Edmund MOTYL

# BADANIE PRZESTRZENNEGO ROZKŁADU ŁADUNKU W DIELEKTRYKACH METODĄ ELEKTRYCZNIE STYMULOWANEJ FALI AKUSTYCZNEJ

Streszczenie. Przedstawiono metodę elektrycznie stymulowanej fali akustycznej (ESAW) do określenia stanu elektrycznego dielektryków. Opisano generację i propagację fal akustycznych spowodowanych przyłożeniem napięcia impulsowego i progowego do próbki dielektryka. Podano sposoby detekcji i kalibracji sygnałów dla uzyskania rozkładów: ładunku przestrzennego, natężenia pola i potencjału w trójwarstwowej próbce elektretowej PTFE.

# MEASUREMENTS OF SPATIAL CHARGE DISTRIBUTION IN DIELECTRICS USING THE ELECTRICALLY STIMULATED ACOUSTIC WAVE METHOD

**Summary.** The electrically stimulated acoustic wave (ESAW) method for space charge characterization of dielectrics is presented. Generation and propagation of acoustic waves due to step and pulse voltages applied to dielectric sample is discussed. Detection and calibration of signals to obtain the space charge, electric field and potential profiles in three-layered PTFE electrets are shown.

# 1. Wstęp

Metoda elektrycznie stymulowanej fali akustycznej (ESAW) jest niedestrukcyjną techniką służącą do pomiaru rozkładu ładunku przestrzennego w dielektrykach. Powstała ona ponad 10 lat temu [1], została rozwinięta [2,3] i jest obecnie coraz szerzej stosowana do badania polimerów [4] i izolacji elektrycznej pod napięciem [5].

# 2. Idea metody

Schemat ideowy układu pomiarowego jest przedstawiony na rys. 1. Płaskorównoległa próbka dielektryka jest umieszczona pomiędzy dwoma elektrodami. Jedną elektrodę stanowi przewodząca warstwa dopasowana akustycznie do próbki. Drugą elektrodą jest płytka alu-

miniowa pełniąca również rolę akustycznej linii opóźniającej. Z drugiej strony płytki Al umieszczony jest przetwornik piezoelektryczny i warstwa absorpcyjna dopasowana akustycznie do przetwornika. Próbka może być badana pod napięciem. Pojedyncze impulsy napięciowe doprowadzano poprzez kondensator  $C_s$ . Pod wpływem impulsów napięciowych w próbce zostaje wygenerowana fala akustyczna. Część tej fali biegnie poprzez elektrodę aluminiową do przetwornika piezoelektrycznego, w którym indukuje się napięcie zawierające informację o stanie elektrycznym próbki. Sygnały elektryczne są uśredniane i rejestrowane za pomocą oscyloskopu cyfrowego HP 54820A (50 MHz, 2 GSa/s). Analiza sygnałów umożliwia uzyskanie informacji o rozkładzie ładunku przestrzennego w badanej próbce.



Rys. 1. Schemat obwodu pomiarowego Fig. 1. ESAW space charge measurement system

## 3. Siły perturbacyjne

Napięcie elektryczne  $U_0$  przyłożone do płaskorównoległej próbki dielektryka jest źródłem naprężeń mechanicznych. Dodatkowy impuls napięcia elektrycznego  $u_p$  przyłożony do naelektryzowanej lub spolaryzowanej płytki dielektryka generuje fale odkształcenia. Mechanizm generacji tych fal nie jest dobrze poznany. W dotychczasowych pracach uwzględniane były siły pochodzące od nadmiarowego ładunku przestrzennego w objętości dielektryka i ciśnienia elektrostatyczne wywierane przez ładunki zgromadzone w elektrodach. Niejednorodności struktury, niejednorodna polaryzacja, interfazy mogą być także źródłem naprężeń mechanicznych.

