

УДК 681.586:666.655

EDN: YCVKMA DOI: 10.31429/vestnik-23-3-80-89

Влияние термодинамических условий на стабильность пьезоэлектрических композитов архитектуры 2–2

В. В. Немыкин ¹✉, А. Ю. Малыхин ², А. А. Панич ²

¹ Институт фундаментального инженерного образования Южно-Российский государственный политехнический университет (НПИ) им. М.И. Платова, ул. Просвещения, 132, Новочеркасск, 346428, Россия

² Институт высоких технологий и пьезотехники Южного федерального университета, ул. Мильчакова, 10, Ростов-на-Дону, 344090, Россия

✉ Немыкин Вячеслав Васильевич; ORCID 0009-0007-8378-6801; SPIN 7222-4519; e-mail: nemykin@sfedu.ru

Аннотация. Исследовано влияние низких температур на электрофизические характеристики высокочувствительной пьезокерамики цирконата-титаната свинца с ультрадисперсными компонентами TiO_2 и ZrO_2 , а также многослойного пьезоэлектрического композита архитектуры 2–2, изготовленного на ее основе. Показано, что оптимальное содержание ультрадисперсных компонентов (5 масс. %) обеспечивает уплотнение структуры, рост диэлектрической проницаемости и пьезоэлектрических модулей при незначительном снижении температуры Кюри и малом ухудшении диэлектрических потерь. В диапазоне от 25 °С до –150 °С относительная диэлектрическая проницаемость и поперечный пьезоэлектрический модуль демонстрируют быстрый спад при охлаждении до –25 °С и последующий выход на плато при более низких температурах, предположительно вследствие «замораживания» подвижности доменных стенок. Изготовленный композит показал высокие значения статической емкости и эффективного коэффициента электромеханической связи при 25 °С, а также малую деградацию параметров и низкий температурный гистерезис после трех циклов охлаждения до –50 °С, что делает его перспективным для применения в актюаторах и акселерометрах, работающих в условиях космоса, арктических зон и глубоководных сред.

Ключевые слова: пьезоэлектрический композит, пьезокерамика, функциональные материалы, температурная стабильность.

Финансирование. Исследование выполнено при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации в рамках государственного задания, проект № FENW-2025-0005.

Цитирование: Немыкин В. В., Малыхин А. Ю., Панич А. А. Влияние термодинамических условий на стабильность пьезоэлектрических композитов архитектуры 2–2 // Экологический вестник научных центров Черноморского экономического сотрудничества. 2026. Т. 23, № 3. С. 80–89. EDN: YCVKMA. DOI: 10.31429/vestnik-23-3-80-89

Поступила 30 апреля 2026 г. После доработки 28 июля 2026 г. Принято 26 августа 2026 г. Публикация 25 сентября 2026 г.

Идея/концепция работы (Немыкин В.В., Малыхин А.Ю.), проведение экспериментов, вычислений, расчетов (Немыкин В.В., Малыхин А.Ю.), анализ данных (Немыкин В.В., Малыхин А.Ю.), написание статьи (Немыкин В.В., Малыхин А.Ю.), внесение правок (Немыкин В.В., Малыхин А.Ю., Панич А.А.), утверждение окончательного варианта (Немыкин В.В., Малыхин А.Ю., Панич А.А.). Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

© Автор(ы), 2026. Статья открытого доступа, распространяется по лицензии [Creative Commons Attribution 4.0 \(CC BY\)](https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/).

The Influence of Thermodynamic Conditions on the Stability of 2–2 Architecture Piezoelectric Composites

V. V. Nemykin ¹✉, A. Y. Malykhin ², A. A. Panich ²

¹ Institute of Fundamental Engineering Education, South Russian State Polytechnic University (NPI), 132 Prosveshcheniya St., Novocherkassk, 346428, Russia

² Institute of High Technologies and Piezoelectronics, Southern Federal University, 10 Milchakova St., Rostov-on-Don, 344090, Russia

✉ Vyacheslav V. Nemykin; ORCID 0009-0007-8378-6801; e-mail: nemykin@sfedu.ru

Abstract. The effect of low temperatures on the electrophysical characteristics of a highly sensitive lead zirconate titanate piezoceramic system with ultradispersed TiO_2 and ZrO_2 additives, as well as a multilayer piezoelectric composite with a 2–2 architecture fabricated from it, was studied. It was shown that the optimal content of ultradispersed components (5 wt. %) ensures structural densification, an increase in

the permittivity and piezoelectric moduli at room temperature, and only a slight decrease in the Curie temperature. In the range from 25 to $-150\text{ }^{\circ}\text{C}$, the relative permittivity and transverse piezoelectric modulus exhibit a rapid decline upon cooling to $-25\text{ }^{\circ}\text{C}$ and reach a plateau at lower temperatures due to the “freezing” of domain mobility. The manufactured composite demonstrated high values of static capacitance and effective electromechanical coupling coefficient at $25\text{ }^{\circ}\text{C}$, as well as low parameter degradation and low temperature hysteresis after three cooling cycles to $-50\text{ }^{\circ}\text{C}$, making it promising for use in actuators and accelerometers operating in space, arctic zones, and deep-sea environments.

Keywords: piezoelectric composite, piezoceramics, functional materials, thermal stability.

Funding. The research was conducted with financial support from the Ministry of Science and Higher Education of the Russian Federation as part of a state assignment, project No. FENW-2025-0005.

Cite as: Nemykin, V. V., Malykhin, A. Y., Panich, A. A., The influence of thermodynamic conditions on the stability of 2–2 architecture piezoelectric composites. *Ecological Bulletin of Research Centers of the Black Sea Economic Cooperation*, 2026, vol. 23, no. 3, pp. 80–89. DOI: 10.31429/vestnik-23-3-80-89

Received 30 April 2026. Revised 28 July 2026. Accepted 26 August 2026. Published 25 September 2026.

