

DOI: 10.18721/JPM.12402  
УДК 537.226

## СЕГНЕТОЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА КОМПОЗИТОВ НА ОСНОВЕ БРОМИДА ДИИЗОПРОПИЛАММОНИЯ И ТИТАНАТА СВИНЦА

С.В. Барышников<sup>1</sup>, Е.В. Стукова<sup>2</sup>, Т.А. Меределина<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Благовещенский государственный педагогический университет,  
г. Благовещенск, Российская Федерация;

<sup>2</sup>Амурский государственный университет, г. Благовещенск, Российская Федерация

В работе приведены результаты исследований линейных и нелинейных диэлектрических свойств, а также calorиметрических измерений сегнетоэлектрического композита  $(C_6H_{16}NBr)_{1-x}/(PbTiO_3)_x$  с объемной долей частиц титаната свинца в композите  $x = 0,1; 0,2; 0,3$ . Показано, что добавка частиц титаната свинца к бромиду диизопропиламмония приводит к изменению последовательности структурных фазовых переходов в бромиде диизопропиламмония, увеличению эффективной диэлектрической проницаемости и значений  $\tan\delta$  композита. В температурном интервале  $150 - 138$  °C присутствуют две фазы  $C_6H_{16}NBr$  (сегнетоэлектрическая  $P2_1$  и несегнетоэлектрическая  $P2_12_12_1$ ), соотношение между которыми зависит от доли частиц титаната свинца в композите.

**Ключевые слова:** сегнетоэлектрик, диэлектрическая проницаемость, композит, фазовый переход

**Ссылка при цитировании:** Барышников С.В., Стукова Е.В., Меределина Т.А. Сегнетоэлектрические свойства композитов на основе бромиде диизопропиламмония и титаната свинца // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. 2019. Т. 12. № 4. С. 17–24. DOI: 10.18721/JPM.12402

Статья открытого доступа, распространяемая по лицензии CC BY-NC 4.0 (<https://creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0/>)

## FERROELECTRIC PROPERTIES OF COMPOSITES BASED ON DIISOPROPYLAMMONIUM BROMIDE AND LEAD TITANATE

S.V. Baryshnikov<sup>1</sup>, E.V. Stukova<sup>2</sup>, T.A. Meredelina<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Blagoveshchensk State Pedagogical University, Blagoveshchensk, Russian Federation;

<sup>2</sup>Amur State University, Blagoveshchensk, Russian Federation

The results of a study of linear and nonlinear dielectric properties, as well as calorimetric measurements of a ferroelectric composite  $(C_6H_{16}NBr)_{1-x}/(PbTiO_3)_x$  with a volume fraction  $x = 0.1, 0.2, 0.3$  of lead titanate particles are presented. It has been shown that the addition of lead titanate particles to diisopropylammonium bromide leads to a change in the sequence of structural phase transitions in the diisopropylammonium bromide, an increase in the effective dielectric constant and  $\tan\delta$  values. In a temperature range of  $150 - 138$  °C, there were two  $C_6H_{16}NBr$  phases (ferroelectric  $P2_1$  and nonferroelectric  $P2_12_12_1$ ). The proportion among these phases depended on the fraction of lead titanate particles in the composite.

**Keywords:** ferroelectric, dielectric constant, composite, phase transition

**Citation:** Baryshnikov S.V., Stukova E.V., Meredelina T.A., Ferroelectric properties of composites based on diisopropylammonium bromide and lead titanate, St. Petersburg Polytechnical State University Journal. Physics and Mathematics. 12 (4) (2019) 17–24. DOI: 10.18721/JPM.12402

This is an open access article under the CC BY-NC 4.0 license (<https://creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0/>)

## Введение

Большой интерес к исследованию сегнетоэлектрических композитов связан с тем, что неоднородные материалы могут демонстрировать необычные свойства, по сравнению с однородными веществами. Согласно теоретическим представлениям, за возникновение сегнетоэлектрического состояния отвечает диполь-дипольное взаимодействие, которое позволяет объяснять возникновение доменной структуры и влияние полярных примесей на свойства кристаллов [1 – 3]. В работах [2, 3] было показано, что введение полярных примесей в сильно поляризуемые матрицы может приводить к появлению сегнетоэлектрического состояния. В композитах, в отличие от кристаллов и твердых растворов, полярные частицы расположены на расстояниях порядка нескольких микрон, в связи с чем возникает вопрос, как в таких структурах будут проявляться электрические взаимодействия.