W klasycznym makroskopowym traktowaniu ładunku przestrzennego całkowita gęstość ładunku objętościowego wynosi  $q_v(z) = q_{vr}(z) + q_{vp}(z)$ . Założono tutaj jednowymiarowy model, w którym wielkości zmieniają się tylko w kierunku grubości próbki z. W tym przypadku całkowita gęstość ładunku  $q_v(z) = \varepsilon_0 \varepsilon_r dE(z)/d(z)$ , gęstość ładunku swobodnego  $q_{vr}(z) = dD(z)/d(z)$  i polaryzacyjnego  $q_{vp}(z) = -dP(z)/d(z)$ .

Poza ładunkami własnymi (heteroładunki) dielektryk może posiadać ładunki wstrzyknięte z zewnątrz, np. z elektrod lub z obszarów przypowierzchniowych, które zazwyczaj tworzą homoładunki. Wewnętrzne ładunki i zewnętrznie przyłożone napięcie stałe  $U_0$  wywołują niejednorodny rozkład pola w próbce  $E_0(z)$ . Przyłożone napięcie impulsowe  $u_p$  o czasie trwania  $\Delta t$  wywołuje w jednorodnej próbce o grubości d perturbacyjne pole elektryczne  $E_p(t)$ :

$$E_{\rm p}(t) = \frac{u_p}{d} \frac{[1(t) - 1(t - \Delta t)]}{\Delta t} \Delta t \approx \frac{u_p}{d} \delta_{\Delta}(t) \Delta t \tag{1}$$

przy czym 1(t) jest funkcją jednostkową. Wypadkowe pole  $E(z,t) = E_0(z) + E_p(t)$  wpływa na materię poprzez zmiany jej energii i oddziaływania siłowe oraz na ładunki metalowych powierzchni próbki.

#### 3.1. Ciśnienie elektrostatyczne wywierane przez elektrody

Ciśnienia elektrostatyczne działające na powierzchnie metalowych elektrod są równe:

$$f = \frac{1}{2}\varepsilon_0\varepsilon_r [E_0 + E_p]^2 = \frac{1}{2}\varepsilon_0\varepsilon_r E_0^2 + \varepsilon_0\varepsilon_r E_0 E_p + \frac{1}{2}\varepsilon_0\varepsilon_r E_p^2$$
(2)

Tylko dwie ostatnie składowe wywołują impulsową falę odkształcenia. Ciśnienie perturbacyjne  $f_p$  wynosi:

$$f_{\rm p} = (E_0 + \frac{1}{2}E_{\rm p})\varepsilon_0\varepsilon_r E_{\rm p} \tag{3}$$

Ładunki swobodne powierzchniowe i objętościowe w dielektryku powodują zmiany ładunków na elektrodach, a co za tym idzie - generowanych przez nie sił perturbacyjnych. Dla dielektryka z ładunkami swobodnymi o rozkładzie objętościowym  $q_{\rm vr}(z)$  pod działaniem napięcia stałego ładunki indukowane w elektrodach *a* i *b* wynoszą odpowiednio:

$$q_{\text{sea}} = \varepsilon_0 \varepsilon_r \frac{U_0}{d} - \int_0^d (1 - \frac{z}{d}) q_{\text{vr}}(z) dz \qquad q_{\text{seb}} = -\varepsilon_0 \varepsilon_r \frac{U_0}{d} - \int_0^d \frac{z}{d} q_{\text{vr}}(z) dz \qquad (4)$$

Ciśnienia perturbacyjne wywierane przez elektrody a i b i przyłożone napięcie impulsowe są równe:

$$f_{\rm pa} = [q_{\rm sea} + \frac{1}{2}\varepsilon_0\varepsilon_{\rm r}E_{\rm p}]E_{\rm p}, \qquad f_{\rm pb} = [q_{\rm seb} - \frac{1}{2}\varepsilon_0\varepsilon_{\rm r}E_{\rm p}]E_{\rm p}$$
(5)