Idea/concept of the work (Nemykin V.V., Malykhin A.Yu.), conducting experiments, calculations, computations (Nemykin V.V., Malykhin A.Yu.), data analysis (Nemykin V.V., Malykhin A.Yu.), writing the article (Nemykin V.V., Malykhin A.Yu.), making revisions (Nemykin V.V., Malykhin A.Yu., Panich A.A.), approving the final version (Nemykin V.V., Malykhin A.Yu., Panich A.A.). The authors declare no competing interests.

© The Author(s), 2026. The article is open access, distributed under [Creative Commons Attribution 4.0 \(CC BY\)](#) license.

Введение

Пьезоэлектрические композиты архитектуры 2–2, представляющие собой чередующиеся слои пьезокерамики и металла, получили широкое распространение в качестве актюаторов [1] и акселерометров [2, 3], чья работа основана на пьезоэлектрическом эффекте. Пьезокерамические слои позволяют преобразовывать механическое воздействие в электрический отклик (прямой пьезоэффект) или электрическое воздействие в механический отклик (обратный пьезоэффект) [4] и обеспечивают основные функциональные возможности композитного преобразователя. Металлические слои изготавливаются из токопроводящих материалов (серебро, золото, платина, никель, медь и др. [5–7]) и позволяют как снимать электрический отклик преобразователя, так подводить к нему внешнее управляющее электрическое воздействие. Современное пьезоэлектрическое приборостроение предъявляет широкий набор требований к пьезоэлектрическим композитам для применений в качестве актюаторов и акселерометров.

Актюаторы представляют собой многослойные преобразователи (обычно более двух пьезоактивных слоев), которые генерируют перемещение под действием внешнего переменного электрического поля. Для актюаторных применений следует выбирать пьезоактивные материалы и композиты, обладающие: высокими обратными продольным d_{33}^* и поперечным $|d_{31}^*|$ пьезоэлектрическими модулями по заряду (для обеспечения больших деформаций и точных перемещений); низким тангенсом угла в сильных полях $\text{tg } \delta_{HF}$ (для уменьшения тепловых потерь и разогрева актюатора); высокими значениями коэрцитивного поля E_C и механической добротности Q_m (для достижения стабильности электрофизических параметров актюатора при циклических воздействиях на него сильным электрическим полем [1, 8–11]).

Акселерометры являются устройствами, которые преобразуют воздействие в виде вибрации, удара или ускорения в электрический отклик. Для акселерометров важны следующие характеристики пьезоактивных материалов и композитов: высокий продольный d_{33} и поперечный $|d_{31}|$ пьезоэлектрические модули по заряду (для обеспечения хорошей чувствительности к малым механическим воздействиям); высокая относительная диэлектрическая проницаемость механически свободного образца $\varepsilon_{33}^s/\varepsilon_0$ (для уменьшения влияния тепловых шумов); умеренная механическая добротность Q_m (для достижения линейности в рабочей области АЧХ акселерометра и уменьшения искажения полезного сигнала из-за паразитных шумов вблизи резонансных частот [2, 3, 11–15]).

Как для актюаторных применений, так и для применений в качестве акселерометров важным свойством пьезоактивного материала является его температурная стабильность [16, 17].

В последние годы исследователи сосредоточились на определении зависимостей электрофизических параметров пьезоэлектрических материалов и устройств от воздействия повышенных температур, что критически важно для применений композитов в управлении клапанами и форсунками двигателей различного назначения [18, 19], мониторинга вибраций газовых турбин [20], вибраций бурового инструмента [13] и т.д. Однако область низких температур, потенциально важная для арктических, космических и глубоководных применений пьезоэлектрических композитов, остается малоизученной.

Работы, исследующие поведение электрофизических параметров пьезокерамических материалов при низких температурах, как правило, ограничиваются классическими монокристаллическими составами [21–25] и не исследуют влияние ультрадисперсных компонентов на стабильность электрофизических параметров при их охлаждении. Более того, циклические низкотемпературные испытания многослойных пьезоэлектрических композитов архитектуры 2–2 в литературе практически не представлены. В настоящей работе впервые систематически исследовано влияние ультрадисперсных компонентов TiO_2 и ZrO_2 на электрофизические параметры высокочувствительного пьезоэлектрического материала системы цирконата-титаната свинца в широком диапазоне отрицательных температур (от 25 °C до –150 °C). Кроме того, были проведены циклические испытания изготовленного пьезоэлектрического композита архитектуры 2–2 при пониженных температурах.

1. Методика эксперимента

За основу пьезоактивного компонента исследуемого композита взята пьезокерамика системы цирконата-титаната свинца, описанная ранее в [26] и полученная методом твердофазных реакций. Ключевым отличием является наличие ультрадисперсных компонентов (TiO_2 , ZrO_2), вводимых в шихту на этапе смешивания компонентов системы в количестве 0, 1, 2,5, 5 и 7,5 масс. % от содержания соответствующего компонента с учетом сохранения стехиометрического соотношения. Смешивание компонентов проводилось на планетарной мельнице в среде изопропилового спирта в течение 24 ч. После этого пьезокерамический материал синтезировался при температуре 800 °C в течение 6 часов. Синтезированная пьезокерамика размалывалась на планетарной мельнице в течение 24 ч. Для исследования электрофизических свойств пьезокерамических материалов с различным содержанием ультрадисперсных компонентов, пьезокерамический порошок прессовали в таблетки диаметром 15 мм и высотой 3 мм при приложенном одноосном давлении 100 МПа. Спрессованные таблетки спекали в камерной электропечи в свинцовой атмосфере при температуре 1260 °C в течение 2 ч. Образцы после спекания шлифовались в размер: диаметр 10_{–0,04} мм и высота 1_{–0,02} мм. На торцы образцов наносилась серебросодержащая паста с последующим вжиганием для формирования серебряных электродов, после чего получившиеся пьезокерамические элементы поляризовались в масле при температуре 150 °C и напряженности электрического поля 3 кВ/мм в течение 10 мин. Электрофизические параметры образцов при комнатной температуре измерялись на аппаратуре «Цензурка-МА2» в соответствии с требованиями ОСТ 11-0444-87 [27]. Измерение продольного пьезоэлектрического модуля d_{33} проводилось на измерителе d33 YE2730A «APC International Ltd.». Плотность образцов измерялась методом Архимеда. Для каждого состава были проведены измерения 15 экспериментальных образцов.