Исследованию взаимного влияния компонентов в сегнетоэлектрических композитах посвящен ряд публикаций (см., например, [4 – 7] и ссылки в них). Установлено, что для указанных объектов такое влияние возможно. Для таких композитов, как  $(\text{KNO}_3)_{1-x}/(\text{BaTiO}_3)_x$ ,  $(\text{KNO}_3)_{1-x}/(\text{KNbO}_3)_x$  наблюдалось расширение существования сегнетоэлектрической фазы нитрата калия [4, 5]. Для композита  $(\text{NaNO}_2)_{1-x}/(\text{BaTiO}_3)_x$  эффект взаимодействия привел к расширению температурной области существования несоизмерной фазы нитрита натрия [6]. В работе [7] был обнаружен значительный сдвиг температуры Кюри для соединения  $\text{AgNa}(\text{NO}_2)_2$  в композите  $[\text{AgNa}(\text{NO}_2)_2]_{0,9}/[\text{BaTiO}_3]_{0,1}$ .

В последние годы был открыт ряд органических соединений с полярной точечной группой при комнатной температуре и относительно высокой точкой плавления (около 177 °С). К таким сегнетоэлектрикам относятся хлорид диизопропиламмония ( $\text{C}_6\text{H}_{16}\text{NCl}$ , DIPAC) со значениями  $P_s \approx 8,2$  мкКл/см<sup>2</sup>,  $T_c = 167$  °С [8]; бромид диизопропиламмония ( $\text{C}_6\text{H}_{16}\text{NBr}$ , DIPAB) с  $P_s \approx 23$  мкКл/см<sup>2</sup>,  $T_c = 153$  °С [9]; иодид диизопропиламмония ( $\text{C}_6\text{H}_{16}\text{NI}$ , DIPAI) с  $P_s \approx 5,17$  мкКл/см<sup>2</sup>,  $T_c = 105$  °С [10]. В частности, DIPAB имеет спонтанную поляризацию, близкую к титанату бария, высокую температуру Кюри и демонстрирует хороший пьезоэлектрический отклик. Эти атрибуты делают его альтернативой перов-

скитоподобным сегнетоэлектрикам и сегнетоэлектрическим полимерам.

Данная работа посвящена исследованию влияния частиц  $\text{PbTiO}_3$  на температуры фазовых переходов и диэлектрические свойства композита  $(\text{C}_6\text{H}_{16}\text{NBr})_{1-x}/(\text{PbTiO}_3)_x$ .

## Образцы и методика эксперимента

При комнатной температуре соединение  $\text{C}_6\text{H}_{16}\text{NBr}$  может существовать в двух различных полиморфных фазах – с пространственной симметрией  $P2_1$  или  $P2_12_12_1$ , в зависимости от условий получения и термальной истории [10]. Сегнетоэлектрической является моноклинная фаза  $P2_1$ , которая при температуре выше  $T_c \approx 152$  °С переходит в неполярную фазу  $P2_1^s/m$ . Сегнетоэлектрический переход в  $\text{C}_6\text{H}_{16}\text{NBr}$  относится к переходам первого рода. Вторая фаза, стабильная при комнатной температуре, имеет ромбическую симметрию с пространственной группой  $P2_12_12_1$  и сегнетоэлектрически неактивна; при нагреве она также переходит в неполярную моноклинную фазу  $P2_1/m$ , но с образованием промежуточной полярной структуры с симметрией  $P2_1$ , которая существует в интервале примерно от 148 до 152 °С. В процессе охлаждения при 145 °С структура  $\text{C}_6\text{H}_{16}\text{NBr}$  меняется непосредственно с  $P2_1/m$  на  $P2_1$  и ромбическая фаза больше не образуется.

В наших исследованиях бромид диизопропиламмония был получен реакцией диизопропиламина с 48%-м водным раствором HBr (молярное соотношение 1:1) по методике, приведенной в работе [11], с последующей перекристаллизацией из метилового спирта при комнатной температуре. Максимальные кристаллики имели размеры 2 – 3 мм.

Ниже температуры 490 °С титанат свинца имеет тетрагональную фазу, изоморфную титанату бария и является сегнетоэлектриком первого рода. При комнатной температуре спонтанная поляризация  $\text{PbTiO}_3$  составляет примерно  $P_s \approx 70$  мкКл/см<sup>2</sup>, что значительно выше, чем для  $\text{BaTiO}_3$  ( $P_s \approx 22$  мкКл/см<sup>2</sup>). Значение диэлектрической постоянной  $\epsilon'$  вдоль полярной оси для  $\text{PbTiO}_3$  при комнатной температуре лежит в пределах  $(1,5 - 2,2) \cdot 10^2$ , в то время как для  $\text{BaTiO}_3$  оно составляет  $(2 - 4) \cdot 10^3$  [12].

Для исследований использовались композитные образцы  $(\text{C}_6\text{H}_{16}\text{NBr})_{1-x}/(\text{PbTiO}_3)_x$ , где  $x$  составляло 10, 20 и 30 об. %. В процессе приготовления образцов порошки тща-

тельно перемешивались и прессовались под давлением порядка  $10^4$  кг/см<sup>2</sup>. Средний размер частиц в композите лежал в интервале 3 – 10 мкм. Образцы имели форму дисков диаметром 10 мм и толщиной 1,5 мм; на их поверхность наносились серебряные электроды.

