

电介质材料多通道介电温谱表征系统的研制及应用

孟祥达, 田浩, 王宇, 谭鹏, 胡程鹏

(哈尔滨工业大学物理学院, 哈尔滨 150001)

摘要: 电介质材料在电子、通讯、自动控制、信息计算机、医疗、机械、汽车、航空、航天、核技术、储能以及 5G 通讯等众多高技术领域中占据重要地位。介电性能是电介质材料最基本的性能, 决定了电介质材料应用的潜力及应用环境。目前, 现有的技术可以实现电介质材料室温介电常数的测试并且已经具有成熟测试设备, 但是对于材料的介电常数随温度的变化特性的表征手段还比较原始。从测试夹具设计出发, 完成高低温装置的构建, 结合现有的表征电介质材料介电常数的测试方法, 完成系统的搭建及应用实例分析。为电介质材料的研发提供可靠的实验数据。

关键词: 介电温谱测试系统; 电介质材料; 介电常数; 铁电材料; 压电材料

Advancement and utilization of a test system for ferroelectric materials.

Tian Hao, Meng Xiangda, Hu Chengpeng, Tan Peng, Wang Yu

(School of Physics, Harbin Institute of Technology, Harbin, 150001, China)

Abstract: Dielectric materials play a pivotal role in various cutting-edge realms, encompassing but not limited to electronics, telecommunications, automation control, information technology, medical advancements, machinery, automotive, aviation, aerospace, nuclear applications, energy storage, and 5G communications. The dielectric spectrum, as a fundamental attribute, delineates the potential applications and environmental adaptability of dielectric materials. Despite the current technology enabling permittivity measurements at ambient temperatures, facilitated by well-established testing apparatus, the methodologies employed to assess permittivity in relation to temperature remain relatively rudimentary. By employing ingenious test fixture design, constructing equipment capable of withstanding elevated and reduced temperatures, and integrating pre-existing testing approaches, we can elucidate the interplay between dielectric constant and temperature. This comprehensive approach encompasses system infrastructure implementation and practical utilization case analysis, serving as a means to furnish dependable experimental data for the research and development of dielectric materials.

Keywords : Dielectric spectroscopy testing system; dielectric material; dielectric constant; ferroelectric material; piezoelectric material.

近年来,航空、航天深海等领域的高低温使用环境中的传感器及换能器等器件对电介质陶瓷提出了新的要求^[1-3]。需要对其相关性能的温度特性进行表征,其中电介质陶瓷的最基本的性能为介电性能。温度对材料的性能、结构、使用和保存具有非常重要的影响,甚至在某些临界温度附近,材料的性能表现出巨大的差异^[4-7]。对于电介质陶瓷材料而言,研究其不同温度环境中固定频率下的介电温度特性,是了解材料极化、损耗微观机制,材料的介电弛豫机制,材料组成、结构、性能之间相互作用机制的最重要的方法之一^[5,6]。因此如何获得更宽温度范围内材料的介电温谱,已成为相关领域研究者们非常重视的测试手段。介电温谱是研究电介质陶瓷材料最基本的表征手段,其结果决定了电介质陶瓷应用的潜力及应用环境。目前,现有的技术可以实现室温介电常数的测试并且已经具有成熟测试设备,例如,美国 Keysight 公司将阻抗分析仪^[8,9]配合高低温夹具以及外接控温装置,可实现宽温区内介电常数及损耗的测试。但是目前介电温谱测试过程中,耗时极长,现有的测试系统难以实现高通量的测试,这极大的降低了电介质材料的研发效率。先进的、科学的测试手段是前沿基础学科研究及创新的前提,为了更好的、更高效的表征电介质材料的介电温谱,有必要建立一套自动化程度更高、测试温度范围满足大部分材料需求、测试效率更高的电介质材料介电温谱测试系统。

