

## МОДЕЛИРОВАНИЕ ДИЭЛЕКТРИЧЕСКОГО ОТКЛИКА ПЬЕЗОЭЛЕКТРИЧЕСКОЙ КЕРАМИКИ

Н.Е. Малышева<sup>1</sup>, Е.В. Дьякова<sup>2</sup>, О.В. Малышкина<sup>2</sup>

<sup>1</sup>ФГКВОУ ВО «Военная академия воздушно-космической обороны им. Маршала  
Советского Союза Г.К. Жукова» Минобороны РФ  
170022, Россия, Тверь, ул. Жигарева, 50

<sup>2</sup>ФГБОУ ВО «Тверской государственный университет»  
170100, Россия, Тверь, ул. Желябова, 33  
Olga.Malyshkina@mail.ru

DOI: 10.26456/pcascnn/2023.15.481

**Аннотация:** Авторами проведен сравнительный анализ комплексной диэлектрической проницаемости пористой (10 объемных % пор) керамики ниобата натрия–лития с результатами компьютерного моделирования. Для расчета за основу бралась формула Коул–Коула, в которой учитывалось наличие различных механизмов релаксационных процессов в низкочастотной (линейная дисперсия) и среднечастотной области, для учета смешанной поляризации добавлялась дополнительное слагаемое из формулы Дебая, поляризации резонансного типа – слагаемое учитывающее фактор затухания. Моделирование осуществлялось с учетом проводимости и без. Для учета вклада проводимости в динамический диэлектрический отклик использовалось выражение  $\sigma^* = (\varepsilon'' + i\varepsilon')\varepsilon_0\omega$ . Показано, что линейный участок частотной зависимости в диапазоне от 50 Гц до 1 МГц одинаково хорошо описывается как с учетом проводимости, так и без. В тоже время поведение диэлектрического отклика пьезоэлектрической керамики в высокочастотной области, в которой наблюдаются резонансные эффекты, и низкочастотной области, где преобладает миграционная поляризация, значительно лучше описывается с учетом вклада проводимости в диэлектрический отклик системы.  
*Ключевые слова:* пьезоэлектрическая керамика, комплексная диэлектрическая проницаемость, комплексная проводимость, диэлектрическая спектроскопия.

### 1. Введение

Диэлектрический отклик системы на внешнее воздействие, под которым в первую очередь понимают переменное электрическое поле, зависит как от макроскопических параметров, так и от внутренней микроструктуры материала. В случае сегнетоэлектрической керамики это в первую очередь границы зерен, и различные внутренние дефекты, возникающие либо случайным образом в процессе спекания образцов, либо вводимые намерено – как в случае получения пористой керамики.

Наличие внутренних микро- и нано- структурных дефектов приводит в ряде случаев к аномальному поведению диэлектрического отклика в частотном диапазоне от 1 Гц до 30 МГц, не вписывающегося в классическое описание диэлектрических спектров [1]. Это, в первую очередь дисперсия резонансного типа, сопровождающаяся появлением в эксперименте отрицательной емкости. Возникновение в измерениях отрицательной емкости в последние годы перестало восприниматься как парадокс, и достаточно широко обсуждается в литературе [1-7]. Здесь

необходимо иметь в виду, что современные установки по измерению диэлектрических спектров в сравнительно низкочастотной области (до 30 МГц) измеряют амплитуду и фазу сигнала (т.е. импеданс в комплексной форме), по которому программно рассчитываются основные диэлектрические параметры, считываемые на выходе прибора. В такой схеме измерения, в случае, когда в реактивной составляющей сопротивления преобладает индуктивность, емкость фиксируется как отрицательная величина. Простейшая физическая интерпретация отрицательной емкости состоит в том, что поляризация находится в противофазе с управляющим электрическим полем [1]. Поскольку расчет действительной части комплексной диэлектрической проницаемости осуществляется по формуле плоского конденсатора, мы по факту имеем отрицательную диэлектрическую проницаемость. Её смысл в данной ситуации – наличие резонансных процессов в диэлектрическом отклике [1-3].

Если резонансные процессы в диэлектрическом отклике, подробно рассматриваемые в [1-3], авторы связывает с упругой ионной поляризацией, имеющей место на оптических частотах, то процессы, приводящие к отрицательной ёмкости обусловленные временной задержкой в протекании тока, авторы [5, 6] объясняют захватом носителей заряда на ловушках различной природы и наличием механизма проводимости аналогичного барьеру Шоттки. Протекание этих процессов осуществляется на значительно более низких частотах.

## **2. Постановка задачи**

При обсуждении отрицательной емкости в литературе в первую очередь отмечают присутствие токов проводимости, наличие временной задержки в их протекании и возрастающую зависимость ток – время [4-6]. В связи с этим представляет интерес провести моделирование диэлектрического отклика пьезоэлектрической керамики в частотном диапазоне, соответствующем имеющимся экспериментальным данным [8] по дисперсии комплексной диэлектрической проницаемости и проводимости пористой керамики ниобата натрия–лития.

Керамика на основе ниобата натрия выбрана потому, что этот материал имеет большое количество фазовых переходов в температурном интервале 350-640°C [9]. При этом замена натрия литием (до 12%) существенно изменяет группу симметрии ниобата натрия [10] и влияет на протекание релаксационных процессов в области структурных фазовых переходов [11]. Присутствие в образце пор приводит к возникновению дополнительного релаксационного процесса [8, 12]. Не смотря на то, что система ниобата натрия и изучается достаточно давно, работы по

исследованию релаксационных процессов этих материалов, особенно на высоких температурах, в литературе практически отсутствуют.

Целью настоящей работы являлось проведение сравнительного анализа комплексной диэлектрической проницаемости пористой (10 объемных % пор) керамики ниобата натрия-лития  $Li_{0,1}Na_{0,9}NbO_3$  (LNN10), измеренной на фазочувствительном измерителе иммитанса «ВЕКТОР-175» [8], с результатами компьютерного моделирования.

### 3. Теория

При описании поведения диэлектриков в переменном электрическом поле для удобства математической обработки и физической интерпретации экспериментальных данных вводится понятие комплексной диэлектрической проницаемости:

$$\varepsilon^* = \varepsilon' - i\varepsilon'' , \quad (1)$$

где  $\varepsilon'$  – действительная часть комплексной диэлектрической проницаемости (суть – относительная диэлектрическая проницаемость),  $\varepsilon'' = \operatorname{tg}\delta \cdot \varepsilon'$  – ее мнимая часть,  $\operatorname{tg}\delta$  – тангенс угла диэлектрических потерь.

