

08; 06
© 1992 г.МЕТОД ЗОНДИРОВАНИЯ ЭЛЕКТРИЧЕСКОГО ПОЛЯ И ПОЛЯРИЗАЦИИ
В ТВЕРДЫХ ДИЭЛЕКТРИКАХ АКУСТИЧЕСКИМ ДАВЛЕНИЕМ

С. Г. Боев, А. Н. Кузьмин, С. А. Лопаткин, В. А. Падерин, В. Я. Ушаков

Развивается модель зондирования электрического поля в неполярных и слабополярных диэлектриках импульсами акустического давления. Показаны возможности зондирования профиля медленной составляющей релаксационной поляризации в полярных диэлектриках и пьезоэлектриках.

Введение

Предложенный в 1977 г. метод акустического зондирования электрического поля в диэлектриках открыл широкие возможности существенного развития большого круга вопросов, связанных с переносом и накоплением заряда в диэлектриках при различного рода воздействиях [1]. Развитие физических основ метода, анализ его возможностей и условий реализации дается в работах [2–8], в которых в зависимости от формы импульса давления и параметров измерительной цепи метод характеризуется как метод измерения потенциала φ , напряженности электрического поля E или объемной плотности заряда. Несмотря на широкие возможности метода, его сравнительную простоту в реализации и значительное время после появления первых публикаций, известно лишь несколько работ с результатами экспериментальных исследований накопления и релаксации электрического заряда в диэлектриках. Основной причиной этого, на наш взгляд, являются методические проблемы, связанные с проявлением пьезоэлектрического эффекта, который не рассматривается в указанных работах, но дает основной вклад в измеряемый сигнал при зондировании большинства полярных диэлектриков.

В данной работе развивается физическая модель метода, его возможности иллюстрируются результатами экспериментальных исследований.

Рассматривается плоскопараллельный диэлектрик, электризованный каким-либо способом (воздействием сильного электрического поля, потоков заряженных частиц, коронного разряда и др.). В общем случае в образце имеется избыточный свободный (не связанный с поляризацией) заряд с объемной плотностью q_c и медленная составляющая релаксационной поляризации p_s , которая не учитывается при измерении относительной диэлектрической проницаемости вещества ϵ в переменном напряжении [9, 10]. При этом электрическое сме-

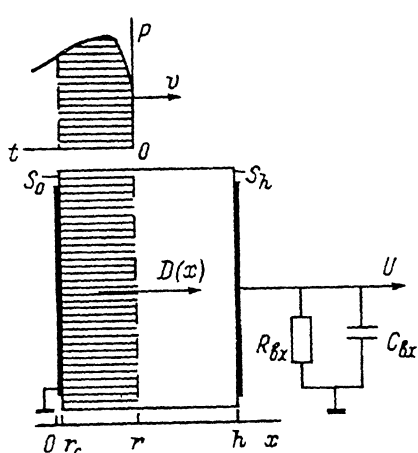


Рис.1. Схема зондирования диэлектрика.

щение имеет вид

$$D(x) = \varepsilon_0 \varepsilon E(x) + p_s(x). \quad (1)$$

Импульс акустического давления направляется в образец через поверхность S_0 и перемещается к противоположной поверхности S_h вдоль оси x со скоростью v (рис. 1). $P(t)$ — форма импульса давления в образце; r — положение фронта импульса в момент времени $t = r/v$. С измерительного электрода площадью S на поверхности S_h регистрируется потенциал U , пропорциональный плотности

полного тока в образце j при $h/v \gg R_{\text{вх}} C_{\text{вх}}$ или его интегралу $\sigma(t) = -\int_0^t j(t') dt'$

при $h/v \gg R_{\text{вх}} C_{\text{вх}}$, где $R_{\text{вх}}$ и $C_{\text{вх}}$ — входные сопротивление и емкость регистрирующей аппаратуры. Акустическое сжатие диэлектрика приводит к обратимому изменению E и p_s . Соответственно определение пространственного изменения этих характеристик по временной зависимости электрического сигнала с измерительного электрода при прохождении импульса давления в образце составляет суть рассматриваемого метода.

