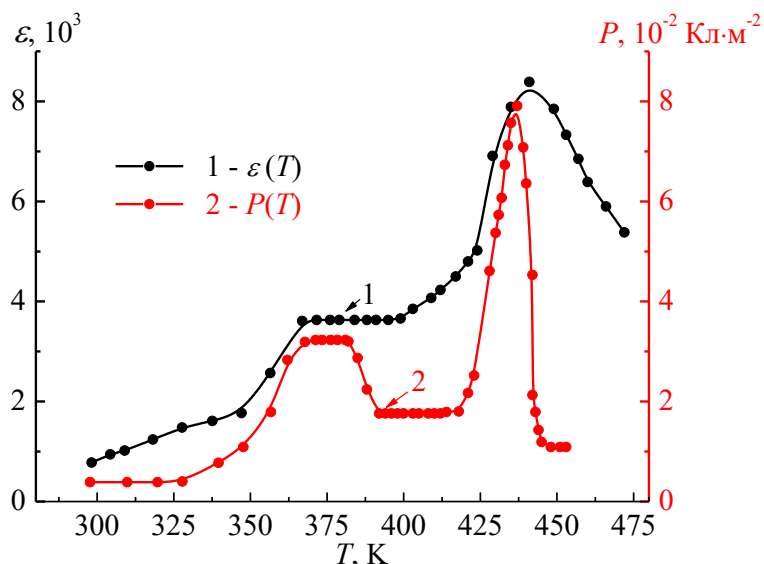


Рис. 3. Температурные зависимости диэлектрической проницаемости (график-1) и переключаемой поляризации (график-2) $E = 271 \cdot 10^3 \text{ В} \cdot \text{м}^{-1}$, полученные для кристалла $PIN - PMN - PT$.

В районе температуры 450 К зависимость $\varepsilon(T)$ проходит через максимум, а кривая $P(T)$ выходит на плато. По-видимому, в этом температурном диапазоне осуществляется фазовый переход из тетрагональной сегнетоэлектрической фазы в параэлектрическую. Полученные результаты согласуются с представленными в работе [15]. Авторами методом теплового эффекта Баркгаузена исследованы процессы перестройки доменной структуры кристаллов $PIN - PMN - PT$ в широком температурном диапазоне, включающем точку фазового перехода в параэлектрическое состояние. Установлено, что температурные зависимости скорости следования скачков переключения имеют две основные аномалии в районах температур 360-410 К и 450 К. Аномалии свидетельствуют об интенсификации доменных процессов, вызванных изменением температуры кристалла в отсутствие внешних электрических полей и механических напряжений.

Циклическая переполяризация кристаллов $PIN - PMN - PT$ в переменных полях частоты 50 Гц в большей степени сопровождается частичным переключением кристалла. Под воздействием переполяризующего поля $271 \cdot 10^3 \text{ В} \cdot \text{м}^{-1}$ в интервалах температур 373-383 К и 426-436 К происходит полная переполяризация образца: на рис. 4 представлены характерные изображения петель диэлектрического

гистерезиса для кристаллов $PIN - PMN - PT$, соответствующие рис. 3.

Видно, что переключаемая поляризация образца в случае рис. 4 б (график 1) почти в 1,5 раза превосходит аналогичную, представленную на рисунке рис. 4 а (график 2). По-видимому, это обусловлено ориентациями доменов кристалла в ромбоэдрической и тетрагональной модификациях. Векторы напряженности переполяризующего поля и поляризации образца, находящегося в тетрагональной фазе, совпадают с направлением $[001]$. Векторы поляризации в доменах ромбической модификации ориентированы по направлению $[111]$, поэтому они изменяют своё направление под воздействием компоненты поля, являющейся проекцией на это направление [4, 16].

В Таблице 2 представлены расчетные характеристики переключения кристалла для насыщенных петель диэлектрического гистерезиса (см. рис. 4), соответствующие температурам 379 К и 438 К.