本文从测试夹具设计出发,完成高低温装置的构建,结合现有的表征电介质材料介电常数的测试方法,完成系统的搭建及应用实例分析。为电介质材料的研发提供可靠的实验数据。近十年,研制的介电温谱测试系统助力国内外科院所科研工作,相关科研人员已采用此仪器进行材料介电性能的科学实验,成果在国际著名期刊发表,仪器受到国际同行的认可。主要使用单位包括清华大学、中科院物理所、中山大学、华中科技大学、西安交通大学、四川大学、兰州大学、电子科技大学、南京航空航天大学、陕西师范大学、澳大利亚伍伦贡大学等。

1 多通道介电温谱表征系统技术路线

多通道介电温谱表征系统首先通过测试系统的温度控制模块对待测样品进行升降温控制,结合现有的 LCR 电桥,表征样品在不同温度、不同频率下的电容及损耗的值,再由平

板电容的电容值与介电常数的关系，最终计算得到样品的介电常数随温度的变化。此外，结合多通道信号切换模块，最终实现介电温谱的高通量表征。

测试系统架构如图 1 所示，系统分别由上位机 PC 及测试软件、温度控制模块、多通道信号切换模块、高低温夹具以及自动平衡电桥 5 部分组成。其连接关系如图 1 所示，控制计算机通过串口线分别连接多通道信号切换模块、温度控制模块以及自动平衡电桥，实现软件的输出信号控制以及数据采集；并通过与温度控制模块的通讯，进行测试温度、升降温速率的设定和调控，实现电介质材料电容随温度变化特性表征。进而通过电容与介电常数的关系，如式 1 所示，计算得到相应温度的介电常数。

$$\varepsilon_r = \frac{Ct}{A\varepsilon_0} \quad (1)$$

式中， ε_r ——电介质材料的相对介电常数；

C——电介质材料的电容值；

t——电介质材料做成的平板电容的两电极之间的距离；

A——平板电容的电极面积；

ε_0 ——真空介电常数， 8.85×10^{-12} F/m。

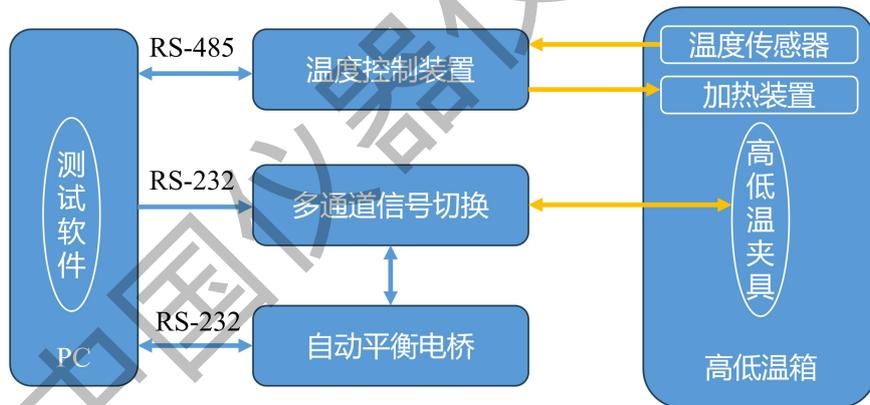


图 1 多通道介电温谱表征系统结构框图

1.1 LCR 电桥选型

介电常数主要由LCR电桥测试表征，市场上LCR平衡电桥已经发展成熟，国外主要是由是德（Keysight）科技公司研制、开发及应用推广，国内主要由常州同惠电子股份涌现公司进行研制、开发及推广业务。其基本测试原理如图2所示， R_2, R_3 为固定电阻， C_1, R_1 为可调电阻与可调电容， C_x, R_x 代表待测样品的容抗与阻抗。将待测样品放置在测试端口上，闭合开关接通测试电路。在交流信号源的激励下，不断改变可变电容与电阻的大小，令电流计的示数趋近于0，此时读出可调电容、电阻的值，利用 R_2 与 R_3 的比例即可求出待测样品 C_x, R_x 的大小：