Для получения более полной информации о поведении диэлектрика в переменном поле исследуют зависимости  $\varepsilon''$  и  $\varepsilon'$  в определенном интервале частот и температур. Зависимость от частоты  $f$  электрического поля ( $\omega = 2\pi f$ ) комплексной диэлектрической проницаемости  $\varepsilon^*(\omega)$  называется дисперсией. Динамику молекул обычно связывают со временем релаксации. Время релаксации  $\tau$  впервые было введено в качестве параметра в релаксационную теорию Дебая [13]. Данный параметр в общем случае характеризует процесс самопроизвольного перехода неравновесной макроскопической системы в состояние термодинамического равновесия. Время релаксации зависит от температуры  $T$  и потенциала межмолекулярного взаимодействия:

$$\tau = \tau_o \exp\left(\frac{U}{kT}\right). \quad (2)$$

Здесь  $U$  – потенциальный барьер, преодолеваемый заряженными частицами при тепловых прыжках,  $\tau_o$  – предэкспоненциальный множитель, связанный с частотой колебаний частиц,  $k$  – постоянная Больцмана.

Если диаграмма дисперсии имеет вид полуокружности (центр окружности лежит на оси  $Ox$ ), то релаксационный процесс характеризуется одним временем релаксации, если имеют место две полуокружности – двумя временами релаксации, если дуга окружности (центр которой лежит ниже оси  $Ox$ ), то говорят о наличии спектра времен релаксации [2] и рассчитывают наиболее вероятное время релаксации.

Оно определяется непосредственно из эксперимента и, в общем случае, соответствует частоте, при которой достигается максимум диэлектрических потерь в зависимости  $\varepsilon''(\omega)$ . Обратное время релаксации  $1/\tau = \omega$  характеризует скорость установления поляризации за время действия поля.

Наиболее оправдано использование термина релаксация при описании динамики молекулярных процессов как скорость установления равновесного состояния после снятия внешнего воздействия. Именно такой смысл вкладывается в параметр релаксации, входящий в уравнение релаксационной теории Дебая:

$$\varepsilon^*(\omega) = \varepsilon(\infty) + \frac{\varepsilon(0) - \varepsilon(\infty)}{1 + i\omega\tau}, \quad (3)$$

где  $\varepsilon(0)$  и  $\varepsilon(\infty)$  – диэлектрическая проницаемость соответственно на нулевой и бесконечной частотах.

Диэлектрический отклик, описываемый функцией Дебая, характерен для упорядоченных систем. На практике чаще встречаются разупорядоченные системы, к которым относятся и твердые растворы. Учет спектра времен релаксации осуществляется в теории Коула–Коула [14], которая предполагает существование в диэлектрической среде не одного фиксируемого времени релаксации, а некоей функции распределения, симметричной относительно наиболее вероятного времени релаксации  $\tau_\varepsilon$ :

$$\varepsilon^*(\omega) - \varepsilon(\infty) = \frac{\varepsilon(0) - \varepsilon(\infty)}{1 + (i\omega\tau_\varepsilon)^{1-\lambda}}, \quad (4)$$

где  $\lambda = 2\psi / \pi$  – ширина спектра времен релаксации,  $\psi$  – угол раствора диаграммы.

Для экспериментально определяемых диаграмм типа линейной дисперсии была предложена методика, позволяющая определить хотя бы один параметр диэлектрической среды (например, эффективное значение постоянной времени релаксационных процессов), который в дальнейшем рассматривается как объективная количественная мера диэлектрического отклика [2, 15, 16]. Предметом анализа в данном подходе остается лишь высокочастотная область дисперсии. Суть приема состоит в переходе к величинам электрического модуля  $\beta^*$ , обратным компонентам комплексной диэлектрической проницаемости:

$$\beta^* = \frac{1}{\varepsilon^*} = \beta' + i\beta'' . \quad (5)$$

С учетом (5), имеем формальное подобие соотношению Коула-Коула для спектра времен релаксации, что позволяет количественно определить постоянную времени  $\tau_\beta$  и делать предположение о ее физическом

механизме:

$$\beta^*(\omega) = \beta_\infty - \frac{\beta_\infty}{1 + (i\omega\tau_\beta)^{1-\lambda}}. \quad (6)$$

Таким образом, релаксационная составляющая диэлектрического отклика, с учетом (3), (4) и (6) может быть описана следующим уравнением:

$$\varepsilon^* = \varepsilon(\infty) + (\varepsilon(0) - \varepsilon(\infty)) \left( \frac{1}{1 + (i\omega\tau_\beta)^{1-\lambda}} + \frac{1}{1 + (i\omega\tau_{\varepsilon_1})^{1-\lambda}} + \frac{1}{1 + i\omega\tau_{\varepsilon_2}} \right). \quad (7)$$

Кроме релаксационной поляризации различают поляризацию резонансного типа [1-3], когда на частотной зависимости действительной части комплексной диэлектрической проницаемости присутствует резонансный (антирезонансный) пик. Поляризация резонансного типа в первую очередь характеризуется отрицательной производной от действительной части комплексной диэлектрической проницаемости по частоте ( $d\varepsilon'(\omega)/d\omega < 0$ ). Её описывают уравнением гармонического осциллятора, где диэлектрические потери учитываются введением коэффициента затухания ( $\Gamma$ ) [3]:

$$\varepsilon^*(\omega) = \varepsilon(\infty) + \frac{\varepsilon(0) - \varepsilon(\infty)}{1 - (\omega/\omega_0)^2 + i\Gamma(\omega/\omega_0)}. \quad (8)$$

Таким образом, для расчета полного диэлектрического спектра, с учетом всех, описанных выше, механизмов имеем:

$$\varepsilon^* = \varepsilon(\infty) + (\varepsilon(0) - \varepsilon(\infty)) \left( \frac{1}{1 + (i\omega\tau_\beta)^{1-\lambda}} + \frac{1}{1 + (i\omega\tau_{\varepsilon_1})^{1-\lambda}} + \frac{1}{1 + i\omega\tau_{\varepsilon_2}} + \frac{1}{1 + \left(\frac{\omega}{\omega_0}\right)^2 + i\Gamma\frac{\omega}{\omega_0}} \right). \quad (9)$$

Необходимо отметить, что если величина  $\varepsilon''(\omega)$  всегда выше нуля, то  $\varepsilon'(\omega)$  может быть как положительной, так и отрицательной [3]. В экспериментах, в которых проявляется отрицательная ёмкость (соответствующая отрицательной действительной части комплексной диэлектрической проницаемости), всегда присутствует максимум на частотной зависимости мнимой части и антирезонансный пик на частотной зависимости действительной части комплексной диэлектрической проницаемости. При обсуждении отрицательной емкости в литературе в первую очередь отмечают присутствие токов проводимости [4].