Методика измерения температурных зависимостей электрофизических характеристик была усовершенствована следующим образом: исследуемый образец помещался в измерительную ячейку, снабженную изолированной камерой и герметичным выводом для подключения к измерительной аппаратуре. Из камеры откачивался воздух, и при помощи подъемного механизма измерительная ячейка плавно погружалась в сосуд Дюара, наполненный жидким азотом. Показания температуры в текущий момент времени фиксировались при помощи откалиброванного датчика rt1000, находящегося в непосредственной близости от измеряемого элемента. Значения электрофизических характеристик были измерены при помощи аппаратуры «Цензурка-МА2» на 5 экспериментальных образцах для каждого состава.

Схематическое изображение измерительной ячейки и ее внешний вид показан на рис. 1.



Рис. 1. Схематическое изображение и внешний вид измерительной ячейки: 1 — термопара pt-1000; 2 — измеряемый пьезоэлемент; 3 — измерительные электроды; 4 — корпус ячейки

Fig. 1. Schematic representation and appearance of the measuring cell: 1 — thermocouple pt-1000; 2 — measured piezoelectric element; 3 — measuring electrodes; 4 — cell body

В результате исследования электрофизических характеристик пьезокерамических материалов и их температурной стабильности, для изготовления пьезоэлектрического композита архитектуры 2-2 был выбран состав с содержанием 5 масс. % ультрадисперсных компонентов. Изготовленный композит представлял собой набор чередующихся пьезоактивных и пьезопассивных металлических слоев. Общее количество слоев составило 51 шт., из которых пьезоактивных — 25 шт., пьезопассивных — 26 шт. Толщина каждого пьезокерамического слоя составляла (200 ± 10) мкм, толщина каждого металлического слоя — (10 ± 2) мкм, а общие габаритные размеры (Д×Ш×В) составили $5 \times 5 \times 5,5$ мм. Для обеспечения механической прочности, а также исключения электрического пробоя в процессе поляризации, на торцы композита нанесены пластины толщиной 500 мкм из алюмооксидной вакуумплотной керамики ВК-94-1 [28]. Поляризация пьезокомпозита проводилась в масле при температуре 150°C и напряженности электрического поля 3 кВ/мм. Измерение электрической емкости пьезокомпозита в зависимости от температуры проводилось по ранее описанной методике, в соответствии с рис. 1, измерения были проведены для 5 пьезоэлектрических композитов архитектуры 2-2.

2. Результаты

На рис. 2 представлены результаты измерений электрофизических параметров образцов пьезокерамического материала при комнатной температуре в зависимости от содержания ультрадисперсных компонентов ZrO_2 и TiO_2 .

Введение ультрадисперсных компонентов вплоть до концентрации 5 масс. % позволило увеличить плотность образцов, как показано на рис. 2а. При оптимальной концентрации таких ультрадисперсных компонентов они способствуют более полному протеканию твердофазной реакции и, как следствие, уплотнению керамической структуры, как показано, например, в [30]. Однако при дальнейшем увеличении содержания ультрадисперсных компонентов наблюдается уменьшение плотности, что можно отнести к эффекту «зажимания» границ зерен нерастворенными вторичными фазами, что тормозит уплотнение системы и согласуется с [31].

На рис. 2б показано изменение диэлектрических характеристик образцов в зависимости от концентрации ультрадисперсных компонентов. Общее уплотнение структуры приводит к росту $\varepsilon_{33}^0/\varepsilon_0$, кроме того, вклад в рост диэлектрической проницаемости могут вносить более подвижные доменные стенки, что обусловлено оптимальным размером зерен и «мягкостью» их границ [32]. В совокупности это повышает поляризуемость пьезокерамики и, как следствие, приводит к увеличению относительной диэлектрической проницаемости при комнатной температуре. С другой стороны, превышение оптимальной концентрации ультрадисперсных

