

## ЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ И ДИЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА СТЕКОЛ СИСТЕМЫ $Sb_2O_3-PbCl_2-AgCl$ <sup>1</sup>

© 2021 г. О. Бошак<sup>a, \*</sup>, М. Кублиха<sup>a</sup>, П. Костка<sup>b, c</sup>, С. Минарик<sup>a</sup>, М. Доманкова<sup>a</sup>, Д. Ле Кок<sup>d</sup>

<sup>a</sup>Словацкий Технологический Университет, ул. Боттова, 25, Трнава, 91724 Словакия

<sup>b</sup>Институт структуры горных пород и механики Чешской Академии наук,  
ул. В Холешовичках, 41, Прага 8, 18209 Чешская Республика

<sup>c</sup>Пражский Химико-технологический Университет, ул. Техница, 5, Прага 6, 616628 Чешская Республика

<sup>d</sup>Университет Ренна, Ренн, F-35000 Франция

\*e-mail: [ondrej.bosak@stuba.sk](mailto:ondrej.bosak@stuba.sk)

Поступила в редакцию 30.09.2020 г.

После доработки 09.12.2020 г.

Принята к публикации 14.02.2021 г.

Электрические и диэлектрические свойства тройных стекол системы  $Sb_2O_3-PbCl_2-AgCl$  исследованы в широком интервале температур и частот переменного тока. Данную систему выбрали для исследования, потому что она обладает высокой ионной проводимостью. Стекла состава  $(Sb_2O_3)_x-(PbCl_2)_{100-y-x}-(AgCl)_y$  готовили из высокочистых компонентов методом плавления–закалки. Различные партии таких стекол исследовали, варьируя мольное содержание как  $Sb_2O_3$  ( $45 \leq x \leq 70$  мол. %), так и  $AgCl$  ( $5 \leq y \leq 25$  мол. %). Цвет приготовленных сурьмяно-хлоридных стекол варьирует от желтого до коричневого. Температура стеклования уменьшается с ростом концентрации  $AgCl$ . Электропроводность на постоянном и переменном токе и комплексный электрический модуль измеряли в интервале от комнатной температуры до температуры  $200^\circ C$  и в интервале частот от 0.2 до  $10^5$  Гц. Зависимость электропроводности на постоянном токе от температуры подчиняется уравнению Аррениуса. Электропроводность на постоянном токе при постоянной температуре существенно растет с ростом содержания  $AgCl$  или  $PbCl_2$  в стекле. Установлено, что энергия активации проводимости уменьшается после замены  $PbCl_2$  на  $AgCl$  с 1 до 0.56 эВ для стекол  $(Sb_2O_3)_{50}-(PbCl_2)_{45}-(AgCl)_5$  и  $(Sb_2O_3)_{50}-(PbCl_2)_{25}-(AgCl)_{25}$ . Обсуждается влияние состава исследованных стекол на их электропроводность на переменном токе.

**Ключевые слова:** стекла на основе оксида сурьмы, электропроводность, ионная проводимость, комплексный электрический модуль

DOI: 10.31857/S0424857021070045

### ВВЕДЕНИЕ

Стекла на основе оксида сурьмы – из большого семейства стекол на основе оксидов тяжелых металлов – весьма перспективны для применений в устройствах нелинейной оптики, таких как сверхбыстрые оптические переключатели и ограничители мощности [1–4]. Они также перспективны для применений в широкополосных оптических усилителях вблизи длины волны 1.5 мкм; силикатные стекла, содержащие сурьму, пробовали применять для оптического усиления в коммуникациях в полосе С (1530–1560 нм) [5].

В системе  $(Sb_2O_3)_{1-x}-(PbCl_2)_x$  образуются стабильные бинарные стекла [6, 7], в них вводят до-

бавки оксидов других металлов, таких как  $MoO_3$  или  $TeO_2$  или галогенидов металлов ( $CuI$ ,  $LiCl$ ,  $ZnCl_2$ ) [7–15].

Система стекол  $Sb_2O_3-PbCl_2-AgCl$  особенно интересна своей высокой ионной электропроводностью, которой она обязана присутствию  $Ag$ . В дополнение к высокой электропроводности, эти стекла прозрачны в широком интервале длин волн света (400 нм–6.5 мкм) и потому перспективны для применений в оптоэлектронике [16].

В настоящей работе исследованы стекла, принадлежащие к семействам различного состава, среди которых  $[Sb_2O_3] \in (45;70)$ ,  $[PbCl_2] \in (5;40)$  и  $[AgCl] \in (5;25)$ . Приводятся температуры стеклования  $T_g$  приготовленных стекол. Более того, электрические и диэлектрические свойства стекол состава  $Sb_2O_3-PbCl_2-AgCl$  приведены в ши-

<sup>1</sup> По материалам доклада на 15-м Международном совещании “Фундаментальные проблемы ионники твердого тела”, Черногоровка, 30.11.–07.12.2020.

роком интервале температур и частот. Это позволило исследовать зависимости электропроводности на постоянном и переменном токе, а также диэлектрические свойства образцов стекол.

### ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Стекла готовили, используя стандартные стадии процесса: плавление гомогенизированной смеси исходных соединений, рафинирование, охлаждение, отливание расплава и отжиг стеклянных слитков. Исходные материалы – 99.9%  $\text{Sb}_2\text{O}_3$  (Acros organics), 99%  $\text{PbCl}_2$  (Hichem) и 99.9%  $\text{AgCl}$  (Alfa Aesar) – тщательно смешивали в агатовой ступке и помещали в плавильную трубку из диоксида кремния. Диоксид кремния – не идеальный материал для приготовления стекол, потому что он постепенно разбавляет расплав стекла. Однако он лучше, чем платина или золото: на оба этих металла могут воздействовать частицы металлов, образующиеся в реакциях окисления–восстановления во время нагревания шихты и процесса плавления стекла [16]. Концентрацию  $\text{SiO}_2$  в расплаве удается удерживать ниже наименьшей определяемой концентрации в полуколичественном анализе методом дифференциальной сканирующей калориметрии при условии, что время плавления установлено таким коротким, как это только возможно для получения гомогенного расплава стекла [7]. Во время плавления стекла плавильная трубка заполняется парами от расплава стекла, и это дает возможность избежать контакта расплава с окружающим воздухом и продуктами горения из пламени, используемого для нагревания.

После рафинирования при, приблизительно,  $850^\circ\text{C}$  расплав быстро охлаждали до, приблизительно,  $600^\circ\text{C}$  и выливали на латунную пластинку, предварительно нагретую до  $250^\circ\text{C}$  (близко к температуре стеклования  $T_g$ ). После затвердевания образец помещали в печь, нагретую до температуры  $T_g$ , с тем, чтобы снять термически наведенные напряжения. Через несколько часов выдержки при температуре  $T_g$  печь медленно охлаждали до комнатной температуры [17].

Температуру стеклования  $T_g$  определяли по линейному наклону при скорости нагрева  $10^\circ\text{C}/\text{мин}$ , используя дифференциальный сканирующий калориметр TA Instruments DSC Q20.

Образцы для измерения электрических и диэлектрических свойств отрезали и полировали, контактные поверхности покрывали слоем проводящего графита. Проводимость на постоянном токе определяли, измеряя электрический ток, проходящий через образец при постоянном напряжении 10 В, наложенном с помощью прибора Novocontrol Concept 90 в интервале температур 20– $200^\circ\text{C}$ . Ток измеряли пикоамперметром

Keithley 6517В, а температуру – Pt/PtRh-термопарой, с точностью  $\pm 1^\circ\text{C}$ . Температурную зависимость проводимости на постоянном токе измеряли при увеличении температуры со скоростью  $5^\circ\text{C}/\text{мин}$  [16].

Измерения на переменном токе (от 20 до  $150^\circ\text{C}$ ) проводили с помощью высокочастотного LCR-тестера Hioki 3522-50 в области частот 100 Гц–100 кГц. Их вели ступенями по  $10^\circ\text{C}$ , с выдержкой при постоянной температуре в течение 20 мин [9, 18, 19]. В типичном случае с ростом частоты влияние электронного переноса увеличивалось, так что при высоких частотах можно видеть влияние химических элементов, которые существуют в различных валентных состояниях ( $\text{Sb}^{3+}$ ,  $\text{Sb}^{5+}$ ,  $\text{W}^{6+}$ ,  $\text{W}^{5+}$ ).

### РЕЗУЛЬТАТЫ

В табл. 1 даны аббревиатуры составов стекол и, соответственно, их составы, выраженные в мольных процентах. Таблица также суммирует электрические и диэлектрические свойства, которые будут описаны ниже. На рис. 1 показаны зависимости температуры стеклования  $T_g$  от содержания  $\text{AgCl}$  в исследованных стеклах  $\text{Sb}_2\text{O}_3$ – $\text{PbCl}_2$ – $\text{AgCl}$ . Значение  $T_g$  уменьшается с ростом содержания  $\text{AgCl}$  в обоих стеклах с содержанием 50 и 70 мол. %  $\text{Sb}_2\text{O}_3$ . Температурная зависимость проводимости на постоянном токе  $\sigma_{\text{dc}}$  для исследованных стекол показана на рис. 2. В интервале температур между комнатной температурой и  $200^\circ\text{C}$  эта зависимость подчиняется уравнению Аррениуса:

$$\sigma_{\text{dc}} = \sigma_0 \exp(iE_{\text{dc}}/kT), \quad (1)$$

где  $\sigma_0$  – предэкспоненциальный множитель,  $E_{\text{dc}}$  – энергия активации проводимости,  $k$  – постоянная Больцмана,  $T$  – термодинамическая температура. Найденные параметры уравнения (1) для линейных участков температурной зависимости проводимости на постоянном токе приведены в табл. 1.

Проводимость на переменном токе  $\sigma_{\text{ac}}$  стекол  $\text{Sb}_2\text{O}_3$ – $\text{PbCl}_2$ – $\text{AgCl}$  возрастает с ростом температуры и частоты. На рис. 3 показаны частотные зависимости проводимости на переменном токе, измеренные при  $150^\circ\text{C}$ . Зависимость проводимости на переменном токе от частоты можно описать следующей формулой:

$$\sigma_{\text{ac}} = \sigma_{01} + Af^n, \quad (2)$$

где  $f$  – частота,  $A$  и  $n$  – параметры. Значение  $\sigma_{01}$  соответствует проводимости на постоянном токе, эти значения для температуры  $150^\circ\text{C}$  приведены в табл. 1. Значение  $\sigma_{01}$  может содержать ошибку, потому что оно получено экстраполяцией, а также из-за того, что вклад других носителей элект-