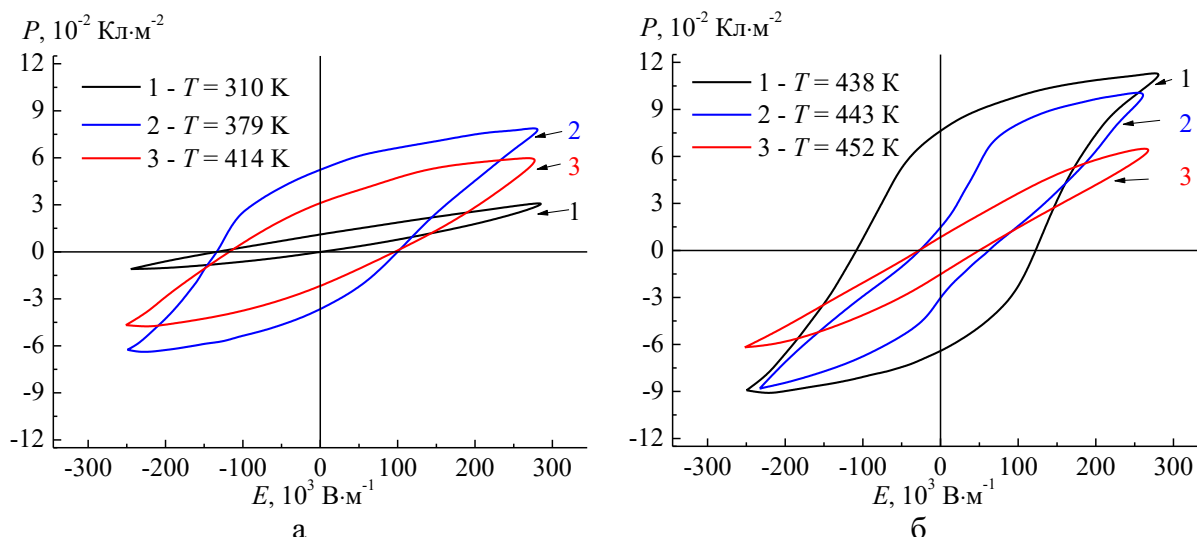


Рис. 4. Изображения петель диэлектрического гистерезиса, полученные для кристаллов $PIN - PMN - PT$ при напряженности поля $E = 271 \cdot 10^3 \text{ В} \cdot \text{м}^{-1}$ и различных температурах: а) 1 – $T = 310 \text{ К}$, 2 – 379 К , 3 – 414 К ; б) 1 – 438 К , 2 – 443 К , 3 – 452 К .

Таблица 2. Расчетные характеристики полного переключения кристалла $PIN - PMN - PT$.

$T, \text{ К}$	$\varepsilon_{eff}, 10^3$	$P, 10^{-2} \text{ Кл} \cdot \text{м}^{-2}$	$E_c, 10^3 \text{ В} \cdot \text{м}^{-1}$	$E_{cm}, 10^3 \text{ В} \cdot \text{м}^{-1}$	k	η	$tg\delta$
379	29	7,0	116	26	0,6	0,13	0,11
438	43	10,4	113	13	0,7	0,21	0,11

Видно, что в районе температуры 435 К значения эффективной диэлектрической проницаемости, переключаемой поляризации и коэффициента униполярности кристалла выше аналогичных для $T = 379 \text{ К}$. Величины коэрцитивного поля и поля смещения для $T = 435 \text{ К}$ меньше, чем при $T = 379 \text{ К}$.