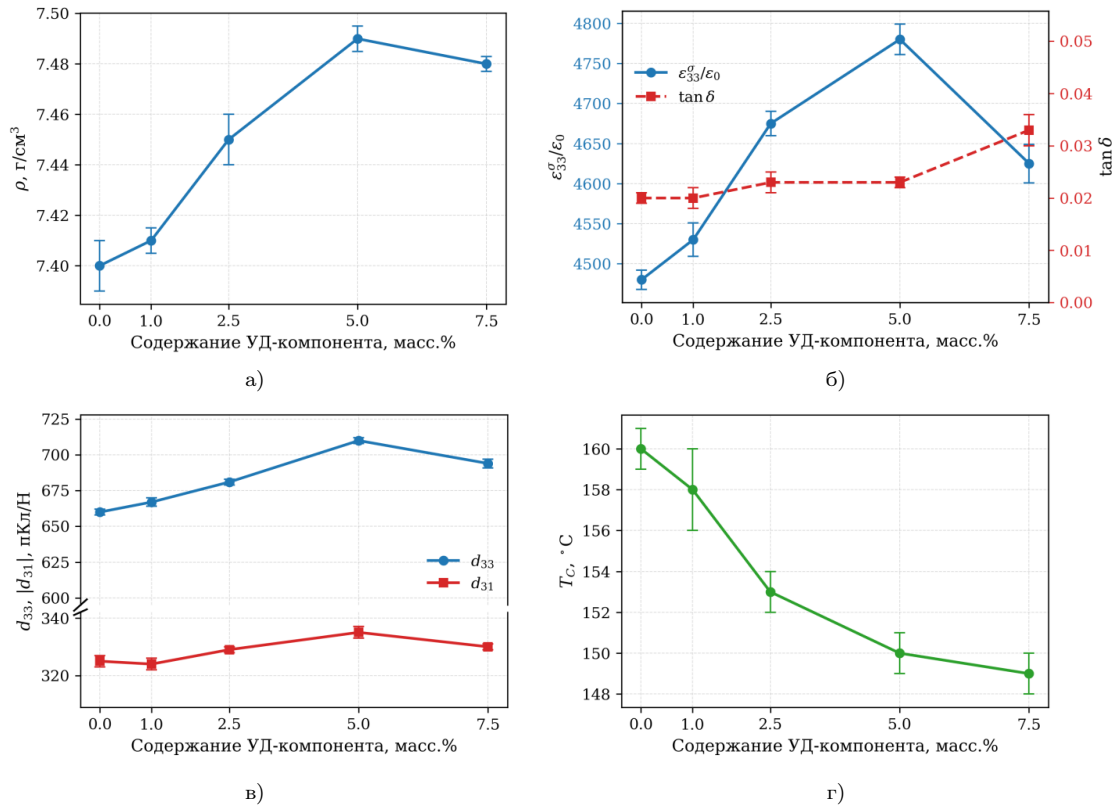


Рис. 2. Зависимости электрофизических параметров образцов пьезокерамического материала от содержания ультрадисперсных компонентов ZrO_2 и TiO_2 (измерения при комнатной температуре): а) плотности образцов ρ ; б) относительной диэлектрической проницаемости механически свободного образца $\epsilon_{33}^s/\epsilon_0$ и тангенса угла диэлектрических потерь в слабых полях $\tan \delta$; в) продольного d_{33} и поперечного $|d_{31}|$ пьезоэлектрического модуля; г) температуры Кюри T_C

Fig. 2. Dependences of the electrophysical parameters of piezoceramic samples on the content of ultrafine components ZrO_2 and TiO_2 (measurements at room temperature): а) sample density ρ ; б) relative permittivity of a mechanically free sample $\epsilon_{33}^s/\epsilon_0$ and the dielectric loss tangent in weak fields $\tan \delta$; в) longitudinal d_{33} and transverse $|d_{31}|$ piezoelectric modulus; г) Curie temperature T_C

компонентов может приводить к зажатию границ зерен нерастворенными вторичными фазами [31] и формированию неоднородной зеренной структуры, что снижает подвижность доменных стенок и негативно сказывается на поляризуемости пьезокерамики. В совокупности с уменьшением плотности эти факторы приводят к уменьшению $\epsilon_{33}^s/\epsilon_0$ при введении ультрадисперсных компонентов свыше 5 масс. %. Тангенс угла диэлектрических потерь в слабых полях демонстрирует незначительный рост до введения 5 масс. % ультрадисперсных компонентов, после чего наблюдается его существенное увеличение. Мы предполагаем, что тенденция к росту $\tan \delta$ объясняется усилением проводящих потерь на границах фаз, что особенно сильно проявляет себя при добавках ультрадисперсных компонентов за пределом оптимальной растворимости.

Динамика изменения пьезоэлектрических модулей, представленная на рис. 2в, хорошо согласуется с ранее сделанными выводами. Связь d_{33} и $|d_{31}|$ с диэлектрической проницаемостью и поляризуемостью представлена в формуле [29]

$$d_{ij} = 2Q_{ij}\epsilon_{ii}^s P_s, \quad (2.1)$$

где Q_{ij} — коэффициент электрострикции, ϵ_{ii}^s — диэлектрическая проницаемость механически свободного образца, P_s — спонтанная поляризация пьезокерамического материала.

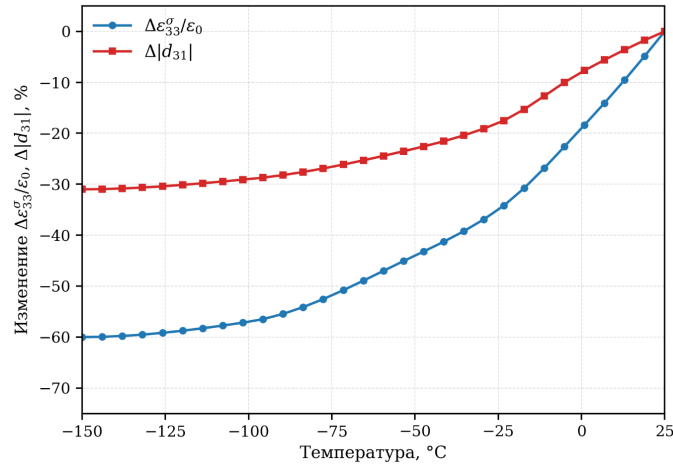


Рис. 3. Относительное изменение $\Delta\varepsilon_{33}^{\sigma}/\varepsilon_0$ и $\Delta|d_{31}|$ при воздействии пониженной температурой от 25 °C до -150 °C

Fig. 3. Relative change in $\Delta\varepsilon_{33}^{\sigma}/\varepsilon_0$ and $\Delta|d_{31}|$ when exposed to low temperature from 25 °C to -150 °C

Введение малых концентраций ультрадисперсных компонентов приводило к уплотнению структуры, увеличению подвижности доменных стенок и уменьшению механической энергии на границах зерен, что положительно влияло на синхронное увеличение $\varepsilon_{ii}^{\sigma}$ и P_s в (2.1) и приводило к росту d_{33} и $|d_{31}|$. Однако эффект «зажатия» границ зерен и уменьшение плотности при концентрации ультрадисперсных компонентов свыше 5 масс. % приводил к уменьшению величины $\varepsilon_{ii}^{\sigma}$. Кроме того, увеличение механической энергии границ зерен из-за их зажатия вторичной фазой и, как следствие, неоднородностью структуры, негативно сказывается как на величине P_s , так и на электрострикционных коэффициентах Q_{ij} , что приводит к уменьшению продольного и d_{33} и поперечного $|d_{31}|$ пьезоэлектрических модулей. Полученное значение $d_{33} = 710$ пКл/Н для состава с 5 масс. % ультрадисперсных компонентов превышает значения, характерные для большинства пьезоэлектрических материалов с аналогичными составами [9, 14, 26], что свидетельствует об эффективности применения ультрадисперсных компонентов.