**Таблица 1.** Параметры стекол  $\text{Sb}_2\text{O}_3\text{--PbCl}_2\text{--AgCl}$ : аббревиатуры составов стекол, составы в мол. %, энергии активации проводимости  $E_{\text{dc}}$ , предэкспоненциальные множители  $\sigma_0$ , электропроводность  $\sigma_{\text{dc}}$  при  $150^\circ\text{C}$ . Параметры частотной зависимости проводимости на переменном токе вычислены с помощью аппроксимации уравнения  $\sigma_{\text{ac}}(f) = \sigma_{01} + Af^n$  из результатов измерений при  $150^\circ\text{C}$

Образец	Символ	$\text{Sb}_2\text{O}_3$ , %	$\text{PbCl}_2$ , %	$\text{AgCl}$ , %	$E_{\text{dc}}$ , эВ	$\sigma_{\text{dc}} \times 10^9$ ( $150^\circ\text{C}$ ), СМ/М	$\sigma_{01} \times 10^9$ ( $150^\circ\text{C}$ ), СМ/М	$A \times 10^9$ ( $150^\circ\text{C}$ ), СМ/М	$N$ ( $150^\circ\text{C}$ )	$E_{\text{r}}$ , эВ
A45-05	■	50	45	05	$1.00 \pm 0.01$	2.12	$9.6 \pm 1.7$	$0.11 \pm 0.01$	$0.77 \pm 0.02$	
A40-10	●	50	40	10	$0.91 \pm 0.01$	37.20	$54 \pm 4$	$1.3 \pm 0.1$	$0.68 \pm 0.01$	
A35-15	▲	50	35	15	$0.76 \pm 0.01$	598.8	$592 \pm 11$	$8.9 \pm 0.5$	$0.65 \pm 0.01$	$0.76 \pm 0.03$
A30-20	▼	50	30	20	$0.66 \pm 0.01$	6583	$8480 \pm 60$	$45 \pm 1$	$0.61 \pm 0.01$	$0.63 \pm 0.04$
A25-25	◆	50	25	25	$0.56 \pm 0.03$	36560	$63700 \pm 800$	$254 \pm 40$	$0.56 \pm 0.02$	$0.57 \pm 0.09$
V25-05	■	70	25	05	$0.98 \pm 0.03$	11.03	$27 \pm 3$	$0.50 \pm 0.06$	$0.69 \pm 0.01$	
V20-10	●	70	20	10	$0.90 \pm 0.01$	38.45	$65 \pm 5$	$1.3 \pm 0.1$	$0.69 \pm 0.01$	
V15-15	▲	70	15	15	$0.78 \pm 0.01$	334.2	$333 \pm 8$	$5.9 \pm 0.3$	$0.66 \pm 0.01$	$0.82 \pm 0.21$
V10-20	▼	70	10	20	$0.70 \pm 0.01$	1057	$1360 \pm 30$	$10 \pm 1$	$0.68 \pm 0.01$	$0.71 \pm 0.05$
V05-25	◆	70	05	25	$0.74 \pm 0.01$	383.8	$598 \pm 20$	$6.4 \pm 0.4$	$0.70 \pm 0.01$	$0.74 \pm 0.02$
D20-20	▲	60	20	20	$0.59 \pm 0.02$	15851	$42700 \pm 300$	$70.6 \pm 4$	$0.67 \pm 0.01$	$0.49 \pm 0.05$
D20-25	▼	55	20	25	$0.67 \pm 0.02$	12772	$21900 \pm 300$	$102 \pm 7$	$0.64 \pm 0.01$	
D20-30	◆	50	20	30	$0.61 \pm 0.02$	10943	$30200 \pm 200$	$84 \pm 8$	$0.62 \pm 0.01$	$0.63 \pm 0.03$
E30-05	■	65	30	05	$0.93 \pm 0.01$	63.44	$84 \pm 4$	$2.0 \pm 0.1$	$0.63 \pm 0.01$	
E30-10	●	60	30	10	$0.85 \pm 0.01$	623.7	$670 \pm 10$	$9.3 \pm 0.3$	$0.61 \pm 0.01$	
E30-15	▲	55	30	15	$0.74 \pm 0.01$	6866	$10460 \pm 80$	$53 \pm 3$	$0.60 \pm 0.01$	$0.70 \pm 0.03$
E30-20	▼	50	30	20	$0.73 \pm 0.01$	20840	$27200 \pm 300$	$108 \pm 8$	$0.64 \pm 0.01$	
E30-25	◆	45	30	25	$0.57 \pm 0.01$	23635	$107844 \pm 1500$	$647 \pm 70$	$0.54 \pm 0.02$	

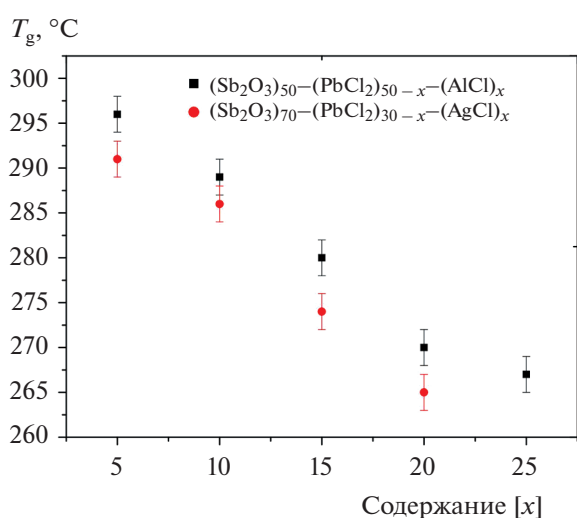
трического заряда (например, электронов) в проводимость на переменном токе при высоких частотах выражен сильнее, чем в измерениях на

постоянном токе (в исследованных стеклах — это главным образом ионная проводимость). Поэтому в ряде случаев значения  $\sigma_{\text{dc}}$  и  $\sigma_{01}$  могут значительно различаться между собой. С ростом содержания  $\text{PbCl}_2$  и  $\text{AgCl}$  параметр  $A$  возрастает, а показатель экспоненты  $n$  слегка уменьшается.