Измерения характеристик исследуемых образцов проводились автоматически под управлением компьютера, в режимах нагрева и последующего охлаждения со скоростью 1 град/мин в температурном интервале 30 – 170 °С.

Для определения диэлектрических свойств применялся измеритель иммитанса E7-25. Измерения осуществлялись на частотах  $10^3$ ,  $10^4$  и  $10^5$  Гц при напряжении 0,7 В. Погрешность измерения емкости образцов не превышала 5%. Значения температуры фиксировались цифровым термометром ТС-6621 с хромель-алюмелевой термопарой. Погрешность определения температуры не превышала 0,1 °С.

Установка для исследований нелинейных свойств композитов включала генератор колебаний с частотой 2 кГц. Напряженность электрического поля, налагаемого на образцы  $C_6H_{16}NBr$  и композитов  $(C_6H_{16}NBr)_{1-x}/(PbTiO_3)_x$ , составляла около 10 В/мм. Сигнал снимался с резистора, включенного последовательно с образцом, и подавался на анализатор спектра. Коэффициенты второй и третьей гармоник определялись как отношения амплитуды гармоники к емкостной составляющей основного сигнала:

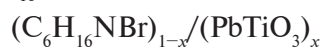
$$\gamma_{2\omega} = u_{2\omega}/u_{\omega}, \gamma_{3\omega} = u_{3\omega}/u_{\omega}.$$

Более подробно методика нелинейных измерений описана в работах [13, 14].

Для измерения теплоемкости применялся метод сканирующей дифференциальной калориметрии с разрешением по термоэдс около 5 мкВ. Скорость нагрева и охлаждения составляла 2 град/мин. Погрешность измерения температуры не превышала 0,2 °С.

#### Экспериментальные результаты и их обсуждение

Результаты исследований диэлектрических свойств для поликристаллических образцов  $C_6H_{16}NBr$  и композитов