Для учета комплексной проводимости ( $\sigma^*$ ) при расчете комплексной диэлектрической поляризации в формулу (9) были добавлены слагаемые, характеризующие вклад проводимости в диэлектрический отклик.

Согласно [1] релаксационную комплексную проводимость можно

выразить через комплексную диэлектрическую проницаемость следующим образом:

$$\sigma^* = (\varepsilon'' + i\varepsilon')\varepsilon_0\omega = i\omega\varepsilon_0 \frac{1 - i\omega\tau_\sigma}{1 + (\omega\tau_\sigma)^2}. \quad (10)$$

В области низких частот и на частотах, соответствующих резонансной проводимости, необходимо учитывать дополнительную составляющую проводимости [1]:

$$\sigma^* = iB\omega^s, \quad (11)$$

где  $B$  – постоянная, определяющая частотно независимую составляющую проводимости,  $s$  – параметр, характеризующий угол наклона прямолинейных участков на частотной зависимости действительной части комплексной проводимости. Значение  $0 \leq s \leq 1$  [2] обычно свидетельствует о прыжковом механизме электронного переноса. Значение  $s > 1$  свидетельствует о резком росте диэлектрических потерь.

При компьютерном моделировании, в качестве начальных параметров, использовались времена релаксации ( $\tau_\beta, \tau_{\varepsilon_1}, \tau_{\varepsilon_2}, \tau_\sigma$ ), значения коэффициента затухания  $\Gamma$ , ширины спектра  $\lambda$ , параметры  $B$  и  $s$ , а также  $\varepsilon(0)$ ,  $\varepsilon(\infty)$  и  $\sigma(\infty)$ , рассчитанные по диаграммам дисперсии, полученных автором [8] в эксперименте.

#### **4. Нахождение параметров дисперсии по экспериментальным данным**

Частотные зависимости комплексной диэлектрической проницаемости (см. рис. 1 а, б) пористой керамики LNN10 снимались в широком температурном интервале (30 – 500°C). Для анализа релаксационных процессов были построены диаграмм дисперсионных зависимостей  $\varepsilon''(\varepsilon')$  (см. рис. 1 в). Для всех температур выделяется две области: нелинейной и линейной дисперсии. В температурном интервале до 170°C в области нелинейной дисперсии наблюдаются две дуги. Присутствие на диаграмме дисперсии комплексной диэлектрической проницаемости окружности, свидетельствует о присутствии в материале в данном частотном диапазоне дисперсии резонансного типа, которая, согласно [2, 3], соответствует частотному участку резонанса – антирезонанса (см. рис. 2). Для анализа линейной дисперсии в низкочастотной области, применялся прием диэлектрического модуля (см. формулу (5)) и построены диаграммы  $\beta''(\beta')$  (см. рис. 1 г).

При низких температурах на зависимостях наблюдается разброс, обусловленный разбросом значений диэлектрической проницаемости (см. рис. 1 а), а выше 170°C, когда флуктуации диэлектрической проницаемости исчезают, диаграммы  $\beta''(\beta')$  имеют вид дуги окружности.