Диэлектрический отклик мы исследовали методом модульной спектроскопии. Комплексный электрический модуль  $M^*$  был введен в работах [20–22], как обратная величина комплексной диэлектрической проницаемости  $\epsilon^*$ , согласно следующему уравнению:

$$M^* = M' + jM'' = \left(\epsilon_r^*\right)^{-1}. \quad (3)$$

Измеряемые модульные спектры, т.е. зависимости комплексного электрического модуля на комплексной плоскости, показаны на рис. 4. При более низком содержании  $\text{AgCl}$  форма этих спектров — полуокружности с центром непосредственно под осью действительных значений; при высоких частотах появляются линейные «хвосты». В таких случаях диэлектрическую релаксацию можно охарактеризовать относительно узким интервалом времен релаксации. При более высоком содержании  $\text{AgCl}$  центры полуокружностей сме-



**Рис. 1.** Зависимость температуры стеклования  $T_g$  для двух рядов стекол:  $(\text{Sb}_2\text{O}_3)_{50}\text{--}(\text{PbCl}_2)_{50-x}\text{--}(\text{AgCl})_x$  и  $(\text{Sb}_2\text{O}_3)_{70}\text{--}(\text{PbCl}_2)_{30-x}\text{--}(\text{AgCl})_x$ , как функция концентрации  $\text{AgCl}$ .

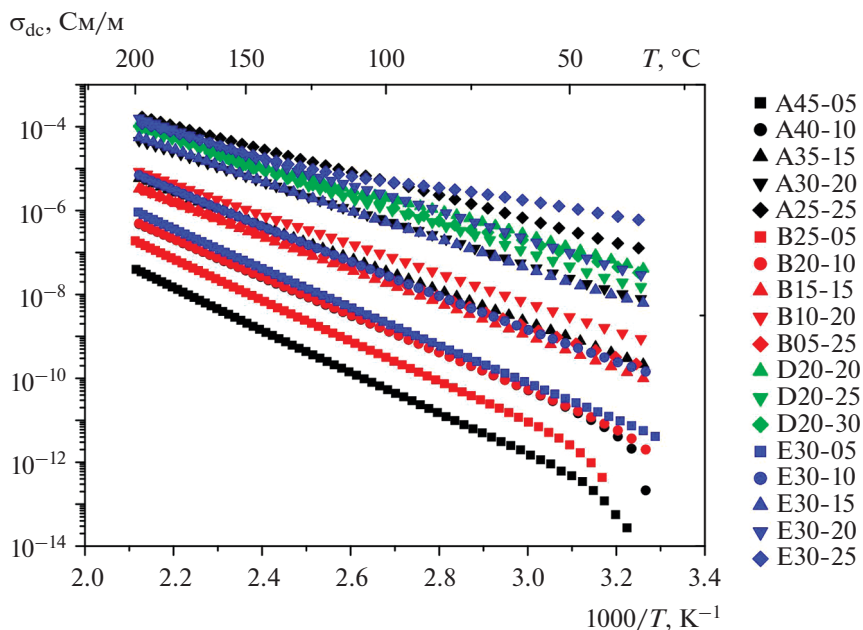


Рис. 2. Кривые температурной зависимости проводимости на постоянном токе стекол  $\text{Sb}_2\text{O}_3\text{--PbCl}_2\text{--AgCl}$ , измеренные в интервале температур 25–200°C. Образцы стекол, отвечающие графикам, обозначены на рисунке.

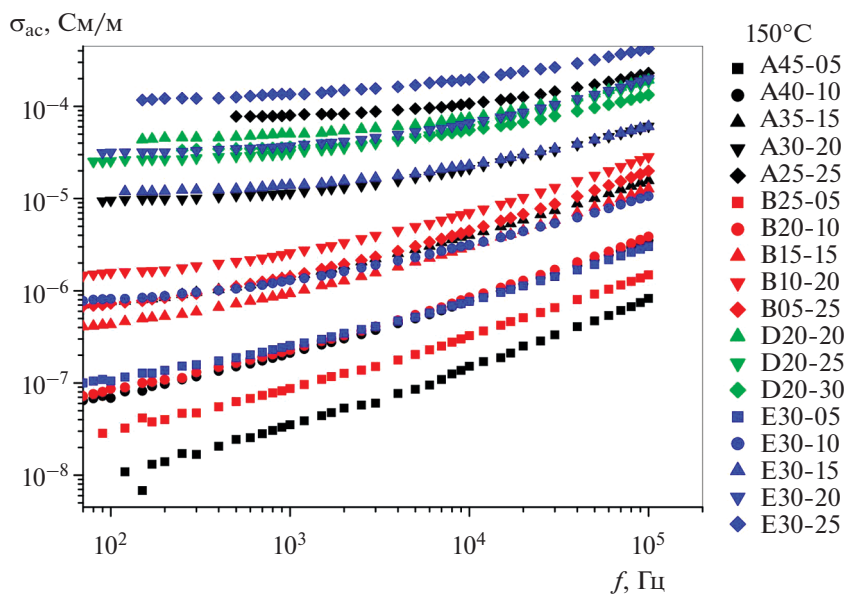


Рис. 3. Кривые частотной зависимости проводимости на переменном токе стекол  $\text{Sb}_2\text{O}_3\text{--PbCl}_2\text{--AgCl}$ , измеренные при 150°C. Образцы стекол, отвечающие графикам, обозначены на рисунке.