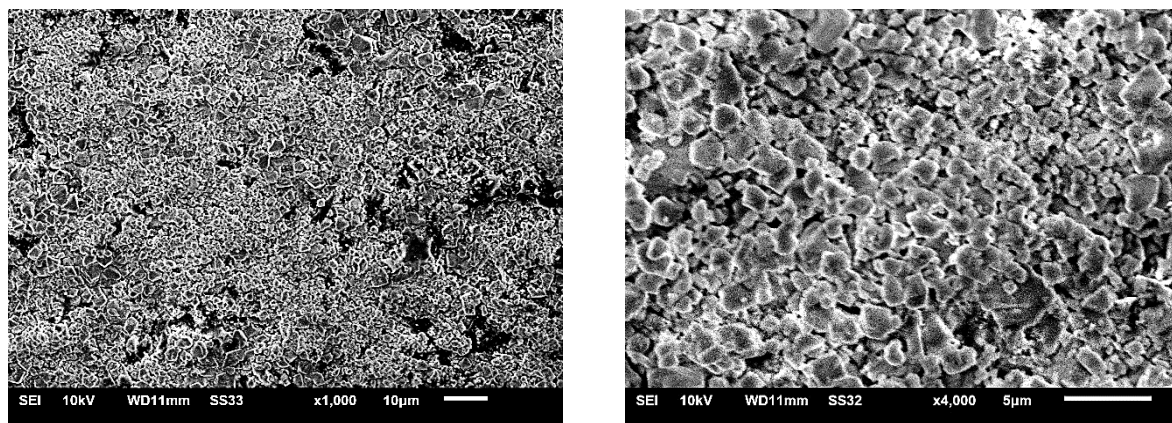


Рис. 5. РЭМ-изображение структуры свежего скола образца $PIN-PMN-PT$. Увеличение: $\times 1000$ (а); $\times 4000$ (б).

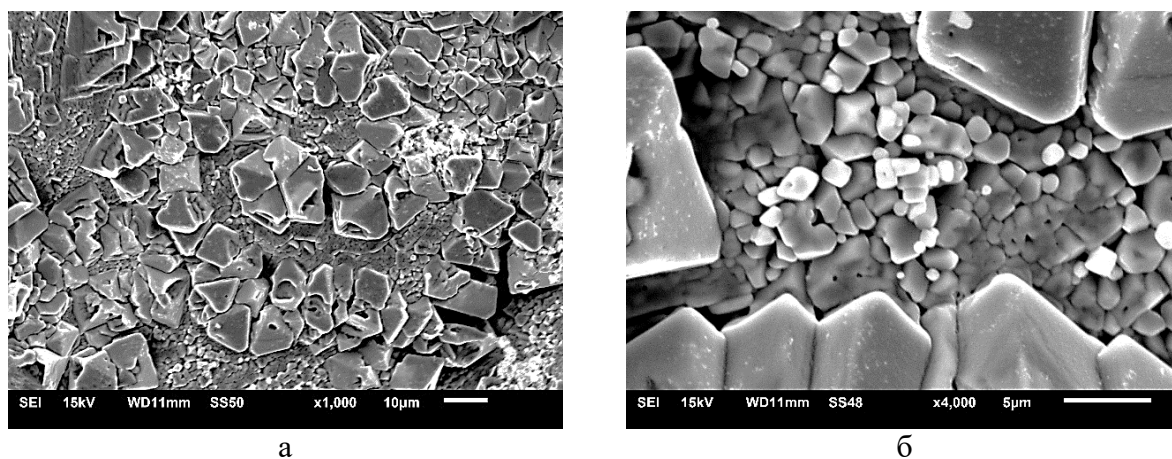


Рис. 6. РЭМ-изображение структуры того же скола образца $PIN-PMN-PT$ (после естественного старения): $\times 1000$ (а); $\times 4000$ (б).