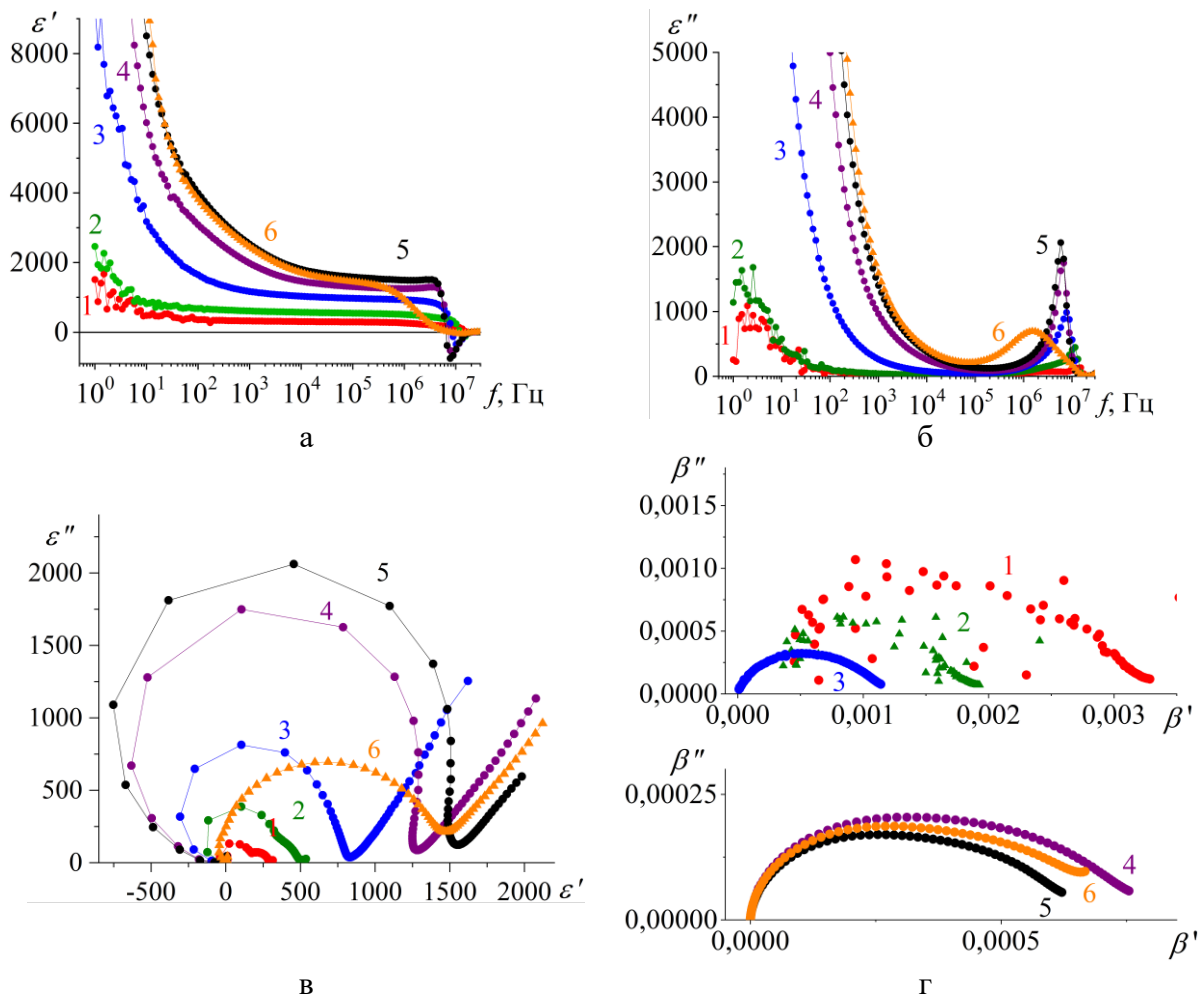


Рис. 1. Частотные зависимости действительной (а) и мнимой (б) частей диэлектрической проницаемости и диаграммы дисперсии  $\varepsilon''(\varepsilon')$  (в) и  $\beta''(\beta')$  (г) образца LNN10. Кривые 1 – 30, 2 – 170, 3 – 270, 4 – 400, 5 – 430 и 6 – 450°C.

Наиболее вероятное время релаксации рассчитывалось по формуле [1-4]:

$$\tau = \frac{1}{\omega} = \frac{1}{2\pi f}. \quad (12)$$

Положение  $\omega\tau=1$  на диаграммах  $\varepsilon''(\varepsilon')$  (или  $\beta''(\beta')$ ), по которому находилась частота для расчета, для разных типов релаксационных процессов показано стрелками на рис. 2 а [2].

В случае «классической» дисперсии, диаграмма которой имеет вид дуги окружности для точного нахождения верхней точки дуги использовалось графическое решение – графики были дополненные окружностями (см. рис. 2 б). Данное построение позволяет также рассчитать на основе экспериментальных данных ширину спектра  $\lambda$  и значения  $\varepsilon(0)$  и  $\varepsilon(\infty)$ . Радиус окружности составляет с осью  $\varepsilon'$  угол  $\psi$  [1, 3]:

$$\psi = \arccos \frac{a}{2R}, \quad (13)$$

откуда имеем для  $\lambda$ :

$$\lambda = \psi \frac{2}{\pi}, \quad (14)$$

Пересечение окружности с осью  $\varepsilon'$  дает значения  $\varepsilon(0)$  и  $\varepsilon(\infty)$ .

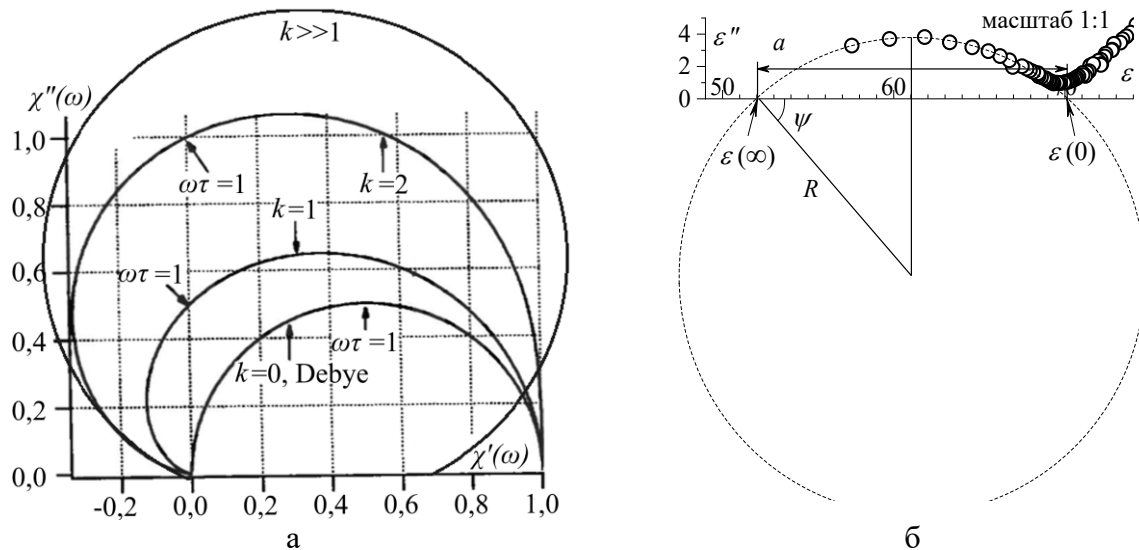


Рис. 2. Диаграммы дисперсии комплексной диэлектрической проницаемости согласно теории для разных типов дисперсии [2] (а) и графическое решение для нахождения наиболее вероятного времени релаксации (б).

Поскольку зависимость  $\beta''(\beta')$  (см. рис. 1 г) имела сильный разброс значений, то сначала были усреднены данные частотных зависимостей  $\beta'(f)$  (см. рис.3а) и  $\beta''(f)$  (см. рис. 3 б). Затем, по полученным данным, были построены диаграммы  $\langle\beta''\rangle(\langle\beta'\rangle)$ , которые были дополнены окружностями (см. рис. 3в). Радиус этой окружности с осью  $\beta'$  (см. рис. 3 в) составляет угол  $\psi = \frac{\pi}{2} - \phi$ . Пересечение окружности с осью  $\beta'$  дает значения  $\beta(0)$  и  $\beta(\infty)$ .

Параметры, характеризующие проводимость находились по частотным зависимостям действительной части комплексной проводимости [8] и диаграммам  $\sigma''(\sigma')$  (см. рис. 4 а, б). Если диаграммы дисперсии  $\varepsilon''(\varepsilon')$  и  $\beta''(\beta')$  в подавляющем большинстве диэлектрических материалов имеют вид дуги окружности, то диаграмма  $\sigma''(\sigma')$  представляет собой полуокружность, что упрощает графическое нахождение параметров  $\tau_\sigma$  и  $\sigma(\infty)$  (см. рис. 5 а).