$$C_x = C_1 \frac{R_3}{R_2} \quad (2)$$

$$R_x = R_1 \frac{R_2}{R_3} \quad (3)$$

通过电容、电阻以及阻抗之间的关系，进而求得样品的阻抗 Z ，

$$Z = R_x - \frac{j}{2\pi f C_x} \quad (4)$$

其中， f 为测试频率， $j^2=-1$ 。进而可以求得阻抗的大小 $|Z|$ 及相角 θ 为

$$|Z| = \sqrt{R_x^2 + \left(\frac{1}{2\pi f C_x}\right)^2} \quad (5)$$

$$\theta = \arctan \frac{-1}{2\pi f C_x R_x} \quad (6)$$

进而可以求得样品的损耗值 D

$$D = 2\pi f C_x R_x \quad (7)$$

通过样品的厚度 h 以及面积 A ，即可根据样品的电容求得样品的介电常数

$$\varepsilon = \frac{C_x \cdot h}{A} \quad (8)$$

测试过程中，通过改变 R_2 , R_3 的阻值，以及信号源的频率大小即可改变测试装置的量程范围与灵敏度，可以根据样品的实际情况灵活调整，以确保测量结果的准确性。

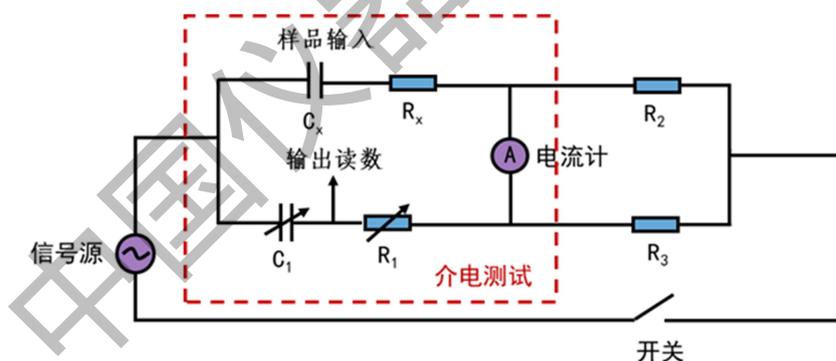


图2 LCR电桥基本测试原理图

目前市场上最具代表性的 LCR 电桥主要包含是德科技的 E4980A 和 E4990A，以及常州同惠电子的 TH2838 和 TH2851，其典型的参数如下：

(1) E4980A:

频率测试范围：20 Hz 至 2 MHz；

基本准确度：0.05%；

测量参数： $|Z|$ 、 $|Y|$ 、 θ 、 R 、 X 、 G 、 B 、 L 、 C 、 D 、 Q 、复数 Z 、复数 Y 等

(2) E4990A

频率测试范围：20 Hz 至 10/20/30/50/120 MHz

基本阻抗测量准确度：±0.08% (±0.045%，典型值)

测量参数：|Z|、|Y|、θ、R、X、G、B、L、C、D、Q、复数 Z、复数 Y 等

(3) TH2838

频率测试范围：20 Hz 至 2 MHz;

基本准确度：0.05%;

测量参数：|Z|、|Y|、θ、R、X、G、B、L、C、D、Q、复数 Z、复数 Y 等

(4) TH2851

频率测试范围：20 Hz 至 15/30/50/80/130 MHz

基本阻抗测量准确度：±0.08% (±0.045%，典型值)

测量参数：|Z|、|Y|、θ、R、X、G、B、L、C、D、Q、复数 Z、复数 Y 等

本测试系统不仅可以与上述四种市场上常用的电桥相匹配,还可以与其他同类型的产品连接,结合温度控制系统及高低温夹具,实现介电温谱的自动化表征。

1.2 温度控制模块设计及构建

控制单元连接恒温箱的温度传感器以及加热器,通过PID算法进行温度控制。首先PID算法通过PC端软件的设定的升降温条件,计算理想的升降温程序段,将温度 T_m 与时间对应,其对应关系为:

$$T_m = T(t) \tag{9}$$

接着温度控制单元连接的温度传感器将当前实际温度 T_{true} 信号传递至控制模块,进而得到实际温度与理论温度之差为

$$\Delta T = T_m - T_{true} \tag{10}$$

进而通过PID算法,计算当前的输出功率

$$P_n = P_{n-1} + k_p(\Delta T_n - \Delta T_{n-1}) + k_p k_i \Delta T_n + k_p k_d(\Delta T_n - 2\Delta T_{n-1} + \Delta T_{n-2}) \tag{11}$$