#### 3.2. Siły działające na ładunki swobodne

Gęstość przestrzenna siły  $f_q$  działającej na ładunki swobodne można zdefiniować za pomocą zależności  $f_{vq} = q_{vr}E$ . Siłę  $\Delta f_v(z)$  działającą na warstwę ładunku o grubości  $\Delta z$  można zapisać w postaci:

$$\Delta f_{\rm v}(z,t) = q_{\rm vr}(z)\Delta z [E_0(z) + E_{\rm p}(t)] \tag{6}$$

Siła perturbacyjna od napięcia impulsowego jest równa drugiemu składnikowi powyższego wyrażenia:

$$\Delta f_{\rm vp}(z,t) = q_{\rm vr}(z) \Delta z E_{\rm p}(t) \tag{7}$$

#### 3.3. Naprężenia mechaniczne od ładunków na interfazie wewnątrz dielektryka

W przypadku układu dwuwarstwowego, gdy powierzchnia nieciągłości jest naładowana płatem ładunku powierzchniowego o gęstości  $q_s$  i rozdziela dwa dielektryki o polaryzacjach wolno relaksacyjnych  $D_1 = \varepsilon_0 \varepsilon_{r1} E_1 + P_{r1}$  i  $D_2 = \varepsilon_0 \varepsilon_{r2} E_2 + P_{r2}$ : naprężenie perturbacyjne wywołane przez impuls napięciowy  $u_p < 0.1$ .  $U_0$  można wyznaczyć z przybliżonej zależności:

$$f_{\rm sp} \approx \frac{\varepsilon_{\rm r1}\varepsilon_{\rm r2}u_{\rm p}}{\left(\varepsilon_{\rm r1}d_2 + \varepsilon_{\rm r2}d_1\right)^2} \left[ (q_{\rm s} + P_{\rm r1} - P_{\rm r2})(d_1 + d_2) + \varepsilon_0(\varepsilon_{\rm r1} - \varepsilon_{\rm r2})U_0 \right] \tag{8}$$

## 4. Generacja i propagacja fali akustycznej

#### 4.1. Mechanizm generacji

Siły oddziałujące na ładunki elektryczne przenoszone są jako fale odkształcenia mechanicznego S(z,t) lub fale ciśnienia p(z,t). Odkształcenie  $S(z,t) = \lim_{\Delta z \to 0} [u(z+\Delta z,t) - u(z)]/\Delta z = \partial u/\partial z$  jest równe zmianie liniowych wymiarów próbki na elementarnym odcinku długości. Jednowymiarowe odkształcenie jest związane z lokalnym ciśnieniem p zależnością  $S = \chi p$ , gdzie  $\chi = -1/(\rho_0 v^2)$ , co prowadzi do związku  $S = -p/(\rho_0 v^2)$ .

Pod wpływem pola elektrycznego następuje zmiana naprężeń mechanicznych i masa o objętości Adz ulega przemieszczeniu z prędkością  $\partial u/\partial t$ , gdzie A jest powierzchnią. Powstaje fala odkształceń mechanicznych, którą można wyznaczyć z równania:

$$\frac{\partial^2 u}{\partial t^2} = v^2 \frac{\partial^2 u}{\partial z^2} + \frac{f_{vp}(z,t)}{\rho_o}$$
(9)

Źródłem fal są przestrzenne nierównowagowe siły mechaniczne, generowane elektrycznie, opisane w rozdziale 3. Przed przyłożeniem napięcia impulsowego układ był w równowadze, przy zerowych warunkach początkowych dla przemieszczenia masy u(z,t = 0-) = 0 i jej prędkości  $\partial u/\partial t(z,t = 0-) = 0$ . Rozwiązanie powyższego równania zależy od rodzaju wymuszenia napięciowego. Przy wymuszeniu impulsowym, tzn. takim, że czas trwania napięcia  $\Delta t$  będzie wystarczająco krótki w porównaniu z czasem relaksacji mechanicznej materiału i pułapkowane ładunki będą w spoczynku, to początkowo wygenerowana fala odkształcenia będzie proporcjonalna do sił perturbacyjnych (N/m<sup>2</sup>) działających na ładunki rozłożone powierzchniowo lub na warstwy ładunków o grubości  $\Delta z$ :

$$S(z,0) = -\frac{f_p(z,0)}{\rho_0 v^2}$$
(10)