Температурная зависимость переключаемой поляризации для кристалла $PIN-PMN-PT$ (см. рис. 3) существенно отличается от известных для классических сегнетоэлектриков [9]. С целью дополнительной интерпретации результатов исследования проведена электронно-микроскопическая визуализация структуры образца. Рис. 5 иллюстрирует изображения поверхности, полученные с помощью РЭМ на свежем сколе образца $PIN-PMN-PT$, подвергнутого травлению в течение 5 секунд. Композиционный контраст, формируемый отраженными электронами в РЭМ, не выявил дополнительные фазовые включения. Для определения качественного и количественного элементного состава образца был проведен энергодисперсионный рентгеновский микроанализ. Установлено, что матрица образца представлена химическими элементами, основной массовый процент которых составляют кислород и свинец.

На рис. 6 представлено РЭМ-изображение скола исследуемого нами образца $PIN-PMN-PT$, подвергнутого естественному старению в течение 5 лет. Известно, что процессы старения могут сопровождаться изменением

механических и физических свойств твёрдых растворов. Старение может быть обусловлено напряжениями в материале, наличием дефектов, температурными градиентами. Установлено, что структура поверхности образца претерпела изменения в ходе естественного старения, которое, очевидно, сопровождалось процессом рекристаллизации (см. рис. 6). Результаты количественного химического анализа образца *PIN-PMN-PT* демонстрируют полное соответствие формуле твердого раствора (см. рис. 7, Таблицу 3). Таким образом, можно сделать вывод, что трансформация микроструктуры поверхности, обусловленная процессом естественного старения, не сопровождается изменением химического состава образца *PIN-PMN-PT*.

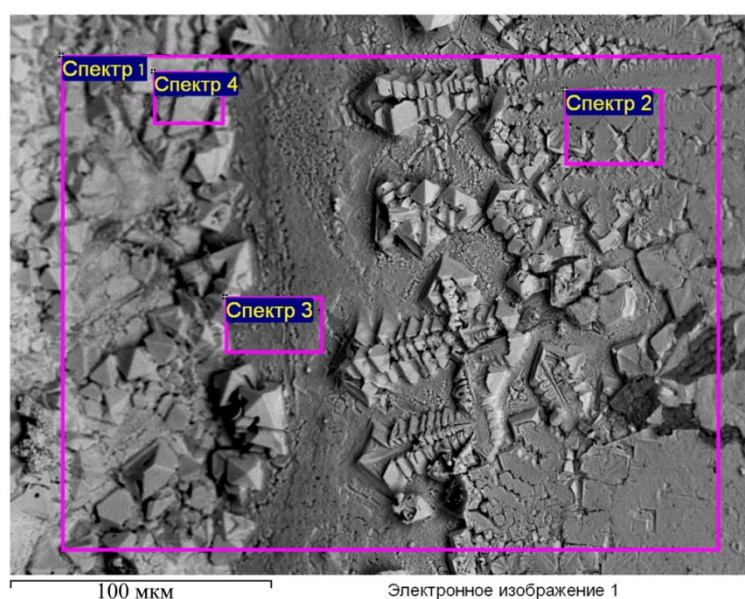


Рис. 7. РЭМ-изображение структуры скола образца *PIN-PMN-PT* (после естественного старения), на котором представлены участки регистрации спектров энергодисперсионного микроанализа (Таблица 3).

Таблица 3. Количественный элементный анализ скола образца *PIN-PMN-PT*.

Спектр	Относительное содержание компонентов, ат.%					
	<i>O</i>	<i>Mg</i>	<i>Ti</i>	<i>Nb</i>	<i>In</i>	<i>Pb</i>
Спектр 1	88,07	0,55	0,49	0,60	0,22	10,07
Спектр 2	89,82	–	0,23	0,22	0,16	9,57
Спектр 3	88,53	0,45	0,73	0,80	0,22	9,29
Спектр 4	86,65	0,24	0,50	0,26	0,06	12,28

4. Заключение

Показано, что первичное нагревание кристалла *PIN-PMN-PT* от 293 К до 423 К сопровождается монотонным ростом величины диэлектрической проницаемости в интервале $(1-5,5) \cdot 10^3$. В области фазового перехода из ромбоэдрической фазы в тетрагональную значения ϵ практически не изменяются в диапазоне температур 360-410 К.