通过选取适当的控制因子 k_p , k_i , k_d 的值,实现温度的控制。初始值为参数 $k_p=20$, $k_i=1$,以及 $k_d=0$ 。此外,在温度控制过程中,实现程序的自我学习,适当调整控制因子。

如图3所示,为多通道介电温谱表征系统测试夹具示意图。其由5根探针组成。每根探针铂丝及刚玉杆构成。其中一根探针为公共端,同时与四个样品的一个电极面相连,另外四根探针分别接四个样品的另一个电极面相连,且与多通道切换装置(典型值为4)的4个通

道分别相连。通过多通道切换装置控制回路的通断，即可实现样品多通道测试。将其与温度控制模块相结合，如图 4 所示，实现高低温箱（包括高温夹具）的设计。

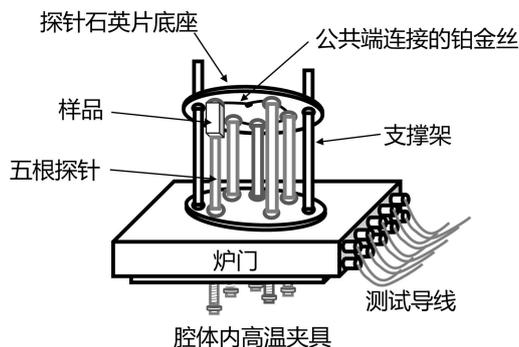


图 3 典型 4 通道介电谱表征系统测试夹具示意图

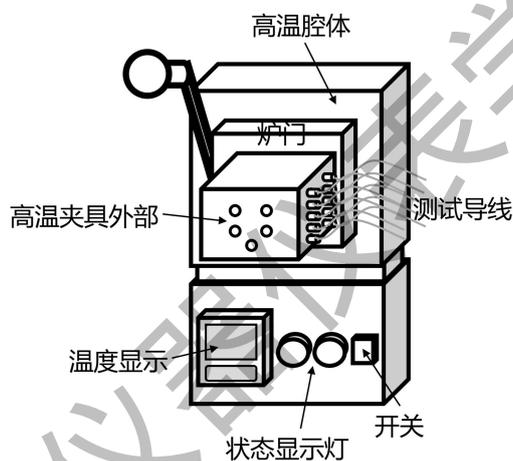


图 4 典型 4 通道高低温箱示意图

1.3 多通道切换装置的设计及搭建

如图 5 所示，为典型的四通道信号切换电路图。四通道信号切换装置的功能是接收主机通过串口发送的指令来切换信号。其主控芯片 U2 采用宏晶科技国产微控制器(MCU)型号为 STC12C2052。微控制器和主机之间同行采用 RS232 接口，芯片 U1 的不要功能是 RS232 电平和 TTL 电平转换。微控制器对经过 U1 电平转换的信号处理并解析出主机发来的指令，依据指令控制相应的输入输出端口(IO)对信号继电器进行控制，从而实现信号切换。为保证信号不受干扰，信号切换板对信号线做了屏蔽处理。实现更多通道的信号切换功能有两种途径：

- (1) 将四通道切换装置进行并联，并通过软件分别对每个四通道切换装置的通讯串口个数选择，可以实现 4 通道、8 通道甚至更多通道的信号切换；
- (2) 将图 4 中的四通道信号切换电路进行扩展，进一步实现更多通道信号切换电路的设计。