при  $x = 0,1; 0,2$  и  $0,3$  представлены на рис. 1

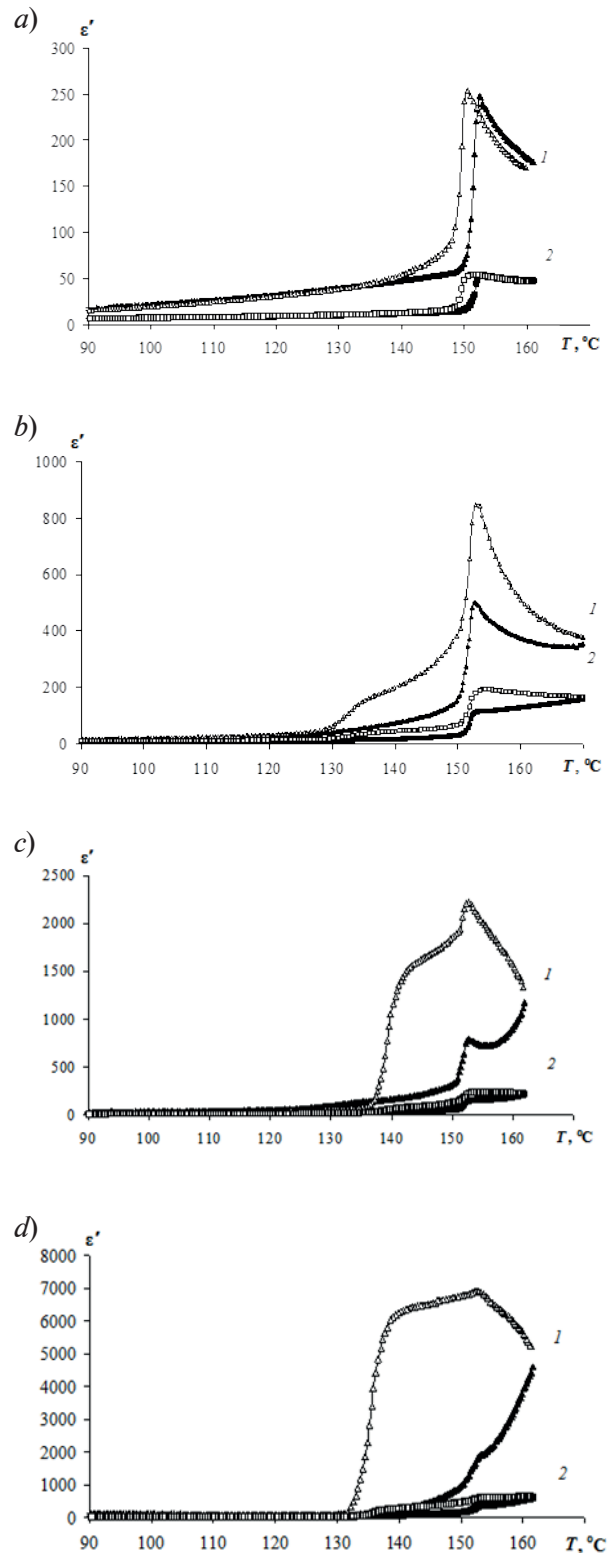


Рис. 1. Температурный ход диэлектрической проницаемости композита  $(C_6H_{16}NBr)_{1-x}/(PbTiO_3)_x$  при значениях  $x = 0$  (a), 0,1 (b), 0,2 (c), 0,3 (d), полученный на частотах 1 кГц (1) и 100 кГц (2) в режимах нагрева (темные маркеры) и охлаждения (светлые маркеры)

Таблица  
Изменение диэлектрических свойств композитов  
при увеличении содержания титаната свинца

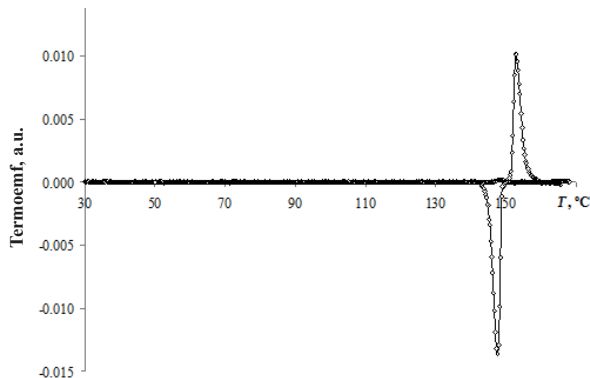
Состав	$\epsilon'_{\max}$	$(\text{tg}\delta)_{\max}$	$\epsilon'_{\max}$	$(\text{tg}\delta)_{\max}$
	10 <sup>3</sup> Гц		10 <sup>5</sup> Гц	
C <sub>6</sub> H <sub>16</sub> NBr	~250	~ 8	~55	~ 0,9
(C <sub>6</sub> H <sub>16</sub> NBr) <sub>0,9</sub> /(PbTiO <sub>3</sub> ) <sub>0,1</sub>	~900	~ 30	~190	~ 2,6
(C <sub>6</sub> H <sub>16</sub> NBr) <sub>0,8</sub> /(PbTiO <sub>3</sub> ) <sub>0,2</sub>	~2200	~ 40	~230	~ 3,5
(C <sub>6</sub> H <sub>16</sub> NBr) <sub>0,7</sub> /(PbTiO <sub>3</sub> ) <sub>0,3</sub>	~7000	~ 90	~550	~ 6,0

Из приведенных зависимостей  $\epsilon'(T)$  следует, что с увеличением содержания титаната свинца, во-первых, растет максимальное значение диэлектрической проницаемости  $\epsilon'_{\max}$ , а во-вторых, для композитов на кривой  $\epsilon'(T)$  при охлаждении появляется дополнительная аномалия в температурном интервале 133 – 137 °С,

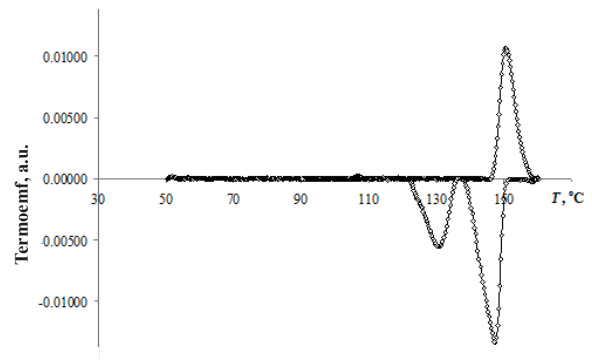
которая отсутствует на соответствующей кривой для чистого C<sub>6</sub>H<sub>16</sub>NBr.

В таблице приведены максимальные значения диэлектрической проницаемости  $\epsilon'_{\max}$  композитов, имеющих состав с разным содержанием объемной доли частиц-включений титаната свинца, на частотах 10<sup>3</sup> и 10<sup>5</sup> Гц.