При значении $T = 293$ К и напряженностях поля $E = (140-271) \cdot 10^3$ В·м⁻¹ происходит лишь частичное переключение кристалла. Переполяризующее поле $271 \cdot 10^3$ В·м⁻¹ позволяет получить насыщенные петли диэлектрического гистерезиса для кристаллов *PIN – PMN – PT* в двух интервалах температур 373-383 К и 437-440 К.

Температурные зависимости диэлектрической проницаемости и переключаемой поляризации имеют две аномалии, первые из которых соответствуют области фазового перехода кристалла из сегнетоэлектрической ромбоэдрической фазы в тетрагональную. Сопоставление кривых $\varepsilon(T)$ и $P(T)$ показывает, что при температуре порядка 450 К кристалл переходит в параэлектрическое состояние.

Электронно-микроскопические исследования структуры кристаллов *PIN – PMN – PT* показывают, что в процессе естественного старения происходит изменение микроструктуры образца, обусловленное процессами рекристаллизации. По-видимому, это влияет на особенности процессов переключения кристалла в различных температурных интервалах. Результаты энергодисперсионного анализа образца до и после старения соответствуют формуле исходного твёрдого раствора.

Исследования выполнены на оборудовании Центра коллективного пользования научной аппаратурой и оборудованием Тверского государственного университета.

Библиографический список:

1. **He, C.** Optical properties of PT-based relaxor ferroelectric crystals / C. He, Y. Wen, Y. Wen et al. // *Crystal Research and Technology*. – 2023. – V. 58. – I. 6. – Art. № 2200197. DOI: 10.1002/crat.202200197.
2. **Song, K.** Composition and electrical properties characterization of a 5” diameter PIN-PMN-PT single crystal by the modified Bridgman method / K. Song, Q. Li, H. Guo, et al. // *Journal of Alloys and Compounds*. – 2021. – V. 851. – Art. № 156145. – 24 p. DOI: 10.1016/j.jallcom.2020.156145.
3. **Echizenya, K.** PMN-PT and PIN-PMN-PT single crystals grown by continuous-feeding Bridgman method / K. Echizenya, K. Nakamura, K. Mizuno // *Journal of Crystal Growth*. – 2020. – V. 531. – Art № 125364. – 5 p. DOI: 10.1016/j.jcrysgro.2019.125364.
4. **Zhou, Y.** Domain switching and polarization fatigue in rhombohedral PIN-PMN-PT and Mn-doped PIN-PMN-PT single crystals / Y. Zhou, Q. Li, F. Zhuo et al. // *Journal of the American Ceramic Society*. – 2019. – V. 102. – I. 11. – P. 6668-6679. DOI: 10.1111/jace.16461.
5. **Ma, M.** Enhanced transverse piezoelectric properties by composition and poling electric field induced phase transition in PIN-PMN-PT single crystal near morphotropic phase boundary / M. Ma, S. Xia, K. Song, et al. // *Journal of Applied Physics*. – 2021. – V. 130. – I. 6. – Art. № 064101. DOI: 10.1063/5.0055416.
6. **Камзина, Л.С.** Трансформация физических свойств кристаллов $PbIn_{1/2}Nb_{1/2}O_3$ - $PbMg_{1/3}Nb_{2/3}O_3$ - $PbTiO_3$ в электрическом поле / Л.С. Камзина, Л.А. Кулакова // *Физика твёрдого тела*. – 2015. – Т. 57. – Вып. 11. – С. 2164-2170.
7. **Лайнс, М.** Сегнетоэлектрики и родственные им материалы / М. Лайнс, А. Гласс; пер. с англ. под ред. В. В. Леманова, Г. А. Смоленского. – М.: Мир, 1981. – 736 с.
8. **Яффе, Б.** Пьезоэлектрическая керамика / Б. Яффе, У. Кук, Г. Яффе; пер. с англ. под ред. Л.А. Шувалова. – М.: Мир. 1974. – 288 с.
9. **Камзина, Л.С.** Оптические и акустические свойства монокристаллов $33PbIn_{1/2}Nb_{1/2}O_3$ - $35PbMg_{1/3}Nb_{2/3}O_3$ - $32PbTiO_3$ в электрическом поле / Л.С. Камзина, Л.А. Кулакова, Н. Luo // *Физика твёрдого тела*. – 2014. – Т. 56. – Вып. 9. – С. 1809-1815.
10. **Wan, Y.** Temperature and DC bias dependence of the phase transition behavior of [011]- and [001]-oriented PIN-PMN-PT single crystals with MPB composition / Y. Wan, Z. Li, M. Ma et al. // *Journal of Materials*