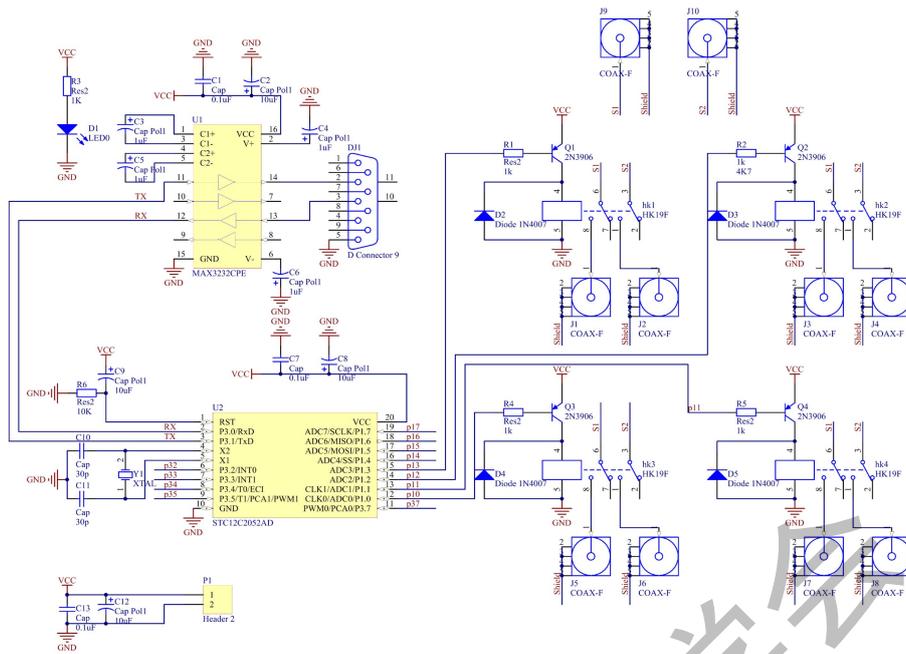


图 5 典型 4 通道信号切换电路图

2 多通道介电温谱表征系统搭建

至此，完成了多通道介电温谱表征系统各模块的设计，进一步将各模块进行连接整合，实现多通道介电温谱表征系统的搭建，如图 6 所示。图 6 中从左至右、从上至下分别为高低温箱和高低温夹具、多通道切换装置（典型四通道）、LCR 电桥以及 PC 和软件。测试软件截图如图 7 所示，显示的四幅曲线图分别为 4 个样品的随温度变化曲线、右侧为测试条件设定及功能选择界面、下方为四个样品测试数据列表。其中测试功能包括温度扫描功能及频率扫描功能，并可实现电容-损耗以及阻抗-相角两类参数测试。