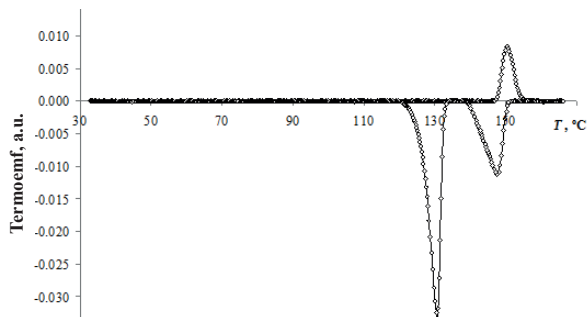
a)



b)



c)



d)

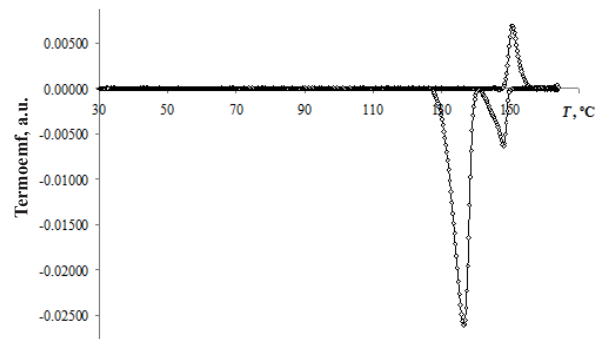


Рис. 2. Относительные изменения термоэдс для образцов композита (C<sub>6</sub>H<sub>16</sub>NBr)<sub>1-x</sub>/(PbTiO<sub>3</sub>)<sub>x</sub> при значениях x = 0 (a), 0,1 (b), 0,2 (c), 0,3 (d); положительный сигнал – нагрев, отрицательный – охлаждение

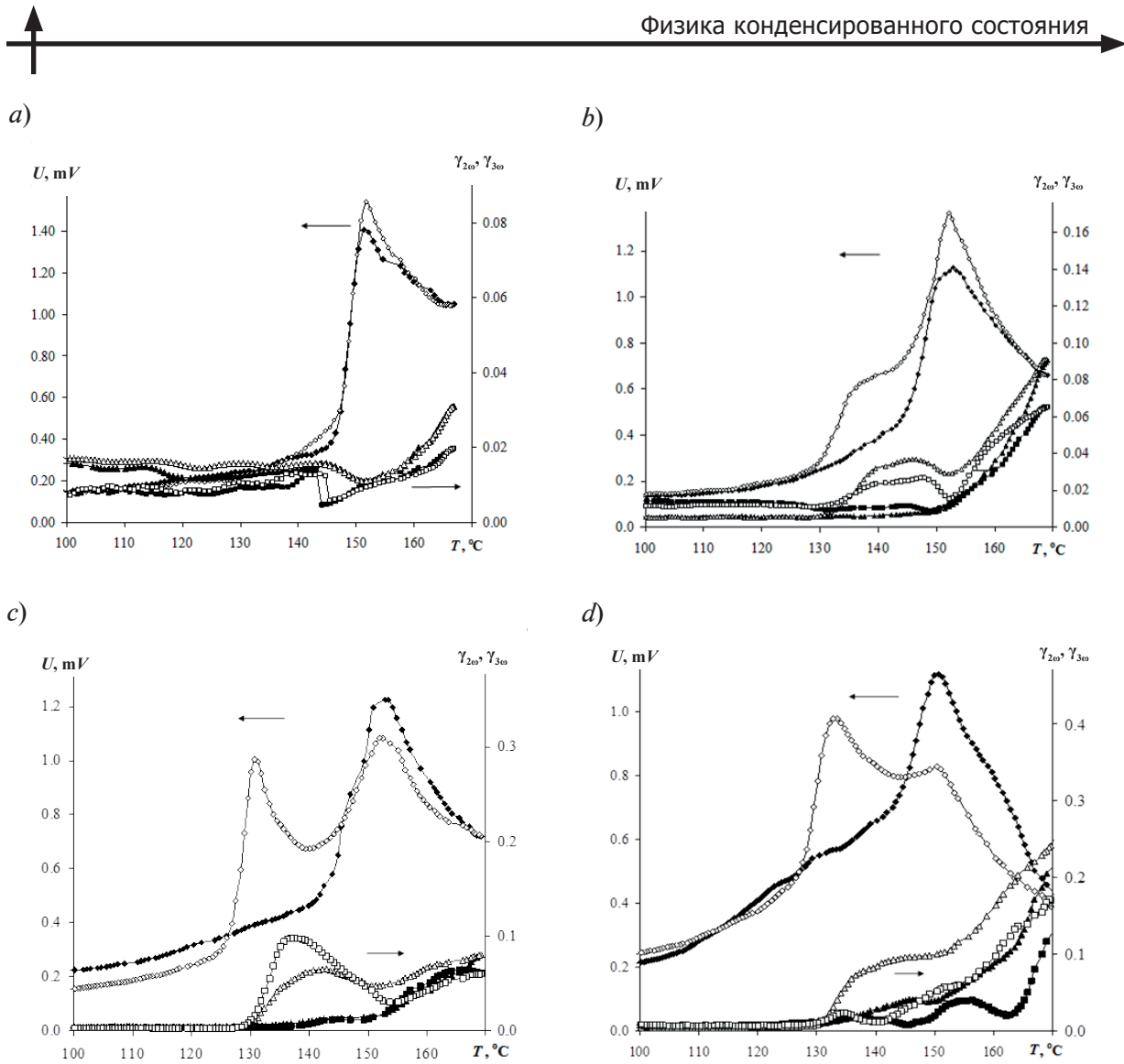


Рис. 3. Температурные зависимости емкостной составляющей сигнала на основной частоте  $\omega$  (левые оси) и коэффициентов второй ( $\gamma_{2\omega}$ ) и третьей ( $\gamma_{3\omega}$ ) гармоник (правые оси) для композитов  $(C_6H_{16}NBr)_{1-x}/(PbTiO_3)_x$  при значениях  $x = 0$  (a), 0,1 (b), 0,2 (c), 0,3 (d); темные маркеры – нагрев, светлые – охлаждение