щаются вниз по отношению к оси действительных значений. Соответственно, интервал времен релаксации расширяется.

Времена релаксации, как функция температуры  $\tau = \tau(T)$ , были рассчитаны как обратные величины круговой частоты  $1/(2\pi f_m)$ , где  $f_m$  – частоты максимумов  $M''$ , полученных из частотной зави-

симости мнимой части комплексного электрического модуля. В качестве примера, на рис. 5 показаны такие зависимости  $M''$  при различных температурах для стекла E30-15. Для тех стекол, для которых времена релаксации поддаются определению, температурные зависимости времен релаксации подчиняются уравнению Аррениуса (см. рис. 6).

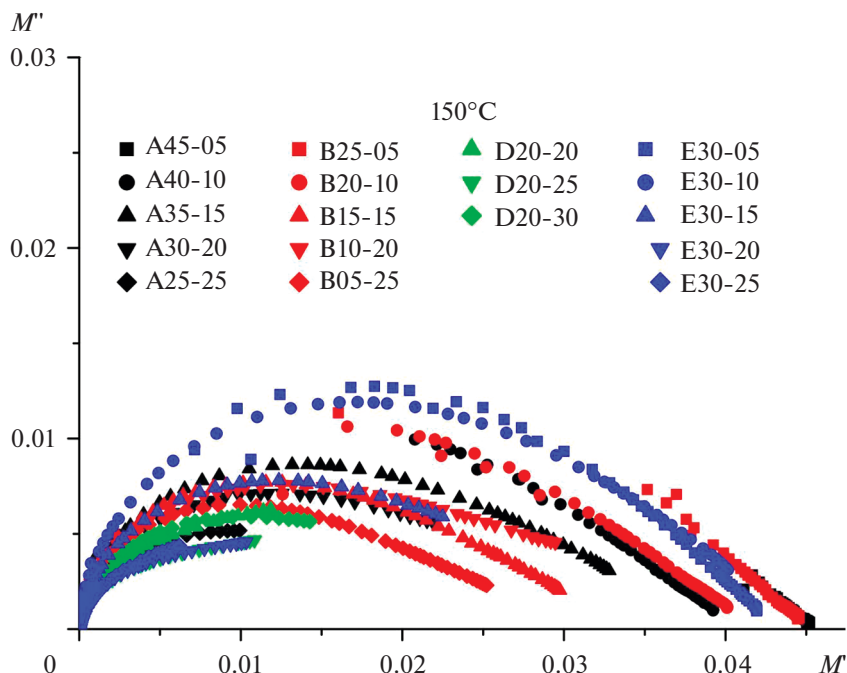


Рис. 4. Модульные диаграммы стекол  $\text{Sb}_2\text{O}_3\text{--PbCl}_2\text{--AgCl}$  при  $150^\circ\text{C}$ . Образцы стекол, отвечающие графикам, обозначены на рисунке.

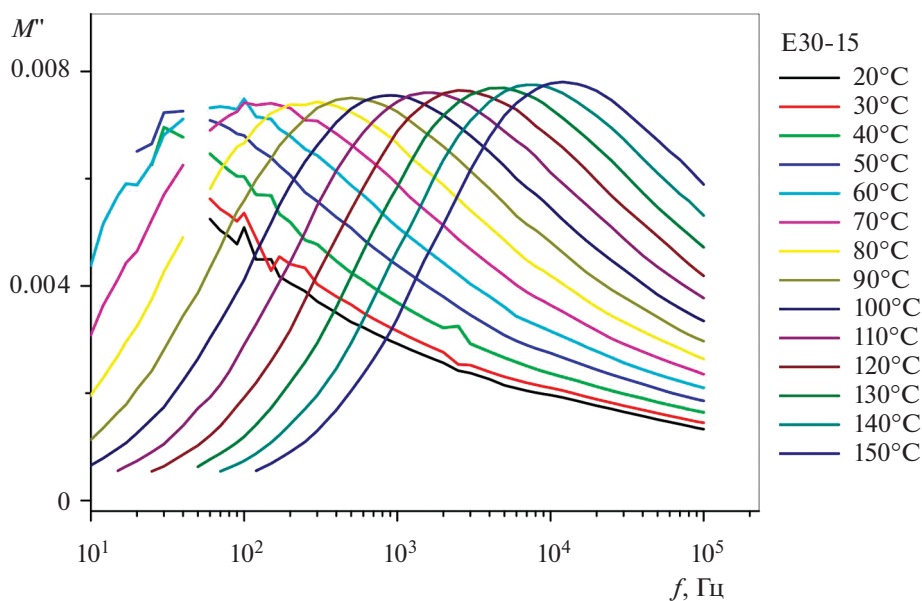


Рис. 5. Частотная зависимость мнимой части комплексного электрического модуля  $M''$  стекла  $(\text{Sb}_2\text{O}_3)_{55}\text{--}(\text{PbCl}_2)_{30}\text{--}(\text{AgCl})_{15}$  (E30-15) при различных температурах. Разными цветами обозначены разные температуры.