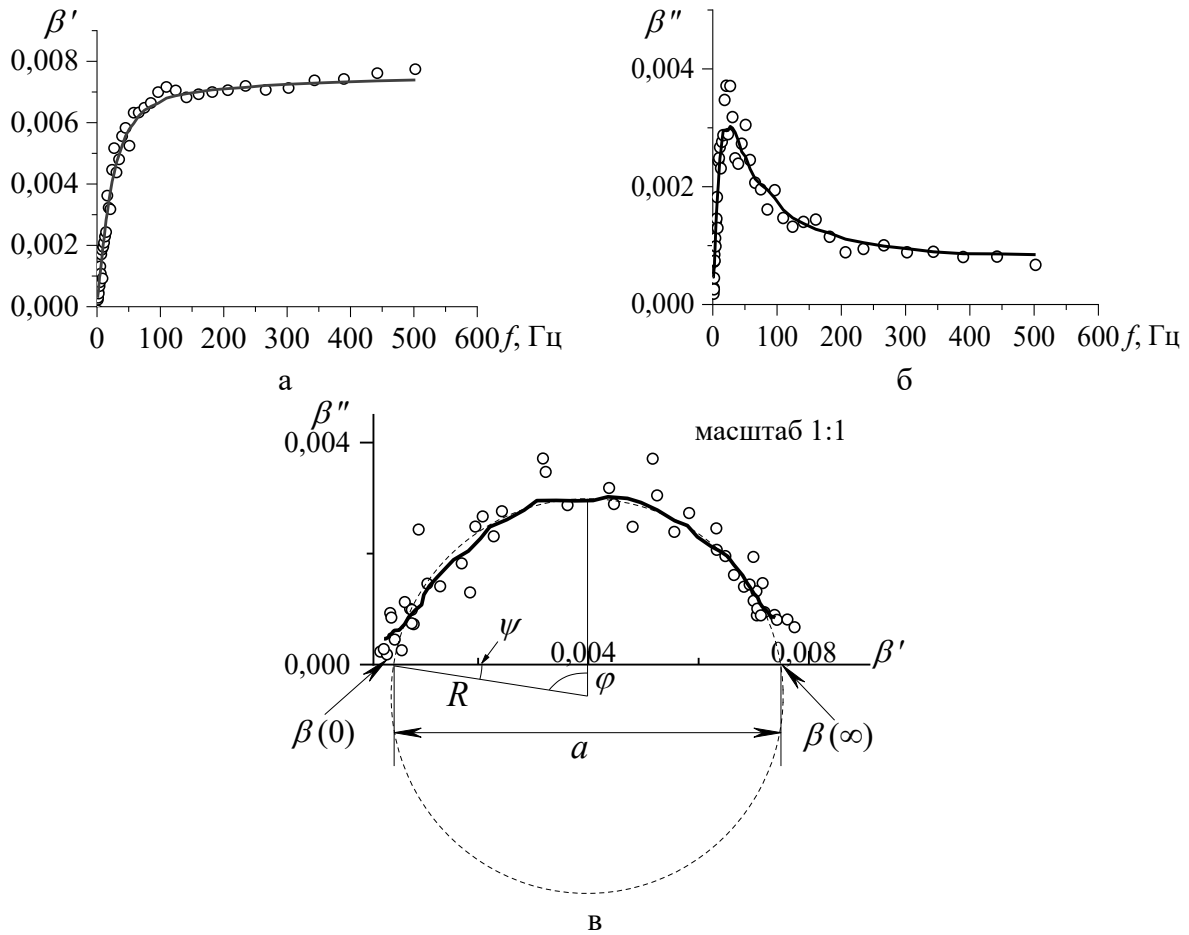


Рис. 3. Графическое решение для нахождения наиболее вероятного времени релаксации  $\tau_\beta$ . Точки – экспериментальные данные, сплошная линия – усредненные данные:  $\langle \beta' \rangle(f)$  (а);  $\langle \beta'' \rangle(f)$  (б);  $\langle \beta'' \rangle(\langle \beta' \rangle)$  (в).

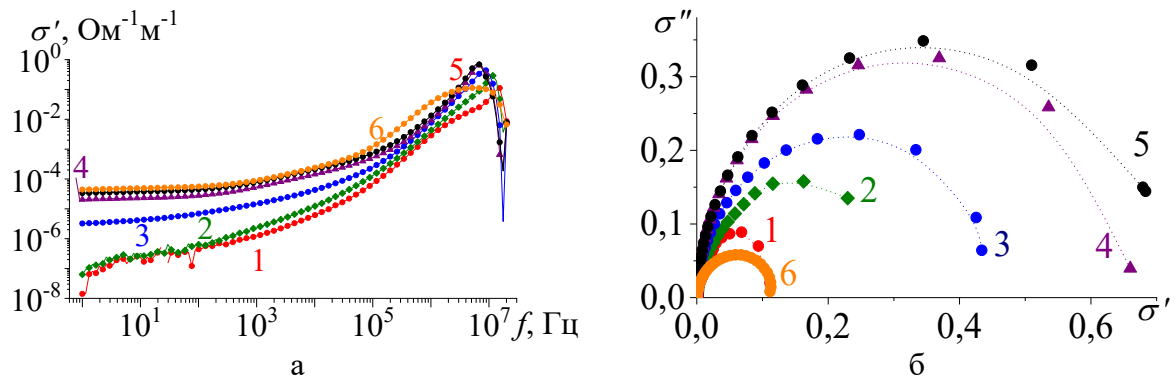


Рис. 4. Частотные зависимости действительной (а) части диэлектрической проницаемости и диаграммы дисперсии  $\sigma''(\sigma')$  (б) образца LNN10. Кривые 1 – 30, 2 – 170, 3 – 270, 4 – 400, 5 – 430 и 6 – 450°C.

Параметры  $B$  и  $s$  находим из графика  $\sigma'(\omega)$  в логарифмическом масштабе (см. рис. 5 б). Для этого низкочастотная часть графика аппроксимируется прямой (см. кривую 2 на рис. 5 б)  $y=B+s \cdot x$ . Для

пористой керамики LNN10 при 30°C  $y = -7,195 + 0,428x$ .