- Research. – 2018. – V. 33. – I. 23. – P. 4053-4061. DOI: 10.1557/jmr.2018.341.
11. **Wan, Y.** Temperature and DC bias dependences of dielectric behavior of different oriented 0.23PIN-0.52PMN-0.25PT single crystals / Y. Wan, Z. Li, M. Ma et al. // *Journal of Electronic Materials*. – 2018. – V. 47. – I. 7. – P. 6282-6288. DOI: 10.1007/s11664-018-6401-8.
12. **Камзина, Л.С.** Эволюция диэлектрических и оптических свойств в монокристаллах $\text{PbIn}_{1/2}\text{Nb}_{1/2}\text{O}_3$ - $\text{PbMg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3$ - PbTiO_3 в электрическом поле / Л.С. Камзина, Н. Luo // *Физика твёрдого тела*. – 2013. – Т. 55. – Вып. 10. – С. 1956-1961.
13. **Богомолов, А.А.** Физика сегнетоэлектрических явлений / А.А. Богомолов, В.В. Иванов. – Тверь. ТвГУ, 2014. – 160 с.
14. **Иванова, А.И.** Температурные наблюдения эволюции доменной структуры триглицинсульфата методами РЭМ / А.И. Иванова, Р.М. Гречишкин, Н.Н. Большакова, В.А. Беляков // *Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования*. – 2015. – № 9. – С. 49-53. DOI: 10.7868/S0207352815090073.
15. **Большакова Н.Н.** Термоиндуцированные процессы переключения монокристаллов PIN-PMN-PT / Н.Н. Большакова, В.В. Иванов, А.И. Иванова и др. // *Физико-химические аспекты изучения кластеров, наноструктур и наноматериалов*. – 2017. – Вып. 9. – С. 114-120. DOI: 10.26456/pcascnn/2017.9.114.
16. **Yang, Y.** Scaling relations of domain reversal dynamics in rhombohedral and tetragonal PIN-PMN-PT ferroelectric single crystals / Y. Yang, E. Sun, H. Zheng et al. // *Applied Physics Letters*. – 2021. – V. 119. – I. 18. – Art. № 182902. DOI: 10.1063/5.0067955.

References:

1. He C., Wen Y., Wen Y. et al. Optical properties of PT-based relaxor ferroelectric crystals, *Crystal Research and Technology*, 2023, vol. 58, issue 6, art. no. 2200197. DOI: 10.1002/crat.202200197.
2. Song K., Li Q., Guo H. et al. Composition and electrical properties characterization of a 5" diameter PIN-PMN-PT single crystal by the modified Bridgman method, *Journal of Alloys and Compounds*, 2021, vol. 851, art. no. 156145. 24 p. DOI: 10.1016/j.jallcom.2020.156145.
3. Echizenya K., Nakamura K., Mizuno K. PMN-PT and PIN-PMN-PT single crystals grown by continuous-feeding Bridgman method, *Journal of Crystal Growth*, 2020, vol. 531, art. no. 125364, 5 p. DOI: 10.1016/j.jcrysgro.2019.125364.
4. Zhou Y., Li Q., Zhuo F. et al. Domain switching and polarization fatigue in rhombohedral PIN-PMN-PT and Mn-doped PIN-PMN-PT single crystals, *Journal of the American Ceramic Society*, 2019, vol. 102, issue 11, pp. 6668-6679. DOI: 10.1111/jace.16461.
5. Ma M., Xia S., Song K. et al. Enhanced transverse piezoelectric properties by composition and poling electric field induced phase transition in PIN-PMN-PT single crystal near morphotropic phase boundary, *Journal of Applied Physics*, 2021, vol. 130, issue 6, art. no. 064101. DOI: 10.1063/5.0055416.
6. Kamzina L.S., Kulakova L.A. Transformation of the physical properties of $\text{PbIn}_{1/2}\text{Nb}_{1/2}\text{O}_3$ - $\text{PbMg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3$ - PbTiO_3 crystals in an electric field, *Physics of the Solid State*, 2015, vol. 57, issue 11, pp. 2227-2234. DOI: 10.1134/S1063783415110177.
7. Lines M.E., Glass A.M. *Principles and applications of ferroelectrics and related Materials*, Oxford, Oxford University Press, 2001, XIII, 680 p.
8. Jaffe B., Cook W.R., Jaffe H. *Piezoelectric ceramics*, London, New York, Academic Press, 1971. DOI: 10.1016/B978-0-12-379550-2.X5001-7.
9. Kamzina L.S., Kulakova L.A., Luo H. Optical and acoustic properties of $33\text{PbIn}_{1/2}\text{Nb}_{1/2}\text{O}_3$ - $35\text{PbMg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3$ - 32PbTiO_3 single crystals in an electric field, *Physics of the Solid State*, 2014, vol. 56, issue 9, p. 1872-1879. DOI: 10.1134/S1063783414090157.
10. Wan Y., Li Z., Ma M. et al. Temperature and DC bias dependence of the phase transition behavior of [011]- and [001]-oriented PIN-PMN-PT single crystals with MPB composition, *Journal of Materials Research*, 2018, vol. 33, issue 23, pp. 4053-4061. DOI: 10.1557/jmr.2018.341.
11. Wan Y., Li Z., Ma M. et al. Temperature and DC bias dependences of dielectric behavior of different oriented 0.23PIN-0.52PMN-0.25PT single crystals, *Journal of Electronic Materials*, 2018, vol. 47, issue 7, pp. 6282-6288. DOI: 10.1007/s11664-018-6401-8.
12. Kamzina L.S., Luo H. Evolution of dielectric and optical properties in $\text{PbIn}_{1/2}\text{Nb}_{1/2}\text{O}_3$ - $\text{PbMg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3$ - PbTiO_3 single crystals in an electric field, *Physics of the Solid State*, 2013, vol. 55, issue 10, pp. 2071-2075. DOI: 10.1134/S1063783413100132.
13. Bogomolov A.A., Ivanov V.V. *Fizika segnetoelektricheskikh yavlenij* [Physics of ferroelectric phenomena], Tver, TSU Publ., 2014, 160 p. (In Russian).
14. Ivanova A.I., Grechishkin R.M., Bolshakova N.N., Belyakov V.A. Temperature observation of the evolution

of the domain structure of triglycine sulphate by SEM, *Journal of Surface Investigation. X-ray, Synchrotron and Neutron Techniques*, 2015, vol. 9, issue 5, p. 908-912. DOI: 10.1134/S1027451015050079.

15. Bolshakova N.N., Ivanov V.V., Ivanova A.I. et al. Termindutsirovannyye protsessy pereklyucheniya monokristallov PIN-PMN-PT [Thermally induced switching in PIN-PMN-PT single crystals], *Fiziko-khimicheskie aspekty izucheniya klasterov, nanostruktur i nanomaterialov [Physical and chemical aspects of the study of clusters, nanostructures and nanomaterials]*, 2017, issue 9, pp. 114-120. DOI: 10.26456/pcascnn/2017.9.114.