Незначительное снижение температуры Кюри T_C , показанное на рис. 2г можно объяснить увеличением релаксационности системы с увеличением содержания ультрадисперсных компонентов. По всей видимости, на границах зерен возникают локальные области со смещенной стехиометрией и неоднородными механическими напряжениями, это облегчает температурное переориентирование диполей [33], что приводит к плавному снижению T_C . Однако температура Кюри остается сопоставимой с современными сегнетомягкими высокочувствительными составами [34, 35].

Таким образом, пьезокерамический материал с введением 5 масс. % ультрадисперсных компонентов продемонстрировал наиболее высокие характеристики при комнатной температуре и был отобран для дальнейшего исследования.

Для определения стабильности электрофизических параметров выбранного пьезокерамического материала было проведено исследование влияния пониженных температур на относительную диэлектрическую проницаемость механически свободного образца $\varepsilon_{33}^{\sigma}/\varepsilon_0$ и поперечный пьезоэлектрический модуль $|d_{31}|$. Относительное изменение параметров рассчитывалось в соответствии с [27]

$$\Delta F(T) = \frac{F(T) - F(25^{\circ}\text{C})}{F(25^{\circ}\text{C})},$$

где $\Delta F(T)$ — изменение электрофизического параметра при температуре T , $F(T)$ — значение электрофизического параметра при температуре T , $F(25^{\circ}\text{C})$ — значение электрофизического параметра при температуре 25 °C.

Таблица 1. Основные электрофизические характеристики пьезоэлектрического композита архитектуры 2–2, измеренные при 25 °С

Table 1. Main electrophysical characteristics of the piezoelectric composite of 2–2 architecture, measured at 25 °C

C_0 , нФ	$\text{tg } \delta$	f_r , кГц	f_a , кГц	k_e
135	0,023	128,65	153,447	0,621

Результаты измерений представлены на рис. 3, из которого видно, что при уменьшении температуры от 25 °С до –25 °С происходит быстрое уменьшение $\varepsilon_{33}^s/\varepsilon_0$ и $|d_{31}|$, в данной температурной области происходит постепенное «замораживание» подвижности доменных стенок, домены все хуже откликаются на внешнее воздействие, что приводит к убыванию доменного вклада в диэлектрические характеристики и пьезоэлектрическую чувствительность по заряду. По мере дальнейшего охлаждения ниже –75 °С подавляющая часть доменов оказывается в «замороженном» состоянии и относительное изменение параметров выходит на плато. В этой области дальнейшее уменьшение температуры изменяет не столько доменную поляризацию, сколько электронно-ионную поляризацию, чей вклад в значение электрофизических параметров существенно ниже, чем у доменной поляризации. Таким образом, пьезокерамический материал с 5 масс. % ультрадисперсных компонентов демонстрирует хотя и сниженный, но достаточно линейный отклик по заряду в области низких температур, что делает его перспективным кандидатом для применения в актюаторах и акселерометрах, работающих в условиях космоса, арктических зон и в глубоководных аппаратах.

Для подтверждения перспективности исследованного пьезокерамического материала в качестве пьезоактивного слоя пьезоэлектрического композита архитектуры 2–2 был изготовлен многослойный пьезокомпозит. В табл. 1 приведены его основные электрофизические характеристики при 25 °С.

Для оценки влияния циклического воздействия низких температур на чувствительность пьезоэлектрического композита был выбран эффективный коэффициент электромеханической связи, который рассчитывался в соответствии с [27]

$$k_e = \sqrt{\frac{2(f_a - f_r)}{f_r}},$$

где k_e — эффективный коэффициент электромеханической связи, f_a — антирезонансная частота рабочей моды колебаний, f_r — частота резонанса рабочей моды колебаний.

Значение k_e слабо зависит от геометрии образца, поэтому хорошо подходит для описания чувствительности сложных многослойных систем. Изготовленный пьезоэлектрический композит подвергался трем циклам воздействия пониженной температуры от 25 °С до –50 °С. Следует отметить, что для пьезоэлектрической керамики деградация электрофизических параметров при циклическом температурном воздействии стабилизируется уже на первых циклах [36]. Таким образом, для первичной оценки динамики поведения электрофизических параметров исследуемого пьезоэлектрического композита достаточно малого числа циклирования. На рис. 4 представлены зависимость статической электрической емкости C_0 и эффективного коэффициента электромеханической связи k_e при охлаждении и нагреве на последнем цикле воздействия.

Как и ожидалось (см. данные на рис. 3), с уменьшением температуры статическая электрическая емкость и эффективный коэффициент электромеханической связи уменьшались, т.к. $k_e \propto d_{33}$ или $k_e \propto |d_{31}|$ (в зависимости от режима работы пьезокомпозита), а $C_0 \propto \varepsilon_{33}^s/\varepsilon_0$. Оба параметра после цикла охлаждения и нагрева возвращались в точку, близкую к первоначальной, что свидетельствует о малых необратимых изменениях для параметров внутри отдельного цикла. Более того, после трех циклов охлаждения значение статической электрической емкости составило 99,3 % от исходного, а значение эффективного коэффициента электромеханической связи — 97,9 %, что говорит о хорошей общей стабильности параметров пьезоэлектрического композита.