W przypadku fali akustycznej pochodzącej od ładunku swobodnego  $q_{vr}$  i biegnącej w kierunku -z przy wymuszeniu impulsowym

$$S_{-}(z+vt) = \frac{u_p \Delta t}{2\rho_o v d} q_v(z+vt) \qquad z \le 0$$
<sup>(11)</sup>

Traktując przyłożone napięcie  $u_p(t)$  jako sumę wymuszeń impulsowych działających na ładunek  $q_{v(z)}$  z pewnym opóżnieniem czasowym  $\tau$  i zakładając liniowość układu oraz przyporządkowując rozkład przestrzenny ładunku rozkładowi czasowemu, można metodą superpozycji otrzymać rozwiązanie w postaci:

$$S_{-}(0,t) = \frac{1}{2\rho_{o}vd} \int_{0}^{t} q_{v}(z)_{z=v\tau} u_{p}(t-\tau)d\tau \qquad 0 \le z \le d$$
(12)

#### 4.2. Propagacja fal

Fale akustyczne wygenerowane w próbce przemieszczają sie w kierunku przetwornika. Każda warstwa, przez którą przemieszcza się fala, charakteryzuje się pewną impedancją akustyczną. Impedancja akustyczna  $Z_{ak}$  zależy od masy właściwej  $\rho_0$  i prędkości rozchodzenia się zaburzeń akustycznych v zgodnie ze wzorem  $Z_{ak} = \rho_0 v$ . W przypadku gdy sąsiadujące warstwy różnią się impedancjami akustycznymi, to na interfazie następują odbicia fal akustycznych. Współczynnik odbicia  $\Gamma$  zależy od impedancji falowych sąsiadujących materiałów, a współczynnik przechodzenia  $K = I - \Gamma$ . Aby waga w sygnałów docierających do przetwornika od różnych źródeł ładunków była jednakowa, powinien być spełniony warunek  $Z_s = Z_m$ . Fale akustyczne na swej drodze ulegają tłumieniu i dyspersji. Powoduje to zmniejszenie rozdzielczości pomiarów.

## 4.3. Detekcja fali akustycznej

Dla jednorodnego przetwornika o stałej wartości współczynnika piezoelektrycznego e związek pomiędzy prądem zwarcia a przebiegiem fali odkształcenia wyraża zależność:

$$i_{z}(t) = \frac{Ae}{l} \int_{-l}^{0} \frac{\partial S}{\partial t} dz.$$
(13)

Czujnik może być cienki lub gruby w sensie akustycznym. W przypadku czujnika cienkiego o grubości *l* przebieg czasowy napięcia biegu jałowego dla impulsowego wymuszenia napięciowego jest równy:

$$u_0(t) = \frac{eu_{\rm p}\Delta tl}{2\varepsilon_0\varepsilon_{\rm r}\,\rho_0 v d}\,q_{\rm v(z=vt)}$$
(14)

tzn. że napięcie biegu jałowego zawiera informację o rozkładzie przestrzennym ładunku. W przypadku wymuszenia skokowego  $u_p(t) = u_p \ 1(t)$  podobna informacja zawarta jest w prądzie zwarcia:

$$i_{z}(t) = \frac{Aeu_{p}v_{t}}{2\rho_{0}v^{2}d}q_{v(z=vt)}$$
(15)