Физические основы метода

Электрическое смещение и плотность свободного заряда в диэлектрике связаны известным выражением

$$dD(x)/dx = q_c(x). \quad (2)$$

Интегрирование (2) от 0 до x дает

$$D(x) - D(0) = \int_0^x q_c(x') dx'. \quad (3)$$

Пусть при зондировании образца в момент времени t_x положение фронта импульса давления соответствует координате $x = vt_x$. За это время произойдет перемещение поверхности S_0 и уменьшение толщины образца на величину

$$r_c(t_x) = -\chi v \int_0^{t_x} P(t_x - \tau) d\tau,$$

где $\tau = x/v$, χ — сжимаемость.

Интегрирование (2) от r_c до x дает

$$D'(x) - D'(r_c) = \int_{r_c}^x q_c'(\xi) d\xi, \quad (4)$$

где ξ и D' — координата и электрическое смещение в деформированной области $q_c' = q_c / (1 + \chi p)$.

Поскольку

$$\int_0^x q_c(x') dx' = \int_{r_c}^x q_c'(\xi) d\xi,$$

то из (3), (4) имеем

$$D'(x) - D(x) = \Delta\sigma_0(x), \quad (5)$$

где $\Delta\sigma_0$ — плотность заряда, индуцированного на электроде на поверхности S_0 .

Изменение D в диэлектрике при сжатии может происходить за счет увеличения объемной плотности заряда [2, 4, 8] и концентрации диполей [3–7], за счет изменения дипольного момента последних [7, 11, 12], за счет изменения медленной составляющей релаксационной поляризации [11–13]. При условии, что указанные составляющие изменения D пропорциональны относительной деформации, выражение (5) можно переписать в виде

$$D'(x) - D(x) = -\chi P(x)\alpha D(x) = \Delta\sigma_0(x), \quad (6)$$

где $\alpha = \alpha_E + \alpha_s$; $\alpha_E = \alpha_{qn} + \alpha_\varepsilon$ — коэффициент, отражающий изменение объемной плотности заряда и концентрации диполей α_{qn} и изменение дипольных моментов диполей α_ε ; α_s — коэффициент, характеризующий пьезоэффект за счет остаточной релаксационной поляризации p_s .

Заметим, что $\alpha_E \neq 0$ лишь при $E \neq 0$. Образование электрических сигналов при деформации диэлектриков в электрическом поле рассматривалось в работах [14, 15]. Знаки α_{qn} и α_ε могут быть противоположными, знаки α_ε и α_s также могут быть противоположными.

Выражение (6) дает зависимость плотности индуцированного на электроде заряда от изменения электрического смещения на фронте импульса давления. Плотность полного заряда, индуцированного на электроде образца при продвижении импульса давления до координаты $x = r$ (рис. 1), получим интегрированием выражения (6) от r_c до h

$$\sigma_0(r) = -\frac{\alpha\chi}{h'} \int_{r_c}^r P(x)D(x)dx, \quad (7)$$

где $h' = h - r_c$.

Переходя к новой переменной $\tau = x/v$ и пренебрегая незначительным изменением толщины образца, получим

$$\sigma_0(t) = -\frac{\alpha\chi v}{h} \int_{t'}^t P(t - \tau)D(\tau)d\tau, \quad (8)$$

где $t' = -\chi \int_0^t P(t - \tau)d\tau$.

Плотность индуцированного на электроде заряда и величина измеряемого сигнала u связаны очевидным соотношением

$$\sigma_0(t) = -\int_0^t j(t')dt' = -\frac{(C_0 + C_{\text{вх}})}{S} U(t), \quad (9)$$

где C_0 — геометрическая емкость образца, которая отличается незначительно для деформированного и исходного образцов [7].

В режиме интегрирования тока ($h/v \ll C_{\text{вх}}R_{\text{вх}}$) из (8), (9) имеем

$$U_\sigma(t) = \frac{\chi v S \alpha}{C_{\text{вх}} h} \int_{t'}^t P(t - \tau)D(\tau)d\tau. \quad (10)$$

В режиме измерения тока ($h/v \gg C_{\text{вх}}R_{\text{вх}}$), $j(t) = -d\sigma_0(t)/dt = U(t)/R_{\text{вх}}S$

$$U_f(t) = \frac{\chi v S R_{\text{вх}} \alpha}{h} \int_{t'}^t \frac{dP(t-\tau)}{d\tau} D(\tau) d\tau. \quad (11)$$

Полученные в работах [3, 7] выражения для электрического сигнала при зондировании образцов импульсами произвольной формы являются частным следствием приведенных. При $p_s = 0$ выражения отличаются числовыми параметрами интегральных уравнений (10), (11).