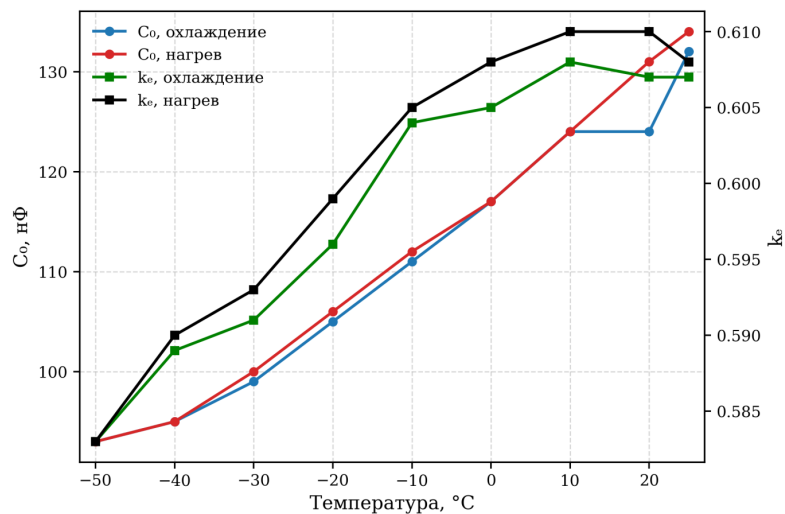


Рис. 4. Зависимость C_0 и k_e от температуры при охлаждении и нагреве на последнем цикле воздействия

Fig. 4. Dependence of C_0 and k_e on temperature during cooling and heating in the last cycle of exposure

Можно заметить, что пьезоэлектрический композит отличается малым температурным гистерезисом диэлектрических и пьезоэлектрических параметров, что крайне важно для эффективной работы актюаторов и акселерометров в широком диапазоне температур. Главным преимуществом малого температурного гистерезиса пьезокомпозита является снижение дрейфа нуля и уменьшение деградации функциональных параметров устройств, приводящие к увеличению точности позиционирования актюаторов и усилению чувствительности акселерометров к малым механическим воздействиям. Из рис. 4 видно, что вблизи -40 °C температурный гистерезис значительно уменьшается, что особенно полезно для космических и арктических применений.

Заключение

Введение малых добавок (до 5 масс. %) ультрадисперсных компонентов TiO_2 и ZrO_2 в твердый раствор цирконата-титаната свинца позволило увеличить плотность материала, его диэлектрическую проницаемость и пьезоэлектрические модули по заряду при незначительном ухудшении диэлектрических потерь и малом уменьшении температуры Кюри. Исследование зависимостей $\varepsilon_{33}^s/\varepsilon_0$ и $|d_{31}|$ в температурном диапазоне от 25 °C до -150 °C показало быстрое уменьшение значений параметров до температуры около -25 °C и последующее плато при более низких температурах, что можно объяснить уменьшением подвижности доменных стенок. Данная особенность повышает линейность и предсказуемость пьезоэлектрического отклика по заряду в области низких температур.

На основе оптимального пьезокерамического состава был изготовлен многослойный пьезоэлектрический композит архитектуры 2–2, демонстрирующий высокие значения статической электрической емкости и эффективного коэффициента электромеханической связи при 25 °C. Результаты циклических температурных испытаний (в диапазоне от 25 °C до -150 °C) показали, что после трех полных циклов температурного воздействия значения C_0 и k_e сохраняются на уровне 99,3 % и 97,9 % от исходных. Кроме того, полученный пьезокомпозит продемонстрировал малый температурный гистерезис диэлектрических и пьезоэлектрических параметров, что делает его многообещающим кандидатом для низкотемпературных применений, в качестве актюаторов и акселерометров.

Литература [References]