# 5. Wyniki badań

#### 5.1. Odpowiedzi: skokowa i impulsowa elektretowej próbki PTFE

Metodę zilustrowano na przykładzie badań trójwarstwowej próbki elektretowej złożonej z 3 folii PTFE: 25  $\mu$ m, 100  $\mu$ m, i 50  $\mu$ m. Powierzchnie graniczne naelektryzowano ładunkiem z ulotu o gęstości: 1.8 mC/m<sup>2</sup> i -1.4 mC/m<sup>2</sup>. Napięcie polaryzujące  $U_0$  było zawarte w granicach od -3.5 kV do +3.5 kV, a napięcie skokowe  $u_p = -1$  kV. Początkowa wartość napięcia była równa zeru. Po zakończeniu serii pomiarów ponownie wykonano pomiar przy napięciu równym zeru. Oscylogramy napięć  $u_i$  zmierzonych na odbiorniku PVDF 9 $\mu$ m (50  $\Omega$  wejściu oscyloskopu) przedstawione są na rys. 2. Analiza sygnałów wykazała, że napięcie mierzone jest proporcjonalne do prądu zwarcia. Na rys. 3 przedstawiono napięcie biegu



Rys. 2. Odpowiedź prądowa na skok napięcia układu ESAW





Rys. 3. Odpowiedź napięciowa na impuls napięcia układu ESAW

Fig. 3. Impulse, voltage response of ESAW system

jałowego wygenerowane w odbiorniku PVDF 9 µm, które jest odpowiedzią impulsową ( $u_p = -300 \text{ V}, t_p = 5 \text{ ns}$ ) badanej próbki. Napięcie biegu jałowego  $u_0 \equiv (RC_t)^{-1} \int_{0}^{1} u_1 dt$ , jest propor-

cjonalne do całki z napięcia mierzonego na 50  $\Omega$  wejściu oscyloskopu, przy czym  $C_t$  = 0.27 nF jest pojemnością przetwornika. Piki zaznaczone pionowymi liniami przerywanymi pochodzą od ładunków z interfaz metal-dielektryk. Drugi pik pochodzi od dodatniego ładunku na interfazie dielektryk-dielektryk, a trzeci od ładunku ujemnego na interfazie PTFE-PTFE. Z porównania wykresów wynika, że prądowa odpowiedź na napięcie skokowe i napięciowa odpowiedź na impuls napięcia zawierają informację o rozkładzie ładunku przestrzennego w próbce.

#### 5.2. Rozkład ładunku w trójwarstwowej próbce PTFE

Celem wyznaczenia rozkładów ładunku należało dokonać kalibracji sygnałów. Dotyczy to kalibracji skali czasu i osi poziomej oraz gęstości ładunku na osi pionowej. Z położenia pików, ładunków na interfazach metal-dielektryk określono czas przelotu przez badaną próbkę. Wynosi on 127 ns, co przy grubości trójwarstwowej próbki 175  $\mu$ m daje prędkość rozchodzenia się fali akustycznej  $\nu = 1.4 \mu$ m/ns. Jest to wartość zbliżona do podawanej dla teflonu (1.48 µm/ns). Położenie i czas wiąże relacja  $\Delta z = 1.4 \Delta t$ . Dwukrotne scałkowanie przebiegów z rys. 2 daje przebieg odwzorowujący rozkład potencjału w próbce. Wartość tego sygnału odpowiadającą położeniu elektrody (dla t = 193 ns) od napięcia polaryzującego przedstawiono na rys. 4. Zależność ta pozwala na kalibrację rozkładu potencjału (rys. 5), a następnie natężenia pola (rys.6) i gęstości przestrzennej ładunku (rys. 7). Wartości potencjału zawarte są w granicach od -4.5 kV do +2.5 kV, co wskazuje na wpływ napięcia  $u_p$ , które dodaje się do napięcia  $U_0$  i potencjału wywołanego przez ładunki zawarte w próbce.