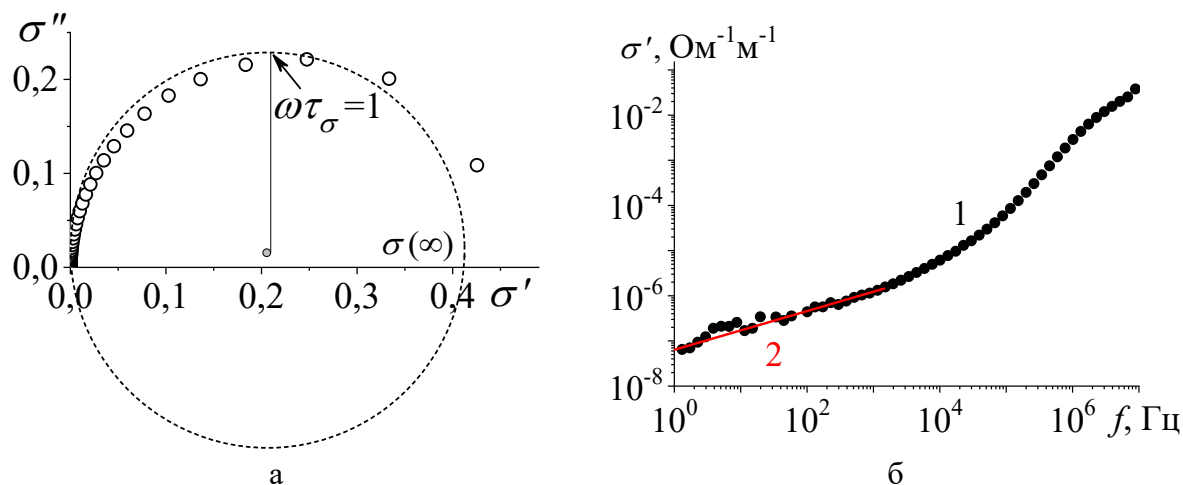


Рис. 5. Графическое решение для нахождения  $\sigma(\infty)$  и наиболее вероятного времени релаксации  $\tau_\sigma$  (а) и параметров  $B$  и  $S$  (б) (кривая 1 – эксперимент, 2 – аппроксимация).

Коэффициент затухания  $\Gamma$  находится по частоте минимума (см. рис. 1 а) на частотной зависимости действительной части комплексной диэлектрической проницаемости  $f_{\varepsilon'_{\min}}$  и по частоте максимума (см. рис. 4 а) на частотной зависимости действительной части комплексной проводимости  $f_{\sigma'_{\max}}$  по следующей формуле [3]:

$$\Gamma = \left( \frac{f_{\varepsilon'_{\min}}}{f_{\sigma'_{\max}}} \right)^2 - 1. \quad (15)$$

## 5. Сравнительный анализ расчета и эксперимента

Для точного выявления вклада проводимости и инерционных эффектов в диэлектрический отклик пьезоэлектрической керамики, расчет для температур: 30°C (см. рис. 6 а) и 170°C (см. рис. 6 б) осуществлялся поэтапно.

Вначале вычисления были проведены по формуле (7), которая описывает только диэлектрический отклик системы, без учета резонансной поляризации и проводимости (см. кривые 2 на рис. 6). Как можно видеть, данная формула не учитывает anomalous поведение действительной части комплексной диэлектрической проницаемости в частотном диапазоне выше 2 МГц и резкого роста на низких частотах (менее 100 Гц). Причем диапазон средних частот от 100 Гц до 1 МГц, ею хорошо описывается только при комнатной температуре (см. кривую 2 на рис. 6 а). С ростом температуры, когда, согласно эксперименту [8], начинается рост проводимости совпадение достаточно условное (см. кривую 2 на рис. 6 б).

Добавление только слагаемого, учитывающего инерционные эффекты, то есть затухание, позволяет приблизить расчет к эксперименту в области высокочастотной аномалии (антирезонансного пика), но дает сильное расхождение в остальных областях частотного диапазона (см. кривые 3 на рис. 6).

Учет релаксационной проводимости, описываемой формулой (10), позволило компенсировать расхождение на средних частотах, вносимое учетом слагаемого, описывающего инерционные эффекты (см. кривые 4 на рис. 6). Можно предположить, что эти два явления (релаксационная проводимость и присутствие инерционных эффектов) взаимосвязаны, то есть не существуют по отдельности. Таки образом, одновременный учет релаксационной проводимости и эффектов затухания, позволил объяснить аномальное поведение диэлектрического отклика в области высоких частот, но не объяснил резкий рост действительной части комплексной диэлектрической проницаемости на низких частотах.

Полное совпадение рассчитанного диэлектрического отклика с экспериментальным (см. кривые 5 на рис. 6), удалось получить только при учете еще одной составляющей проводимости – описываемой формулой (11).

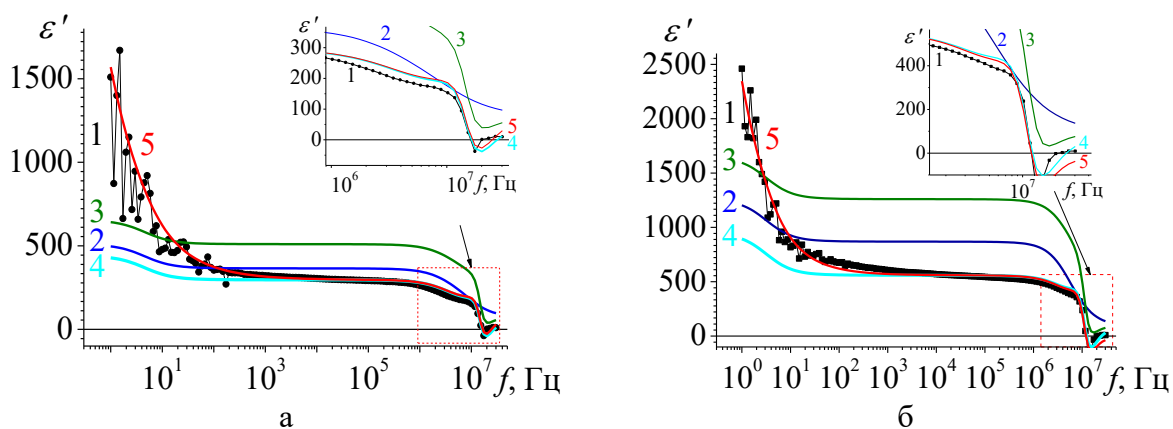


Рис. 6. Частотные зависимости действительной части диэлектрической проницаемости образца LNN10 при температурах 30°C (а) и 170°C (б). Эксперимент (кривые 1) и расчет: по формуле (7) – кривые 2; по формуле (9) кривые 3; формула (9) с учетом проводимости по формуле (10) – кривые 4, по формулам (10) и (11) – кривые 5.