1. Mohith, S., Upadhyay, A.R., Navin, K.P., Kulkarni, S.M., Rao, M., Recent trends in piezoelectric actuators for precision motion and their applications: a review. *Smart Materials and Structures*, 2021, vol. 30, iss. 1. DOI: [10.1088/1361-665X/abc6b9](https://doi.org/10.1088/1361-665X/abc6b9)
2. Wu, T., You, D., Gao, H., Lian, P., Ma, W., Zhou, X., Wang, C., Luo, J., Zhangand, H., Tan, H., Research status and development trend of piezoelectric accelerometer. *Crystals*, 2023, vol. 13, iss. 9, p. 1363. DOI: [10.3390/cryst13091363](https://doi.org/10.3390/cryst13091363)
3. Ding, Y., Dong, Y., Lv, R., Zhang, Z., Xie, H., Zhang, Z., Chang, Y., Zheng, T., Wu, J., Dual-component multilayer piezoelectric ceramics with a central through-hole interdigitated architecture for structural-functional coupling and high-performance accelerometers. *Advanced Functional Materials*, 2026, vol. 36, iss. 37. DOI: [10.1002/adfm.74508](https://doi.org/10.1002/adfm.74508)
4. Manjón-SanzMichelle, A.M., Dolgos, R., Applications of piezoelectrics: old and new. *Chemistry of Materials*, 2018, vol. 30, iss. 24, pp. 8718–8726. DOI: [10.1021/acs.chemmater.8b03296](https://doi.org/10.1021/acs.chemmater.8b03296)
5. Lee, J-S., Choi, M-S., Han, H.S., Kong, Y-M., Kim, S., Kim, I.W., Kim, M.S., Jeong, S.J., Effects of internal electrode composition on the reliability of low-firing PMN–PZT multilayer ceramic actuators. *Sensors and Actuators. A: Physical*, 2009, vol. 154, iss. 1, pp. 97–102. DOI: [10.1016/j.sna.2009.06.003](https://doi.org/10.1016/j.sna.2009.06.003)
6. Fu, S., Xue, Q., Huang, L., Tan, R., Wang, F., Yan, K., Enhanced reliability of multilayer piezoelectric ceramic actuators with networked ceramic-metal composite internal electrodes. *Materials Science and Engineering: B*, 2026, vol. 323, part B. DOI: [10.1016/j.mseb.2025.118901](https://doi.org/10.1016/j.mseb.2025.118901)
7. Huan, Y., Hou, L., Wei, T., Jiang, F., Wang, T., Li, L., Wang, X., High-performance (K,Na)NbO₃-based multilayer piezoelectric ceramic actuators with nickel inner electrodes. *Journal of Advanced Ceramics*, 2023, vol. 12, iss. 6, pp. 1228–1237. DOI: [10.26599/JAC.2023.9220752](https://doi.org/10.26599/JAC.2023.9220752)
8. Bruno, B.P., Fahmy, A.R., Stürmer, M., Wallrabe, U., Wapler, M.C., Properties of piezoceramic materials in high electric field actuator applications. *Smart Materials and Structures*, 2018, vol. 28, iss. 1, p. 015029. DOI: [10.1088/1361-665X/aae8fb](https://doi.org/10.1088/1361-665X/aae8fb)
9. Du, Z-Z., Liu, Y-X., Wei, W-Q., Liu, H., Jiang, S-D., Fang, J-Z., Thermally stable piezoelectric performance in low-temperature sintered Pb_{0.95}Ba_{0.01}Sr_{0.04}(Zr_{0.53}Ti_{0.47})O₃ ceramics with a low loss factor. *Advances in Applied Ceramics*, 2021, vol. 120, iss. 4, pp. 1–6. DOI: [10.1080/17436753.2021.1919363](https://doi.org/10.1080/17436753.2021.1919363)
10. Zhou, X., Wu, S., Wang, X., Wang, Z., Zhu, Q., Sun, J., Huang, P., Wang, X., Huang, W., Lu, Q., Review on piezoelectric actuators: materials, classifications, applications, and recent trends. *Frontiers of Mechanical Engineering*, 2024, vol. 19(1), iss. 6, pp. 1–29. DOI: [10.1007/s11465-023-0772-0](https://doi.org/10.1007/s11465-023-0772-0)
11. Panda, P.K., Sahoo, B., Thejas, T.S., High strain lead-free piezo ceramics for sensor and actuator applications: A review. *Sensors International*, 2023, vol. 4, art. 100226, pp. 1–11. DOI: [10.1016/j.sintl.2022.100226](https://doi.org/10.1016/j.sintl.2022.100226)
12. Yu, M-C., Tsai, C-C., Li, C-Y., Ho, Y-C., Chu, S-Y., Hong, C-S., Design and fabrication of novel lead-free compression-type multilayer piezoelectric accelerometers with wide bandwidth, smaller size, low weight, and high sensitivity. *IEEE Sensors Journal*, 2026, vol. 26, iss. 3, pp. 3687–3692. DOI: [10.1109/JSEN.2025.3624455](https://doi.org/10.1109/JSEN.2025.3624455)
13. Liu, W., Wang, B., Gong, S., Tu, X., Zhang, Y., Zhou, Y., Sun, X., Lei, Y., Yang, J., Zhao, T-L., Dong, S., A high-temperature piezoelectric accelerometer operating in symmetric shear-bending coupling mode. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2026, vol. 18, iss. 2, pp. 3968–3975. DOI: [10.1021/acsami.5c16755](https://doi.org/10.1021/acsami.5c16755)
14. Meng, Y., Chen, G., Huang, M., Piezoelectric materials: properties, advancements, and design strategies for high-temperature applications. *Nanomaterials*, 2022, vol. 12, iss. 7, art. 1171, pp. 1–32. DOI: [10.3390/nano12071171](https://doi.org/10.3390/nano12071171)
15. Ding, Y., Wang, Y., Liu, W., Pan, Y., Yang, P., Meng, D., Zheng, T., Jiagang Wu, J., Shear-structured piezoelectric accelerometers based on KNN lead-free ceramics for vibration monitoring. *Journal of Materials Chemistry C*, 2024, vol. 46, iss. 12, pp. 18639–18650. DOI: [10.1039/D4TC04292A](https://doi.org/10.1039/D4TC04292A)
16. Yang, H., Yang, Y., Hou, Y., Liu, Y., Liu, P., Wang, L., Ma, Y., Investigation of the temperature compensation of piezoelectric weigh-in-motion sensors using a machine learning approach. *Sensors*, 2022, vol. 22, iss. 6, art. 2396, pp. 1–18. DOI: [10.3390/s22062396](https://doi.org/10.3390/s22062396)
17. Fialka, J., Klusacek, S., Benes, P., Pikula, S., Measurement of temperature dependence in material coefficients of PZT ceramics for acoustic emission sensors. *IEEE International Ultrasonics Symposium (IUS)*, 2013, pp. 1109–1112. DOI: [10.1109/ULTSYM.2013.0284](https://doi.org/10.1109/ULTSYM.2013.0284)
18. Narita, F., Hasegawa, R., Shindo, Y., Electromechanical response of multilayer piezoelectric actuators for fuel injectors at high temperatures. *Journal of Applied Physics*, 2014, vol. 115, iss. 18, art. 184103.