В ряде работ рассматриваются частные случаи — зондирования образцов ступенчатым импульсом и импульсом с длительностью много меньше h/v . Для ступенчатого импульса, когда давление постоянно в области $r_c < x < r$, из (10), (11) имеем

$$U_\sigma(t) = \frac{\chi P S \alpha}{h C_{\text{вх}}} [\varepsilon_0 \varepsilon \varphi(t) + \int_0^t p_s(\tau) d\tau], \quad (12)$$

$$U_f(t) = \frac{\chi v P R_{\text{вх}} S \alpha}{h} [\varepsilon_0 \varepsilon E(t) + p_s(t) - p_s(0)]. \quad (13)$$

Для прямоугольного импульса с длительностью $\Delta \tau \ll h/v$ из (10), (11) следует

$$U_\sigma(t) = \frac{\chi P S v \Delta \tau \alpha}{h C_{\text{вх}}} [D(t) - D(0)], \quad (14)$$

$$U_f(t) = \frac{\chi P S v^2 \Delta \tau R_{\text{вх}}}{h} q(t), \quad (15)$$

где $q = q_c + q_n$; $q_n = -dp_s/dx$ — объемная плотность “поляризационного” заряда.

При $p_s = 0$ выражения (12)—(15) качественно не отличаются от приведенных в различных работах. Таким образом, при произвольной функции давления измеряемый сигнал и электрическое смещение связаны интегральным уравнением Вольтерры типа свертки. Функция $P(t)$ должна удовлетворять условиям ядра Вольтерры, т. е. длительность фронта импульса давления должна быть много меньше h/v . Решение обратной задачи значительно упрощается для ступенчатого или короткого импульса. Однако даже в этих случаях возможно определение лишь электрического смещения, если неизвестно соотношение между $\varepsilon_0 \varepsilon E$ и p_s . Оценка вклада этих составляющих при зондировании конкретного диэлектрика, электризованного конкретным способом, является необходимым условием корректного применения метода.

В случае, когда значения p_s несущественны и $\alpha_E \gg \alpha_s$, метод может эффективно использоваться для определения напряженности электрического поля. Определить функцию $P(t)$ и числовой параметр уравнений (10), (11) можно измерением $U(t)$ при зондировании образца с приложенным к нему напряжением V от внешнего источника. В частности, из (10) имеем

$$U_\sigma(t) = \frac{\chi v S \alpha_E \varepsilon_0 \varepsilon V}{h^2} \int_{t'}^t P(t-\tau) d\tau. \quad (16)$$

При $\alpha_s \gg \alpha_E$ метод позволяет зондировать профиль поляризации в диэлектриках. Это условие достаточно хорошо выполняется для пьезоэлектриков. В частности, из (10) имеем

$$U_\sigma(t) = \frac{\chi v \alpha_s}{C_{\text{вх}} h} \int_{t'}^t P(t-\tau) p_s(\tau) d\tau. \quad (17)$$

Проверка основных следствий описания метода и исследование его возможностей проведены на изготовленном нами устройстве реализации метода. Генерация импульсов давления осуществлялась на основе обратного пьезоэффекта с использованием импульсного генератора электрических сигналов на базе тиратрона ТГИ1-270/12. В качестве пьезоэлектрика использовался образец керамики ЦТС-19 толщиной 1.8 мм. Частота генератора электрических сигналов и, следовательно, импульса давления составляла 0.1—2 кГц. Форма импульса давления приведена на рис. 2 пунктиром. Такой режим измерений позволяет проследить изменение U со временем нахождения диэлектрика в электрическом поле от внешнего источника, а также в результате изменения характеристик электризации диэлектрика, заряженного каким-либо способом. Сигнал с измерительного электрода после пред-