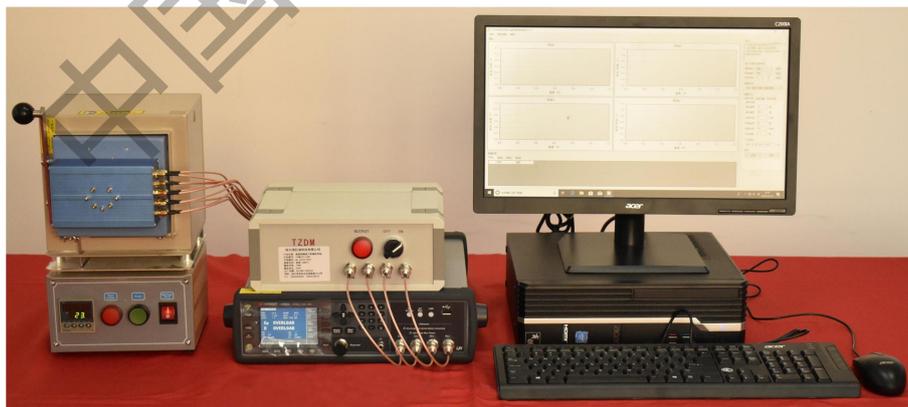


图 6 典型四通道介电温谱表征系统实物图

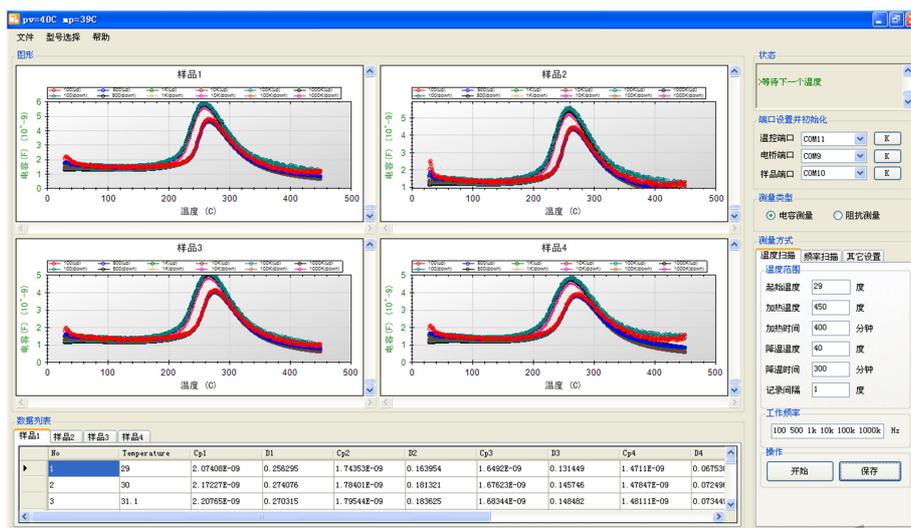


图 7 典型四通道介电温谱表征系统软件界面图

综合考虑 LCR 电桥的性能，本系统的指标如下：

- (1) 测试温度范围：室温至 800 °C
- (2) 测试频率范围：20 Hz 至 10 MHz（由配套 LCR 电桥决定）
- (3) 测试精度：0.05%（由配套 LCR 电桥决定）；
- (4) 测试样品数：典型 4 个，可扩展；
- (5) 测试样品厚度：1~4 mm；
- (6) 测试样品直径：2~20 mm。

3 应用实例

利用自建的四通道介电温谱表征系统测量了 KNN 体系陶瓷材料的介电温谱，被测样品为圆片状陶瓷样品。将样品夹持在样品夹具后，选择测量类型为“电容测量”，设定起始温度为 29 °C、加热温度 450 °C、加热时间 400 min、降温温度 40 °C、降温时间 300 min，并设定记录间隔为 1 °C 以及测试频率分别为 500/1 k/10k/100k/1000k Hz。设定测量条件后，开始对四个样品的电容随温度的变化进行表征，最终结果如图 7 所示。结合四个样品的尺寸后，即可计算得到四个样品的介电温谱。如图 7 所示，四个样品的介电温谱变化规律基本相同，其中样品 1 的介电温谱如图 8 所示。四个样品的电容都是先基本保持不变，当温度达到 200 °C 后，逐渐增大，当达到居里温度后，电容逐渐减小，其中四个样品升温过程的居里温度分别为 266 °C、265 °C、275 °C、270 °C，降温过程的居里温度分别为 259 °C、259 °C、267 °C、263 °C。

上述应用实例说明，利用四通道介电温谱表征系统可以实现块体电介质材料介电温谱的表征。此外，本测试系统已经开发完成，并实现了应用推广，近十年，该测试系统助力国内

外科研院所科研工作，相关科研人员已采用此仪器进行材料介电性能的科学研 究，成果在国际著名期刊发表，仪器受到国际同行的认可，如图 9 所示^[10, 11]。主要使用单位包括清华大学、中科院物理所、中山大学、华中科技大学、西安交通大学、四川大学、兰州大学、电子科技大学、南京航空航天大学、陕西师范大学、澳大利亚伍伦贡大学等。