DOI: [10.1063/1.4875487](https://doi.org/10.1063/1.4875487)

19. Narita, F., Hasegawa, R., Shindo, Y., High temperature electromechanical response of multilayer piezoelectric laminates under AC electric fields for fuel injector applications. *International Journal of Mechanics and Materials in Design*, 2020, vol. 16, pp. 207–213. DOI: [10.1007/s10999-019-09453-1](https://doi.org/10.1007/s10999-019-09453-1)
20. Liang, X., Cheng, W., Li, S., Hu, D., Tan, Q., High-temperature shear-type vibration sensor based on langasite piezoelectric crystal. *Heliyon*, 2024, vol. 10, iss. 19, art. E38417. DOI: [10.1016/j.heliyon.2024.e38417](https://doi.org/10.1016/j.heliyon.2024.e38417)
21. Thiercelin, M., Dammak, H., Pham, M., Electromechanical properties of PMN-PT and PZT ceramics at cryogenic temperatures. *2010 IEEE International Symposium on the Applications of Ferroelectrics (ISAF)*, 2011, pp. 1–4. DOI: [10.1109/ISAF.2010.5712258](https://doi.org/10.1109/ISAF.2010.5712258)
22. Okayasu, M., Okawa, M., Piezoelectric properties of lead zirconate titanate ceramics at low and high temperatures. *SageJournal*, 2021, vol. 120, iss. 3. DOI: [10.21203/rs.3.rs-97421/v1](https://doi.org/10.21203/rs.3.rs-97421/v1)
23. Paik, D.-S., Park, S.-E., Shrout, T.R., Hackenberger, W., Dielectric and piezoelectric properties of perovskite materials at cryogenic temperatures. *Journal of Materials Science*, 1999, vol. 34, pp. 469–473. DOI: [10.1023/A:1004578225228](https://doi.org/10.1023/A:1004578225228)
24. Grupp, D.E., Goldman, A.M., Giant piezoelectric effect in strontium titanate at cryogenic temperatures. *Science*, 1997, vol. 276, iss. 5311, pp. 392–394. DOI: [10.1126/science.276.5311.392](https://doi.org/10.1126/science.276.5311.392)
25. Zhuang, Z.Q., Haun, M.J., Jang, S.-J., Cross, L.E., Composition and temperature dependence of the dielectric, piezoelectric and elastic properties of pure PZT ceramics. *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control*, 1989, vol. 36, iss. 4, pp. 413–416. DOI: [10.1109/58.31777](https://doi.org/10.1109/58.31777)
26. Немыкин, В.В., Бурханов, А.И., Панич, А.Е., Дыкина, Л.А., Скрылёв, А.В., Сегнетомягкий пьезокерамический материал на основе ЦТС, электрофизические и механические свойства в широком диапазоне температур. *Инженерный вестник Дона*, 2021, № 12, с. 92–105. [Nemykin, V.V., Burkhanov, A.I., Panich, A.E., Dykina, L.A., Skrylyov, A.V., Ferromuscular piezoceramic material based on CTS, electrophysical and mechanical properties over a wide temperature range. *Inzhenernyy vestnik Dona = Engineering Bulletin of the Don*, 2021, no. 12, pp. 92–105. (in Russian)]
27. Отраслевой стандарт 11-0444-87, *Материалы пьезокерамические. Технические условия*, 1988. [Otraslevoj standart 11-0444-87, *Piezoceramic materials. Technical specifications*, 1988. (in Russian)]
28. ГОСТ Р 70659-2023, *Керамика вакуумплотная. Классификация и система обозначений*, 2023. [GOST R 70659-2023, *Vacuum-tight ceramics. Classification and designation system*, 2023. (in Russian)]
29. Uchino, K., Electrostrictive and Piezoelectric Effects in Relaxor Ferroelectrics – Historical Background. *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control*, 2022, vol. 69, iss. 11, pp. 3013–3036. DOI: [10.1109/TUFFC.2022.3165002](https://doi.org/10.1109/TUFFC.2022.3165002)
30. Chaim, R., Levin, M., Shlayer, A., Estournes, C., Sintering and densification of nanocrystalline ceramic oxide powders: a review. *Advances in Applied Ceramics*, 2008, vol. 107, iss. 3, pp. 159–169. DOI: [10.1179/174367508X297812](https://doi.org/10.1179/174367508X297812)
31. Maître, A., Beyssen, D., Podor, R., Effect of ZrO₂ additions on sintering of SnO₂-based ceramics. *Journal of the European Ceramic Society*, 2004, vol. 24, iss. 10–11, pp. 3111–3118. DOI: [10.1016/j.jeurceramsoc.2003.11.009](https://doi.org/10.1016/j.jeurceramsoc.2003.11.009)
32. Xu, F., Trolier-McKinstry, S., Ren, W., Xu, B., Xie, Z.-L., Hemker, K.J., Domain wall motion and its contribution to the dielectric and piezoelectric properties of PZT films. *Journal of Applied Physics*, 2001, vol. 89, iss. 2, pp. 1336–1348. DOI: [10.1063/1.1325005](https://doi.org/10.1063/1.1325005)
33. Gimadeeva, L., Ushakov, A., Pugachev, A., Turygin, A., Jing, R., Hu, Q., Wei, X., Hu, Z., Shur, V., Jin, L., Alikin, D., Mesoscale mechanisms of the diffuse dielectric behaviour and retention of the polar nano-regions in the polycrystalline ferroelectric BaTiO₃. *Journal of Materiomics*, 2025, vol. 11, iss. 5, art. 101014. DOI: [10.1016/j.jmat.2025.101014](https://doi.org/10.1016/j.jmat.2025.101014)
34. Guo, Y., Ma, W., Wang, M., Chen, N., Properties of 0.015PSN–0.3PNN–0.685PZT ceramics near morphotropic phase boundary. *Materials Letters*, 2015, vol. 159, pp. 126–130. DOI: [10.1016/j.matlet.2015.06.113](https://doi.org/10.1016/j.matlet.2015.06.113)
35. Gao, X., Wu, J., Yu, Y., Chu, Z., Shi, H., Dong, S., Giant piezoelectric coefficients in relaxor piezoelectric ceramic pnn-pzt for vibration energy harvesting. *Advanced Functional Materials*, 2018, vol. 28, iss. 30, art. 1706895. DOI: [10.1002/adfm.201706895](https://doi.org/10.1002/adfm.201706895)
36. Mastromatteo, L., Gaverina, L., Lavelle, F., Roche, J.-M., Irisarri, F.-X., Investigation of the thermal cycling durability of cobonded piezoelectric sensors for the SHM of reusable launch vehicles. *17th ECSSMET*, 2023, pp. 598–605. HAL ID: hal-04151853