Энергия активации  $E_\tau$  диэлектрической релаксации аррениусовского типа определяется следующим выражением:

$$\tau = \tau_0 \exp(-E_\tau/kT), \quad (4)$$

где  $\tau_0$  — предэкспоненциальный множитель,  $E_\tau$  — энергия активации проводимости,  $k$  — постоянная Больцмана,  $T$  — термодинамическая температура. Значение  $E_\tau$  коррелирует со значением  $E_{dc}$  (табл. 1), т.е. на энергию активации диэлектриче-

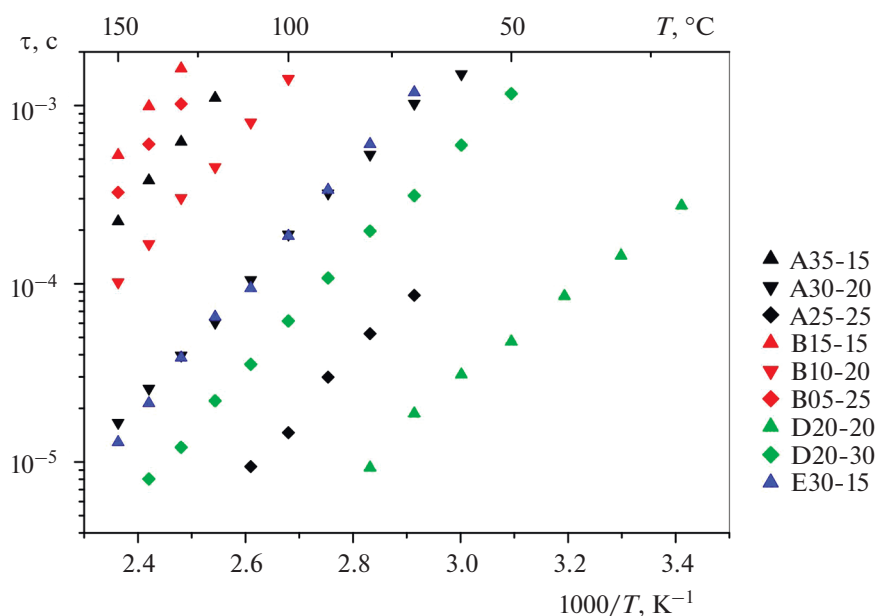


Рис. 6. Времена релаксации избранных стекол  $\text{Sb}_2\text{O}_3\text{—PbCl}_2\text{—AgCl}$  в зависимости от температуры. Образцы стекол, отвечающие графикам, обозначены на рисунке.

ской релаксации оказывает влияние перенос электрического заряда носителями того же типа.

## ОБСУЖДЕНИЕ

Уменьшение значений  $T_g$  с ростом содержания  $\text{AgCl}$  в исследованных стеклах соответствует роли  $\text{AgCl}$  в качестве модификатора в сетчатой структуре стекол на основе сурьмы. Согласно работе [16], рост мольной концентрации  $\text{AgCl}$  приводит к уменьшению  $T_g$  в результате образования более слабой химической связи  $\text{Ag—Cl}$  взамен более сильной связи  $\text{Sb—O}$ . Стекло может принять лишь ограниченное количество модификатора без ухудшения стабильности своей сетчатой структуры. Как следствие, при больших концентрациях  $\text{AgCl}$  устойчивость стекла и его плотность существенно снижаются. Что касается проводимости на постоянном токе, ее температурные зависимости хорошо описываются законом Аррениуса с единственным преобладающим механизмом переноса электрического заряда. Что касается состава стекла, возможными механизмами переноса можно считать поляронную проводимость  $\text{Sb}^{3+}\text{—Sb}^{5+}$  и проводимость посредством ионов  $\text{Ag}^+$  и  $\text{Cl}^-$ . Недавно сообщалось о переходе от поляронной проводимости к ионной проводимости посредством ионов  $\text{Ag}^+$  при более низких концентрациях  $\text{AgO}$  ( $>0.1$  мол. %) [23]. Можно предположить, что в стеклах  $\text{Sb}_2\text{O}_3\text{—PbCl}_2\text{—AgCl}$  ионы  $\text{Ag}^+$  являются основными носителями заряда. С ростом концентрации  $\text{AgCl}$  проводимость на постоянном токе возрастает, а энергия

активации проводимости уменьшается. Вклад ионов  $\text{Cl}^-$  в проводимость на постоянном токе, вероятно, незначителен. Проводимость на постоянном токе возрастает также при больших содержаниях  $\text{PbCl}_2$ . Важно, что это соединение повышает подвижность ионов вследствие релаксации в сетчатой структуре стекол и увеличения мольного объема [16]. Возможность переноса электрического заряда с помощью ионов  $\text{Cl}^-$  была подробно исследована в аналогичной системе стекол  $\text{Sb}_2\text{O}_3\text{—PbCl}_2\text{—LiCl}$  [14]. Анализ показал, что влияние ионов  $\text{Cl}^-$  на электропроводность ничтожно мало. Это означает, что проводимость на постоянном токе возрастает при высоком содержании  $\text{AgCl}$  и  $\text{PbCl}_2$  в результате расширения сетчатой структуры стекол, которое ведет к росту подвижности ионов. Более того, в случае  $\text{AgCl}$  увеличивается концентрация носителей заряда. Релаксация сетчатой структуры стекол связана с уменьшением энергии активации проводимости на постоянном токе в интервале от 1 эВ (стекло A45-05) до 0.56 эВ (A25-25). Стекло A25-25 демонстрирует наибольшую электропроводность при температуре  $150^\circ\text{C}$ .