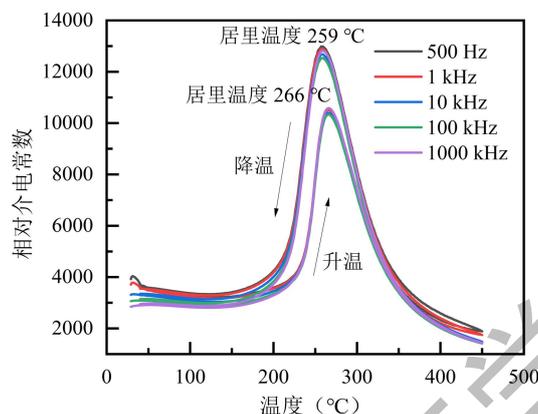


图 8 样品 1 的介电温谱

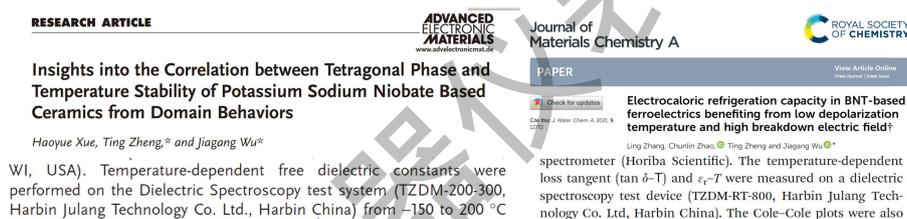


图9 介电温谱测试系统发表文章成果^[10, 11]

4 结论

基于 LCR 电桥法，并结合高低温箱、多通道夹具以及多通道信号切换装置，自主研发了一套多通道介电温谱表征系统，极大的提高了电介质材料介电温谱的表征效率，进而促进该体系材料的研发进程。有望建立相关测试标准及操作规范，服务相关研究项目，完成了国家级人才计划、国家重点研发计划以及国家自然科学基金项目等任务。此外，近十年完成了该表征系统的应用推广，打破了欧美国家高精尖测试表征设备的垄断，相关科研人员已采用此仪器进行材料介电性能的科学研 究，成果在国际著名期刊发表，仪器受到国际同行的认可。

参考文献:

- [1] Narayan B, Malhotra J S, Pandey R, et al. Electrostrain in excess of 1% in polycrystalline piezoelectrics[J]. Nat. Mater., 2018, 17: 427-431.

- [2] Li F, Lin D B, Chen Z B, et al. Ultrahigh piezoelectricity in ferroelectric ceramics by design. *Nat. Mater.*, 2018, 17: 349.
- [3] Zhang S, Li F, Jiang X, et al. Advantages and challenges of relaxor-PbTiO₃ ferroelectric crystals for electroacoustic transducers-A review[J]. *Prog. Mater Sci.*, 2015, 68: 1–66.
- [4] Lv X, Zhu J, Xiao D, et al. Emerging new phase boundary in potassium sodium-niobate based ceramics[J]. *Chemical Society Reviews*, 2020, 49(3): 671-707.
- [5] Xu K, Li J, Lv X, et al. Superior Piezoelectric Properties in Potassium-Sodium Niobate Lead-Free Ceramics[J]. *Advanced Materials*, 2016, 28(38): 8519-8523
- [6] Liu Y, Aziguli H, Zhang B, et al. Ferroelectric polymers exhibiting behaviour reminiscent of a morphotropic phase boundary[J]. *Nature*, 2018, 562: 96-100.
- [7] Zheng T, Wu J, Xiao D, et al. Recent development in lead-free perovskite piezoelectric bulk materials. *Progress in Materials Science*, 2018, 98: 552-624.
- [8] Zheng L, Jing Y, Lu X, et al. Temperature dependent piezoelectric anisotropy in tetragonal 0.63Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})-0.37PbTiO₃ single crystal[J]. *Appl. Phys. Lett.*, 2018, 113:102903.
- [9] Li Y, Fang H, Zheng L, et al. Mn doped ternary relaxor single crystal with high shear piezoelectricity and improved stability[J]. *Ceramics International*, 2018, 44(15): 18672-18677.
- [10] Xue H, Zheng T, Wu J. Insights into the Correlation between Tetragonal Phase and Temperature Stability of Potassium Sodium Niobate Based Ceramics from Domain Behaviors[J]. *Advanced Electronic Materials*, 2022, 8(6): 2100257.
- [11] Zhang L, Zhao C, Zheng T, et al. Electrocaloric refrigeration capacity in BNT-based ferroelectrics benefiting from low depolarization temperature and high breakdown electric field[J]. 2021, 9(21): 12772-12781.