Fig. 5. Potential distribution in sample using ESAWstep method

Rozkłady natężenia pola elektrycznego wyznaczono metodą zróżniczkowania krzywych potencjału, a ładunku elektrycznego przez zróżniczkowanie krzywych natężenia pola i przy zastosowaniu wzoru  $q_v = \varepsilon_0 \varepsilon_r \Delta E/\Delta z$ . Przyjęto, że przenikalność względna PTFE wynosi  $\varepsilon_r = 2.1$ . Z rys. 6 wynika, że natężenie pola może lokalnie znacznie przewyższać wartości średnie wynikające z przyłożonego napięcia, które np. dla  $U_0 = -3.5$  kV osiąga wartość  $E_{sr} = -25.7$  V/µm.





Fig. 6. Electric field distribution in threelayered PTFE electret sample



- Rys. 7. Rozkład ładunku przestrzennego w badanej próbce
- Fig. 7. Space charge distribution in the investigated sample

# 6. Wnioski

Metoda ESAW jest efektywną techniką do wyznaczenia rozkładu ładunku przestrzennego w dielektrykach stałych. Prawidłowa interpretacja wyników wymaga dokładnego poznania mechanizmów generacji, propagacji i detekcji impulsowych fal akustycznych. W przypadku czujnika cienkiego (w sensie akustycznym) informacja o rozkładzie ładunku zawarta jest w prądowej odpowiedzi na skok napięcia lub w napięciowej odpowiedzi impulsowej. Warianty metody ESAW: impulsowy i skokowy dają podobne wyniki rozkładów ładunku. Zwiększenie dokładności pomiarów, a przede wszystkim rozdzielczości, wymaga dalszych prac teoretycznych i eksperymentalnych.

Pracę wykonano w ramach projektu nr 8 T10 C 049 15 finansowanego przez Komitet Badań Naukowych.

## Literatura

- 1. Takada T., MaenoT., Kushibe H.: An electric stress-pulse technique for the measurement of charges in a plastic plate irradiated by an electron beam. Proc. 5th Int. Symp. Electrets, Heidelberg, 1985, pp. 450-455.
- Bernstein J. B.: Analysis of the electrically stimulated acoustic wave method for observing space charge in semi-insulating films. Phys. Rev. B, vol. 44, 1991, pp. 10804-10814.

- Li Y., Yasuda M., Takada T.: Pulsed electroacoustic method for measurement of charge accumulation in solid dielectrics.: IEEE Trans. Electr. Insul., vol. 1, 1994, pp. 188-195.
- Fukunaga K., Maeno T., Hashimoto Y., Suzuki K.: Space charge formation at the interface between a charge transport layerand a polyester film. IEEE Trans. Electr. Insul., vol. 5, 1998, pp. 276-280.
- Hozumi N., Takeda T., Suzuki H., Okamoto T.: Space charge behaviour in XLPE cable insulation under 0.2-1.2 MV/cm dc fields. IEEE Trans. Electr. Insul., vol. 5, 1998, pp. 82-90.

Edmund Motyl, Politechnika Wrocławska, Instytut Podstaw Elektrotechniki i Elektrotechnologii (I-7), Wybrzeże Wyspiańskiego 27, 50-370 Wrocław

Recenzent: Dr hab. Eugeniusz Soczkiewicz Prof. Politechniki Śląskiej

### Abstract

The electrically stimulated acoustic wave (ESAW) is a nondestructive method for space charge characterization of solid dielectrics. This method was applied for measuring the the space charge distribution in electrets. The understanding of the ESAW technique requires knowledge about forces acting on space charges due to an electric pulse voltage applied to investigated sample. The perturbational forces in the sample of plane parallel geometry with coplanar electrodes have been considered. The acoustic wave generation in sample and its propagation towards detector is presented. The simplified one dimensional case has been considered. Detection, calibration and measuring signal processing to get information on space charge distribution are discussed. The responses of system to short nanosecond pulse and step voltages are described.

The description of the measuring setup was shown. The experimental results of space charge, electric field and potential distribution in three-layered PTFE electrets are presented. It was concluded that the ESAW is an effective experimental method for space charge characterization of dielectrics. The pulse and step acoustic techniques give similar information on electrical state of charged samples. Further work is necessary to improve the above techniques and increase their resolution.