При исследованных температурах проводимость на переменном токе возрастает с ростом круговой частоты и меняется по степенному закону в соответствии с уравнением (2). Изменяющиеся значения  $\sigma_{01}$  и  $A$  в табл. 1 свидетельствуют о том, что преобладающий механизм, лежащий в основе проводимости на переменном токе — это перенос электрического заряда носителями того же типа, что и в случае проводимости на постоян-

ном токе [ $\sigma_{dc}$  (150°C), см. табл. 1]. Форма измененных модульных спектров (рис. 4) указывает на то, что имеет место значительное влияние движение ионов. Энергия активации диэлектрической проницаемости соответствует энергии активации проводимости на постоянном токе. Это также указывает на существенный перенос ионов  $Ag^+$ .

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Результаты измерений электрических свойств и полученные зависимости параметров исследованных материалов указывают на то, что проводимость стекол состава  $Sb_2O_3-PbCl_2-AgCl$  демонстрирует поведение аррениусовского типа. Преобладающий механизм, лежащий в основе переноса зарядов в исследованных стеклах, — катионный, предполагающий движение ионов  $Ag^+$ . С другой стороны, вклад ионов  $Cl^-$  и электронов в перенос электрического заряда в исследованных материалах не очень существенный.

Значения проводимости на постоянном токе покрывают интервал шириной 5 порядков величины. Наивысшая проводимость на постоянном токе — около  $3.6 \times 10^{-5}$  См  $m^{-1}$  при 150°C, с энергией активации  $0.56 \pm 0.03$  эВ, — была получена для стекла  $(Sb_2O_3)_{50}-(PbCl_2)_{25}-(AgCl)_{25}$ . Выявлено положительное влияние добавок  $PbCl_2$  на подвижность носителей заряда — ионов  $Ag^+$ . Перенос электрического заряда ионами  $Ag^+$  влияет и на проводимость на переменном токе, и на диэлектрическую релаксацию стекол.

### ФИНАНСИРОВАНИЕ РАБОТЫ

Настоящая работа выполнена при финансовой поддержке Словацкого научного фонда, проекты VEGA 1/0235/18, VEGA 1/0144/20, APVV SK-FR-19-0007 и APVV DS-FR-19-0036, П. Костка благодарит Чешский научный фонд (проект № 19-07456S) и Министерство образования, молодежи и спорта Чешской республики (проект № 8X20053). Эта публикация поддержана Советом Европы через Европейский фонд регионального развития, Министерство высшего образования и науки региона Бретань и области Ренн (Франция).

### КОНФЛИКТ ИНТЕРЕСОВ

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

### ИНФОРМАЦИЯ О ВКЛАДЕ АВТОРОВ

Д. Ле Кок подготовил образцы стекол для эксперимента и выполнил эксперименты методом дифференциальной сканирующей калориметрии. О. Бошак и М. Кублиха измеряли электропроводность на постоянном токе и модульные спектры.

С. Минарик анализировал модульные спектры О. Бошак, М. Кублиха. М. Доманкова и П. Костка написали первую версию статьи. Все авторы участвовали в редактировании статьи и одобрили ее окончательную версию.

### ДОПОЛНИТЕЛЬНЫЕ МАТЕРИАЛЫ

ORCID ID авторов: О. Бошак (0000-0001-6467-5398), М. Кублиха (0000-0003-4987-6233), П. Костка (0000-0003-2868-1322), С. Минарик (0000-0002-6851-0053), М. Доманкова (0000-0002-0595-1943), Д. Ле Кок (0000-0001-7898-3463).