## 6. Заключение

Проведенное компьютерное моделирование диэлектрического отклика пьезокерамического материала показало, что наблюдаемый в эксперименте отклик диэлектрика на воздействие внешнего переменного поля по сути состоит из двух неразделимых в эксперименте частей – собственно диэлектрического отклика системы и проводимости.

Таким образом, одновременный учет релаксационной проводимости

и эффектов затухания позволил описать проявление в эксперименте отрицательной ёмкости на частотах, значительно ниже оптических. До сих пор [2, 3], появление пика резонанс – антирезонанс объяснялось только проявлением упругой ионной поляризации, имеющей место на оптических частотах. Антирезонансные явления, наблюдаемые в частотном диапазоне от 1 до 30 МГц, согласно проведенным расчетам, являются следствием совместного действия проводимости и инерционных эффектов.

Значение параметра  $s (<1)$ , полученное нами из экспериментальных зависимостей действительной части комплексной проводимости и используемое для компьютерного моделирования, свидетельствует, согласно [2], о прыжковом механизме проводимости. Это полностью подтверждает сделанное ранее предположение, что аномальное поведение диэлектрического отклика на низких частотах обусловлено миграционной (объемно–зарядовой поляризацией) [8, 11, 12].

**Библиографический список:**

1. **Jonscher, A.K.** Universal relaxation law: a sequel to dielectric relaxation in solids / A.K. Jonscher. – London: Chelsea Dielectrics Press Limited, 1996. – 415 p.
2. **Jonscher, A.K.** Dielectric relaxation in solids / A.K. Jonscher. – London: Chelsea Dielectrics Press Limited, 1983. – 400 p.
3. **Поплавко, Ю.М.** Физика диэлектриков / Ю.М. Поплавко. – Киев: Вища школа, Головное изд-во, 1980. – 400 с.
4. **Jonscher, A.K.** The physical origin of negative capacitance / A.K. Jonscher // Journal of the Chemical Society, Faraday Transactions 2: Molecular and Chemical Physics. – 1986. – V. 82. – I. 1. – P. 75-81. DOI: 10.1039/F29868200075.
5. **Felix, A.A.** Schottky-type grain boundaries in CCTO ceramics / A.A. Felix, M.O. Orlandi, J.A. Varela // Solid State Communications. – 2011. – V. 151. – I. 19. – P. 1377-1381. DOI: 10.1016/j.ssc.2011.06.012.
6. **Kwok, H.L.** Understanding negative capacitance effect using an equivalent resistor-capacitor circuit / H.L. Kwok // Physica Status Solidi C. – 2008. – V. 5. – I. 2. – P. 638-640. DOI: 10.1002/pssc.200776806.
7. **Gavrilova, N.D.** Negative dielectric permittivity of poly (acrylic acid) pressed pellets / N.D. Gavrilova, V.K. Novik, A.V. Vorobyev, I.A. Malyshkina // Journal of Non-Crystalline Solids. – 2016. – V. 452. – P. 1-8. DOI: 10.1016/j.jnoncrysol.2016.08.015.
8. **Мальшева, Н.Е.** Диэлектрическая релаксация в керамике ниобата лития-натрия: дис. ... канд. физ.-мат. наук: 1.3.8 / Мальшева Наталья Евгеньевна. – Тверь: Тверской государственный университет, 2023. – 166 с.
9. **Megaw, H.D.** The seven phases of sodium niobate / H.D. Megaw // Ferroelectrics. – 1974. – V. 7. – I. 1. – P. 87-89. DOI: 10.1080/00150197408237956.
10. **Dixon, C.A.L.** Complex octahedral tilt phases in the ferroelectric perovskite system  $\text{Li}_x\text{Na}_{1-x}\text{NbO}_3$  / C.A.L. Dixon, P. Lightfoot // Physical Review B. – 2018. – V. 97. – I. 22. – P. 224105-1-224105-9. DOI: 10.1103/PhysRevB.97.224105.
11. **Малышкина, О.В.** Релаксационные процессы в области структурных фазовых переходов на примере керамики на основе ниобата натрия / О.В. Малышкина, М. Али, Н.Е. Мальшева, К.В. Пацуев // Физика твердого тела, – 2022. – Т. 64. – Вып. 12. – С. 1960-1966. DOI: 10.21883/FTT.2022.12.53649.461.
12. **Malysheva, N.E.** Temperature dependences of dielectric characteristics of sodium-lithium niobate porous ceramics / N.E. Malysheva, O.V. Malyshkina // Ferroelectrics. – 2022. – V. 591. – I. 1. – P. 72-76. DOI: 10.1080/00150193.2022.2041925.
13. **Debye, P.** Polar molecules / P. Debye. – New York: The Chemical Catalog Company, Inc., 1929. – 172 p.
14. **Cole, K.S.** Dispersion and absorption in dielectric. 1. Alternating currents characteristics / K.S. Cole, R.H. Cole // The Journal of Chemical Physics. – 1941. – V. 9. – I. 4. – P. 341-351. DOI: 10.1063/1.1750906.
15. **Галиярова, Н.М.** Медленная релаксация поляризации и особенности низкочастотного диэлектрического спектра триглицинсульфата в области фазового перехода / Н.М. Галиярова // Физика

твёрдого тела. – 1989. – Т. 31. – Вып. 11. – С. 248-252.

16. **Kremer, F.** Broadband dielectric spectroscopy / F. Kremer, A. Schönhals. – Berlin, Heidelberg: Springer, 2003. – XXI, 729 p. DOI: 10.1007/978-3-642-56120-7.