16. Yang Y., Sun E., Zheng H. et al. Scaling relations of domain reversal dynamics in rhombohedral and tetragonal PIN-PMN-PT ferroelectric single crystals, *Applied Physics Letters*, 2021, vol. 119, issue 18, art. no. 182902. DOI: 10.1063/5.0067955.

Original paper

HYSTERESIS PROPERTIES OF PIN-PMN-PT SINGLE-CRYSTAL SOLID SOLUTIONS

N.N. Bolshakova¹, N.Yu. Druginina², A.I. Ivanova¹, D.A. Ivanov¹, E.M. Semenova¹

¹Tver State University, Tver, Russia

²Military Academy of Air and Space Defense named after Marshal of the Soviet Union G.K. Zhukov, Tver, Russia

DOI: 10.26456/pcascnn/2023.15.064

Abstract: The paper presents the results of a study of hysteresis properties based on analysis of dielectric hysteresis loops and temperature dependences of switchable polarization for solid solutions 24% $Pb(In_{1/2}Nb_{1/2})O_3$ – 49% $Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3$ – 27% $PbTiO_3$ solutions. It follows from the experiment that at $T = 293$ K and strengths of the repolarizing field $E = (140-301) \cdot 10^3$ V·m⁻¹, only partial switching of the crystal occurs. Saturated dielectric hysteresis loops of crystals are observed in a field of $271 \cdot 10^3$ V·m⁻¹ in two temperature ranges 373-383 K and 437-440 K. The temperature dependences of the permittivity and switchable polarization have two anomalies, the first of which correspond to the region of the phase transition of the crystal from the ferroelectric rhombohedral phase to the tetragonal one. At a temperature of about 450 K, the crystal passes into the paraelectric state. Electron microscopic studies of the PIN-PMN-PT crystal structure show that various surface areas contain inhomogeneities that differ in the compositional contrast from the matrix represented by chemical elements, the main mass percentage of which is oxygen and lead. The elemental composition of heterogeneities also includes titanium.

Keywords: single crystal solid solution, hysteresis, switching processes, permittivity, phase transition.

Большакова Наталья Николаевна – к.ф.-м.н., доцент, доцент кафедры физики конденсированного состояния ФГБОУ ВО «Тверской государственный университет»

Дружинина Наталья Юрьевна – к.ф.-м.н., доцент кафедры основ построения радиоэлектронных средств и систем ФГКВУ ВО «Военная академия воздушно-космическая обороны им. Маршала Советского Союза Г.К. Жукова» Минобороны РФ

Иванова Александра Ивановна – к.ф.-м.н., доцент, доцент кафедры прикладной физики, ФГБОУ ВО «Тверской государственный университет»

Иванов Данила Алексеевич – студент I курса магистратуры, физико-технический факультет, ФГБОУ ВО «Тверской государственный университет»

Семенова Елена Михайловна – к.ф.-м.н., доцент кафедры физики конденсированного состояния, ФГБОУ ВО «Тверской государственный университет»

Nataly N. Bolshakova – Ph. D., Docent, Condensed Matter Physics Department, Tver State University

Nataly Yu. Druginina – Ph. D., Docent, Military Academy of Air and Space Defense named after Marshal of the Soviet Union G. K. Zhukov

Alexandra I. Ivanova – Ph. D., Docent, Applied Physics Department, Tver State University

Danila A. Ivanov – 1th year graduate student, Faculty of Physics and Technology, Tver State University

Elena M. Semenova – Ph. D., Docent, Condensed Matter Physics Department, Tver State University

Поступила в редакцию/received: 05.09.2023; после рецензирования/revised: 01.10.2023; принята/accepted: 04.10.2023.