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Dubois, B., Aomi, H., Videau, J.J., Portier, J., and Hagenmuller, P., New oxyhalide glasses involving  $Sb_2O_3$ , *Mat. Res. Bull.*, 1984, vol. 19(10), p. 1317.
2. Zavadil, J., Ivanova, Z.G., Kostka, P., Hamzaoui, M., and Soltani, M.T., Photoluminescence study of Er-doped zinc-sodium-antimonite glasses, *J. Alloy. Compd.*, 2014, vol. 611, p. 111.
3. Soltani, M.T., Hamzaoui, M., Houhou, S., Touiri, H., Bediar, L., Ghemri, A.M., and Petkova, P., Physical characterization of  $Sb_2O_3-M_2O-MoO_3$  ( $M = Li, K$ ) new glasses. *Acta Phys. Pol., A*, 2013, vol. 123, p. 227.
4. Hamzaoui, M., Azri, S., Soltani, M.T., Lebullenger, R., and Poulain M., Thermal and elastic characterization of  $Sb_2O_3-Na_2O-ZnO$  glasses, *Phys. Scr.* 2013, vol. 157, p. 014029. <https://doi.org/10.1088/0031-8949/2013/T157/014029>
5. Minelly, J. and Ellison, A., Applications of Antimony-Silicate Glasses for Fiber Optic Amplifiers, *Opt. Fiber Technol.*, 2002, vol. 8, p. 123.
6. Dubois, B., Videau, J.J., Couzi, M., and Portier, J., Structural approach of the  $(xPbCl_2-(1-x)Sb_2O_3)$  glass system, *J. Non-Cryst. Solids*, 1986, vol. 88, p. 355.
7. Bošák, O., Kostka, P., Minárik, S., Trnovcová, V., Podolinčáková, J., and Zavadil, J., Influence of composition and preparation conditions on some physical properties of  $TeO_2-Sb_2O_3-PbCl_2$  glasses, *J. Non-Cryst. Solids*, 2013, vol. 377, p. 74.
8. Goumeidane, F., Legouera, M., Iezid, M., Poulain, M., Nazabal, V., and Lebullenger, R., Synthesis and physical properties of glasses in the  $Sb_2O_3-PbCl_2-MoO_3$  system, *J. Non-Cryst. Solids*, 2011, vol. 357, p. 3572.
9. Labaš, V., Poulain, M., Kubliha, M., Trnovcová, V., and Goumeidane, F., Electrical, dielectric and optical properties of  $Sb_2O_3-PbCl_2-MoO_3$  glasses, *J. Non-Cryst. Solids*, 2013, vol. 377, p. 66.
10. Macháček, J., Kostka, P., Liška, M., Zavadil, J., and Gedeon, O., Calculation and analysis of vibrational spectra of  $PbCl_2-Sb_2O_3-TeO_2$  glass from first principles, *J. Non-Cryst. Solids*, 2011, vol. 357, p. 2562.
11. Gedikoglu, N., Ersundu, M.C., Kostka, P., Basinova, N., and Ersundu, A.E., Investigating the influence of transition metal oxides on temperature dependent optical properties of  $PbCl_2-TeO_2$  glasses for their evaluation as transparent large band gap semiconductors, *J. Alloy. Compd.*, 2018, vol. 748, p. 687.

12. Poirier, G., Poulain, M., and Poulain, M., Copper and lead halogeno-antimonate glasses, *J. Non-Cryst. Solids*, 2001, vol. 284, p. 117.
13. Cozic, S., Bréhault, A., Usuki, T., and Le Coq, D.,  $\text{GeS}_2\text{-Ga}_2\text{S}_3\text{-LiCl}$  Glass System: Electrical Conductivity and Structural Considerations, *Int. J. Appl. Glass Science*, 2016, vol. 7(4), p. 513.
14. Castro, A., Bréhault, A., Carcreff, J., Bošák, O., Kubliha, M., Trnovcová, V., Dománková, M., Šiljegović, M., Calvez, L., Labaš, V., and Le Coq, D., Lithium and lead chloride antimonate glasses, *J. Non-Cryst. Solids*, 2018, vol. 499, p. 66.
15. Sahar, M.R., Ahmed, M.M., and Holland, D., The crystallisation of  $\text{Sb}_2\text{O}_3\text{-PbCl}_2\text{-ZnCl}_2$  glasses, *Phys. Chem. Glasses*, 1990, vol. 31(3), p. 126.
16. Yezli, D., Legouera, M., El Abdi, R., Poulain, M., and Burgaud, V., Mechanical, Thermal, and Optical Properties of New Chloroantimonite Glasses in the  $\text{Sb}_2\text{O}_3\text{-PbCl}_2\text{-AgCl}$  System, *Mat. Sci.*, 2016, vol. 52(1), p. 33.
17. Kubliha, M., *Investigating Structural Changes and Defects of Non-Metallic Materials via Electrical Methods*, 1st ed., Dresden: Forschungszentrum Dresden-Rossendorf, 2009.
18. Kalužný, J., Kubliha, M., Labaš, V., Poulain, M., and Taibi, Y., Electrical and dielectrical properties of  $\text{Sb}_2\text{O}_3\text{-V}_2\text{O}_5\text{-K}_2\text{O}$  glasses, *J. Non-Cryst. Solids*, 2009, vol. 355(37–42), p. 2031.
19. Kubliha, M., Soltani, M.T., Trnovcová, V., Legouera, M., Labaš, V., Kostka, P., Le Coq, D., and Hamzaoui, M., Electrical, dielectric, and optical properties of  $\text{Sb}_2\text{O}_3\text{-Li}_2\text{O-MoO}_3$  glasses, *J. Non-Cryst. Solids*, 2015, vol. 428, p. 42.
20. Moynihan, C.T., Boesch, L.P., and Laberge, N.L., Decay function for electric-field relaxation in-vitreous ionic conductors, *Phys.Chem. Glasses*, 1973, vol. 14, p. 122.
21. Molak, A., Paluch, M., Pawlus, S., Klimontko, J., Ujma, Z., and Gruszka, I., Electric modulus approach to the analysis of electric relaxation in highly conducting  $(\text{Na}_{0.75}\text{Bi}_{0.25})(\text{Mn}_{0.25}\text{Nb}_{0.75})\text{O}_3$  ceramics, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 2005, vol. 38, p. 1450.
22. Davidson, D.W. and Cole, R.H., Dielectric relaxation in glycerine, *J. Chem. Phys.*, 1950, vol. 18, p. 1417.
23. Ashok, J., Kostrzewa, M., Ingram, A., Venkatramaiyah, N., Srinivasa Reddy, M., Ravi Kumar, V., Piasecki, M., and Veeraiah, N., Structural and dielectric features of silver doped sodium antimonate glass ceramics, *J. Alloy. Compd.*, 2019, vol. 791, p. 278.