Как показали калориметрические исследования (рис. 2), добавление титаната свинца индуцирует дополнительный фазовый переход при охлаждении, природа которого пока не до конца понятна. При этом с увеличением доли частиц титаната свинца в композите интенсивность сигнала для этого дополнительного перехода возрастает.

Для определения характера структуры, возникающей между двумя фазовыми переходами при охлаждении, объекты были изучены методом нелинейной диэлектрической спектроскопии (НДС). На рис. 3 приведены температурные зависимости основного сигнала на частоте 2 кГц и коэффициентов второй (4 кГц) и третьей (6 кГц) гармоник.

Как было показано в работе [13] для сегнетоэлектриков с фазовым переходом первого рода, нелинейные диэлектрические проницаемости выражаются как

$$\epsilon_2 = -(3\beta + 10\gamma P_s^2) P_s \chi_1^3; \quad (1)$$

$$\epsilon_3 = \left[ -\beta - P_s^2 (10\gamma + 18\beta^2 \chi_1 + 120\chi_1 \beta \gamma P_s^2) + 200\chi_1 \gamma^2 P_s^4 \right] \chi_1^4, \quad (2)$$

где  $\chi_1$  – диэлектрическая восприимчивость;  $P_s$  – спонтанная поляризация;  $\beta$ ,  $\gamma$  – коэффициенты разложения Ландау.

Из выражения (2) можно видеть, что проницаемость третьего порядка значительно возрастает в полярной фазе за счет

возникновения спонтанной поляризации и имеет минимум в точке фазового перехода. Таким образом, исследование температурной зависимости генерации третьей гармоники является прямым методом регистрации сегнетоэлектрического состояния.

Из графиков, приведенных на рис. 3, следует, что в поведении величины  $\gamma_{3\omega}$  для чистого  $C_6H_{16}NBr$  наблюдается некоторая аномалия, которая вблизи сегнетоэлектрического фазового перехода равна примерно 1,5 %. Для состава  $(C_6H_{16}NBr)_{0,9}/(PbTiO_3)_{0,1}$  в температурном интервале 133 – 137 °С, значение  $\gamma_{3\omega}$  при охлаждении составляет около 2,5 %, а  $\gamma_{2\omega}$  – примерно 7,5%. Для состава  $(C_6H_{16}NBr)_{0,8}/(PbTiO_3)_{0,2}$  величина  $\gamma_{3\omega}$  в температурном интервале 133 – 137 °С достигает значения около 30%, а  $\gamma_{2\omega}$  – примерно 5 %. При дальнейшем увеличении содержания титаната свинца в композите, для состава  $(C_6H_{16}NBr)_{0,7}/(PbTiO_3)_{0,3}$  значение  $\gamma_{3\omega}$  снижается примерно до 5%, а  $\gamma_{2\omega}$  возрастает до 20%.

Полученные экспериментальные данные по НДС позволяют утверждать, что в интервале 137 – 133 °С, при охлаждении, в композите присутствуют две фазы соединения  $C_6H_{16}NBr$ : сегнетоэлектрическая  $P2_1$  и не-сегнетоэлектрическая  $P2_1/m$ . Наличие более четких аномалий на фазовых переходах для емкостной составляющей сигнала через образец, по сравнению с зависимостью  $\epsilon'(T)$ , обусловлено образованием в компо-

зите барьерных переходов на границах соединений  $C_6H_{16}NBr$  и  $PbTiO_3$ , которые при малых значениях подаваемого напряжения работают как емкости, давая значительный вклад в эффективную диэлектрическую проницаемость. При измерительном напряжении свыше 3 В, этот механизм включается и эффективная диэлектрическая проницаемость снижается.