#### References:

1. Jonscher A.K. *Universal relaxation law: a sequel to dielectric relaxation in solids*. London, Chelsea Dielectrics Press Limited, 1996, 415 p.
2. Jonscher A.K. *Dielectric relaxation in solids*. London, Chelsea Dielectrics Press Limited, 1983, 400 p.
3. Poplavko Yu.M. *Fizika dielektrikov* [Physics of dielectrics]. Kiev, Vishcha shkola, Golovnoe izd-vo, 1980, 400 p. (In Russian).
4. Jonscher A.K. The physical origin of negative capacitance, *Journal of the Chemical Society, Faraday Transactions 2: Molecular and Chemical Physics*, 1986, vol. 82, issue 1, pp. 75-81. DOI: 10.1039/F29868200075.
5. Felix A.A., Orlandi M.O., Varela J.A. Schottky-type grain boundaries in CCTO ceramics, *Solid State Communications*, 2011, vol. 151, issue 19, pp. 1377-1381. DOI: 10.1016/j.ssc.2011.06.012.
6. Kwok H.L. Understanding negative capacitance effect using an equivalent resistor-capacitor circuit, *Physica Status Solidi C*, 2008, vol. 5, issue 2, pp. 638-640. DOI: 10.1002/pssc.200776806.
7. Gavrilova N.D., Novik V.K., Vorobyev A.V., Malysheva N.E. Negative dielectric permittivity of poly (acrylic acid) pressed pellets, *Journal of Non-Crystalline Solids*, 2016, vol. 452, pp. 1-8. DOI: 10.1016/j.jnoncrysol.2016.08.015.
8. Malysheva N.E. *Dielektricheskaya relaksatsiya v keramike niobata litiya-natriya* [Dielectric relaxation in lithium-sodium niobate ceramics], Cand. phys.-math. sci. diss.: 1.3.8. Tver, Tver State University Publ., 2023, 166 p.
9. Megaw H.D. The seven phases of sodium niobate, *Ferroelectrics*, 1974, vol. 7, issue 1, pp. 87-89. DOI: 10.1080/00150197408237956.
10. Dixon C.A.L., Lightfoot P. Complex octahedral tilt phases in the ferroelectric perovskite system  $\text{Li}_x\text{Na}_{1-x}\text{NbO}_3$ , *Physical Review B*, 2018, vol. 97, issue 22, pp. 224105-1-224105-9. DOI: 10.1103/PhysRevB.97.224105.
11. Malysheva N.E., Ali M., Malysheva N.E., Patsuev K.V. Relaksatsionnye protsessy v oblasti strukturnykh fazovykh perekhodov na primere keramiki na osnove niobata natriya [Relaxation processes in the region of structural phase transitions on the example of ceramics based on sodium niobate], *Fizika tverdogo tela* [Physics of the Solid State], 2022, vol. 64, issue 12, pp. 1960-1966. DOI: 10.21883/FTT.2022.12.53649.461. (In Russian).
12. Malysheva N.E., Malysheva O.V. Temperature dependences of dielectric characteristics of sodium-lithium niobate porous ceramics, *Ferroelectrics*, 2022, vol. 591, issue 1, pp. 72-76. DOI: 10.1080/00150193.2022.2041925.
13. Debye P. *Polar molecules*. New York, The Chemical Catalog Company, Inc., 1929, 172 p.
14. Cole K.S., Cole R.H. Dispersion and absorption in dielectric. 1. Alternating currents characteristics, *The Journal of Chemical Physics*, 1941, vol. 9, issue 4, pp. 341-351. DOI: 10.1063/1.1750906.
15. Galiyarova N.M. Medlennaya relaksatsiya polarizatsii i osobennosti nizkochastotnogo dielektricheskogo spektra triglitsinsulfata v oblasti fazovogo perekhoda [Slow polarization relaxation and features of the low-frequency dielectric spectrum of triglycine sulfate in the phase transition region], *Fizika tverdogo tela* [Physics of the Solid State], 1989, vol. 31, issue 11, pp. 248-252. (In Russian).
16. Kremer F., Schönhals A. Broadband dielectric spectroscopy. Berlin, Heidelberg, Springer, 2003, XXI, 729 p. DOI: 10.1007/978-3-642-56120-7.

*Original paper*

#### SIMULATION OF THE DIELECTRIC RESPONSE OF PIEZOELECTRIC CERAMICS

N.E. Malysheva<sup>1</sup>, E.V. Dyakova<sup>2</sup>, O.V. Malysheva<sup>2</sup>

<sup>1</sup>*Military Academy of Air and Space Defence named after Marshal of the Soviet Union G.K. Zhukov,  
Tver, Russia*

<sup>2</sup>*Tver State University, Tver, Russia*

DOI: 10.26456/pcascnn/2023.15.481

**Abstract:** We have analyzed the complex permittivity of a porous (10 volume % of pores) sodium-lithium niobate ceramic with the results of computer simulation. The calculation was based on the Cole–Cole formula, which took into account the presence of various mechanisms of relaxation processes in the low-frequency (linear dispersion) and mid-frequency regions, an additional term from

the Debye formula was added to take into account the mixed polarization, and a term taking into account the damping factor was added for resonant-type polarization. The simulation was carried out with and without the conductivity taken into account. To take into account the contribution of conductivity to the dynamic dielectric response, the expression  $\sigma^* = (\varepsilon'' + i\varepsilon')\varepsilon_0\omega$  was used. It is shown that the linear part of the frequency dependence in the range from 50 Hz to 1 MHz is equally well described both with and without conductivity. At the same time, the behavior of the dielectric response of piezoelectric ceramics in the high-frequency region, where resonance effects are observed, and the low-frequency region, where volume-charge polarization predominates, is much better described taking into account the contribution of conductivity to the dielectric response of the system.

*Keywords: piezoelectric ceramics, complex permittivity, complex conductivity, dielectric spectroscopy.*

*Мальшиева Наталья Евгеньевна – старший преподаватель кафедры № 13, ФГКВОУ ВО «Военная академия воздушно-космической обороны им. Маршала Советского Союза Г.К. Жукова» МО РФ*

*Дьякова Екатерина Владимировна – аспирант 2 года обучения, ФГБОУ ВО «Тверской государственный университет»*

*Мальшикина Ольга Витальевна – д.ф.-м.н., профессор, профессор кафедры компьютерной безопасности и математических методов управления ФГБОУ ВО «Тверской государственный университет»*

*Nataliya E. Malysheva –Senior Lecture, Department No. 13, Military Academy of Air and Space Defence named after Marshal of the Soviet Union G.K. Zhukov*

*Ekaterina V. Dyakova – 2<sup>nd</sup> year postgraduate student, Tver State University*

*Olga V. Malyshkina – Dr. Sc., Professor, Full Professor, Department of Computer Security and Mathematical Control Methods, Tver State University.*

Поступила в редакцию/received: 12.06.2023; после рецензирования/revise: 12.07.2023; принята/accepted: 15.07.2023.