### Заключение

Как показали исследования диэлектрических свойств композита  $(C_6H_{16}NBr)_{1-x}/(PbTiO_3)_x$ , увеличение значения  $x$  приводит к размытию фазовых переходов и росту величин  $\epsilon'$  и  $\text{tg}\delta$  (см. таблицу). Возрастание проницаемости, вероятно, обусловлено барьерными механизмами, о чем свидетельствует зависимость диэлектрических свойств от амплитуды измерительного поля и его частоты. Анализ данных калориметрических измерений позволил обнаружить возникновение дополнительного фазового перехода, удельная теплота которого растет с увеличением значения  $x$ . Появление дополнительного фазового перехода можно объяснить электрическим взаимодействием частиц бромида диизопропиламония и титаната свинца в композите.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ. Грант № 19-29-03004.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Исупов В.А. Природа физических явлений в сегнеторелаксорах // ФТТ. 2003. Т. 45. № 6. С. 1056–1060.
2. Вугмейстер Б.Е., Глинчук М.Д. Особенности кооперативного поведения параэлектрических дефектов в сильно поляризуемых кристаллах // ЖЭТФ. 1980. Т. 79. № 3. С. 947–952.
3. Вугмейстер Б.Е., Глинчук М.Д. Кооперативные явления в кристаллах с нецентральными ионами – дипольное стекло и сегнетоэлектричество // УФН. 1985. Т. 146. № 3. С. 459–491.
4. Stukova E.V., Baryshnikov S.V. Stabilization of the ferroelectric phase in  $(KNO_3)_{1-x}-(BaTiO_3)_x$  composites // Inorganic Materials: Applied Research. 2011. Vol. 2. No. 5. Pp. 434–438.
5. Стукова Е.В., Барышников С.В. Диэлектрические исследования сегнетоэлектрических композитов на основе  $(KNO_3)_{1-x}$ - $(KNbO_3)_x$  // Перспективные материалы. 2011. № 13. С. 801–805.
6. Baryshnikov S.V., Stukova E.V., Koroleva E.Yu. Dielectric properties of the ferroelectric composite  $(NaNO_2)_{0,9}/(BaTiO_3)_{0,1}$  // Composites. Part B. 2014. Vol. 66. November. Pp. 190–193.
7. Baryshnikov S., Milinskiy A., Stukova E. Dielectric properties of the ferroelectric composites  $[AgNa(NO_2)_2]_{0,9}/[NaNO_2]_{0,1}$  and  $[AgNa(NO_2)_2]_{0,9}/[BaTiO_3]_{0,1}$  // Ferroelectrics. 2018. Vol. 536. No. 1. Pp. 91–98.
8. Fu D.-W., Zhang W., Cai H.-L., Ge J.-Z., Zhang Y., Xiong R.-G. Diisopropylammonium chloride: a ferroelectric organic salt with a high phase transition temperature and practical utilization level of spontaneous polarization // Advanced Materials. 2011. Vol. 23. No. 47. Pp. 5658–5662.
9. Fu D.-W., Cai H.-L., Liu Y., Ye Q., Zhang W., Zhang Y., Chen X.-Y., Giovannetti G., Capone



M., Li J., Xiong R.-G. Diisopropylammonium bromide is a high-temperature molecular ferroelectric crystal // Science. 2013. Vol. 339. No. 6118. Pp. 425–428.

10. Jiang C., Tong W.-Y., Lin H., Luo C., Peng H., Duan C.-G. Effect of counter anions on ferroelectric properties of diisopropylammonium cation based molecular crystals // Physica Status Solidi. A. 2017. Vol. 214. No. 6. P. 1700029.

11. Piecha A., Gagor A, Jakubas R., Szklarz P. Room-temperature ferroelectricity in diisopropylammonium bromide // CrystEngComm. 2013. Vol. 15. No. 5. Pp. 940–944.

12. Лайнс М., Гласс А. Сегнетоэлектрики и

родственные им материалы. Пер. с англ. под ред. Леманова В.В., Смоленского Г.А. М.: Мир, 1981. 736 с.

13. Ikeda S., Kominami H., Koyama K., Wada Y.J. Nonlinear dielectric constant and ferroelectric-to-paraelectric phase transition in copolymers of vinylidene fluoride and trifluoroethylene // Appl. Phys. 1987. Vol. 62. No. 8. Pp. 3339–3342.

14. Барышников С.В., Чарная Е.В., Миллинский А.Ю., Шацкая Ю.А., Michel D. Диэлектрические и калориметрические исследования  $\text{KNO}_3$  в порах наноразмерных силикатных матриц МСМ-41 // ФТТ. 2012. Т. 54. № 3. С. 594–599.

*Статья поступила в редакцию 30.09.2019, принята к публикации 22.10.2019.*

### СВЕДЕНИЯ ОБ АВТОРАХ

**БАРЫШНИКОВ Сергей Васильевич** – доктор физико-математических наук, профессор кафедры физического и математического образования Благовещенского государственного педагогического университета, г. Благовещенск, Российская Федерация.

675000, Российская Федерация, Амурская область, г. Благовещенск, ул. Ленина, 104  
svbar2003@list.ru

**СТУКОВА Елена Владимировна** – доктор физико-математических наук, профессор кафедры физики Амурского государственного университета, г. Благовещенск, Российская Федерация.

675027, Российская Федерация, Амурская область, г. Благовещенск, Игнатьевское шоссе, 21  
lenast@bk.ru

**МЕРЕДЕЛИНА Татьяна Александровна** – кандидат физико-математических наук, доцент кафедры физического и математического образования Благовещенского государственного педагогического университета, г. Благовещенск, Российская Федерация.

675000, Российская Федерация, Амурская область, г. Благовещенск, ул. Ленина, 104  
biofirm@mail.ru

### REFERENCES

1. Isupov V.A., Nature of physical phenomena in ferroelectric relaxors, Physics of the Solid State. 45 (6) (2003) 1107–1111.

2. Vugmeister B.E., Glinchuk M.D., Some features of the cooperative behavior of paraelectric defects in strongly polarizable crystals, JETP. 52 (3) (1980) 482–484.

3. Vugmeister B.E., Glinchuk M.D., Cooperative phenomena in crystals containing off-center ions-dipole glass and ferroelectricity, Physics-Uspekhi. 28 (7) (1985) 589–607.

4. Stukova E.V., Baryshnikov S.V., Stabilization of the ferroelectric phase in  $(\text{KNO}_3)_{1-x}-(\text{BaTiO}_3)_x$  composites, Inorganic Materials: Applied Research. 2 (5) (2011) 434–438.

5. Stukova E.V., Baryshnikov S.V., Dielektricheskiye issledovaniya segnetoelektricheskikh kompozitov na osnove  $(\text{KNO}_3)_{1-x}-(\text{KNbO}_3)_x$  [Dielectric studies of ferroelectric composites based on  $(\text{KNO}_3)_{1-x}-(\text{KNbO}_3)_x$ ], Perspektivnyye Materialy. 13 (2011) 801–805.

6. Baryshnikov S.V., Stukova E.V., Koroleva E.Yu., Dielectric properties of the ferroelectric composite  $(\text{NaNO}_2)_{0.9}/(\text{BaTiO}_3)_{0.1}$ , Composites: Part B. 66 (November) (2014) 190–193.

7. Baryshnikov S., Milinskiy A., Stukova E., Dielectric properties of the ferroelectric composites  $[\text{AgNa}(\text{NO}_2)_2]_{0.9}/[\text{NaNO}_2]_{0.1}$  and  $[\text{AgNa}(\text{NO}_2)_2]_{0.9}/[\text{BaTiO}_3]_{0.1}$ , Ferroelectrics. 536

(1) (2018) 91–98.

8. **Fu D.-W., Zhang W., Cai H.-L., et al.**, Diisopropylammonium chloride: a ferroelectric organic salt with a high phase transition temperature and practical utilization level of spontaneous polarization, *Advanced Materials*. 23 (47) (2011) 5658–5662.

9. **Fu D.-W., Cai H.-L., Liu Y., et al.**, Diisopropylammonium bromide is a high-temperature molecular ferroelectric crystal, *Science*. 339 (6118) (2013) 425–428.

10. **Jiang C., Tong W.-Y., Lin H., et al.**, Effect of counter anions on ferroelectric properties of diisopropylammonium cation based molecular crystals, *Physica Status Solidi, A*. 214 (6) (2017) 1700029.

11. **Piecha A., Gagor A., Jakubas R.,**

**Szklarz P.**, Room-temperature ferroelectricity in diisopropylammonium bromide, *CrystEngComm*. 15 (5) (2013) 940–944.

12. **Lines M.E., Glass A.M.**, Principles and application of ferroelectrics and related materials, Oxford, “Clarendon Press Oxford”, 1977.

13. **Ikeda S., Kominami H., Koyama K., Wada Y.J.**, Nonlinear dielectric constant and ferroelectric-to-paraelectric phase transition in copolymers of vinylidene fluoride and trifluoroethylene, *Appl. Phys.* 62 (8) (1987) 3339–3342.

14. **Baryshnikov S.V., Charnaya E.V., Milinskii A.Yu., et al.**, Dielectric and calorimetric investigations of  $\text{KNO}_3$  in pores of nanoporous silica matrices MCM-41, *Physics of the Solid State*. 54 (3) (2012) 636–641.

*Received 30.09.2019, accepted 22.10.2019.*

#### THE AUTHORS

**BARYSHNIKOV Sergey V.**

*Blagoveshchensk State Pedagogical University*

104 Lenina St., Blagoveshchensk, 675000, Russian Federation  
svbar2003@list.ru

**STUKOVA Elena V.**

*Amur State University*

21 Ignatievskoe Ave., Blagoveshchensk, 675027, Russian Federation  
lenast@bk.ru

**MEREDELINA Tatiana A.**

*Blagoveshchensk State Pedagogical University*

104 Lenina St., Blagoveshchensk, 675000, Russian Federation  
biofirm@mail.ru