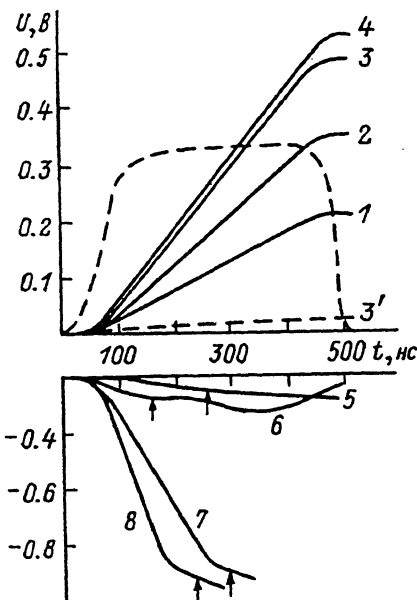


Рис.2. Измеряемый сигнал U при зондировании образцов в электрическом поле напряженностью $V/n=2-4 \cdot 10^3$ В/см. Измерения проведены через 1 мин после приложения напряжения. Пунктир — форма импульса давления в относительных единицах. 1 — ПК, 2 — ПЭВП, 3 — ПММА, 4 — ПДФЭ, 5 — СК-1, 6 — МК, 7 — NaCl, 8 — LiF, 3' — ПММА через 30 с после выдержки образца в поле в течение 100 с. Стрелки на кривых указывают время достижения фронтом импульса поверхности S_h , h , мм: 1 — 2.02, 2 — 1.05, 3 — 1.06, 4 — 0.82, 5 — 1.05, 6 — 1.03, 7 — 1.1, 8 — 1.02.

Рис.2. Измеряемый сигнал U при зондировании образцов в электрическом поле напряженностью $V/n=2-4 \cdot 10^3$ В/см. Измерения проведены через 1 мин после приложения напряжения. Пунктир — форма импульса давления в относительных единицах. 1 — ПК, 2 — ПЭВП, 3 — ПММА, 4 — ПДФЭ, 5 — СК-1, 6 — МК, 7 — NaCl, 8 — LiF, 3' — ПММА через 30 с после выдержки образца в поле в течение 100 с. Стрелки на кривых указывают время достижения фронтом импульса поверхности S_h , h , мм: 1 — 2.02, 2 — 1.05, 3 — 1.06, 4 — 0.82, 5 — 1.05, 6 — 1.03, 7 — 1.1, 8 — 1.02.

варительного усиления регистрировался осциллографом С1-108 и при помощи видеоконтрольного устройства вводился в ПЭВМ, где решение интегральных уравнений производилось их прямой дискретизацией.

Для зондирования образцов в электрическом поле от внешнего источника между измерительным электродом и цепочкой $R_{вх}C_{вх}$ подключался разделительный конденсатор емкостью 0.1 мкФ, который заряжался от внешнего источника и поддерживал на электроде напряжение V при зондировании образцов.

Экспериментальные результаты

В электрическом поле от внешнего источника были прозондированы следующие диэлектрики: полимерные — политетрафторэтилен (ПДФЭ), полиэтилентерефталат (ПЭТФ), полиметилметакрилат (ПММА), полистирол (ПС), полиэтилен низкой плотности (ПЭНП), капролон, полиамид, полиимид, полихлорвинил, полиэстер, поликарбонат (ПК), винипроз; кристаллические — монокристаллы LiF, NaF, NaCl, KCl, KBr, CaF₂, MgO, SiO₂; керамические — СК-1 (SiO₂ 53.6 %, MgO 29.0 %, BaO 15.3 %), МК (Al₂O₃ 99.3 %), СНЦ (SiO₂ 53.0 %, MgO 27.7 %, BaO 11.4 %, ZnO 5.4 %), УФ-46 (Al₂O₃ 76.3 %, SiO₂ 15.3 %), AlN, 22ХС, Ф-7, ВК, М-23 пиролитический нитрид бора (ПНБ), CaTiO₃; стеклообразные — САФ (Al₂O₃ 75 %, P₂O₅ 25 %), К8, К208, ТФ-8, ОК-1; смолы — ЭД-06, УП-642, эпоксиноволачная смола.

Результаты измерений можно классифицировать следующим образом.

1. Знак измеряемого сигнала U соответствует увеличению объемной плотности заряда и концентрации диполей, т.е. знаку α_{qn} для всех приведенных

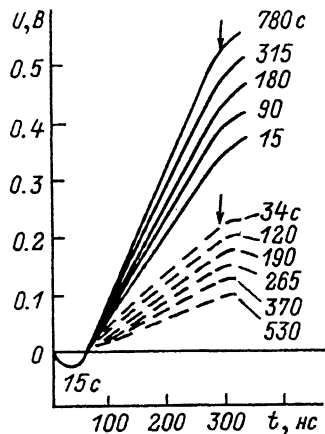


Рис. 3. Измеряемый сигнал при зондировании керамики М-23.

$h = 1.0$ мм; сплошные кривые — измеряемый сигнал в различные моменты времени после приложения к электродам образца напряжения $V = 4$ кВ, пунктир — после снятия напряжения.

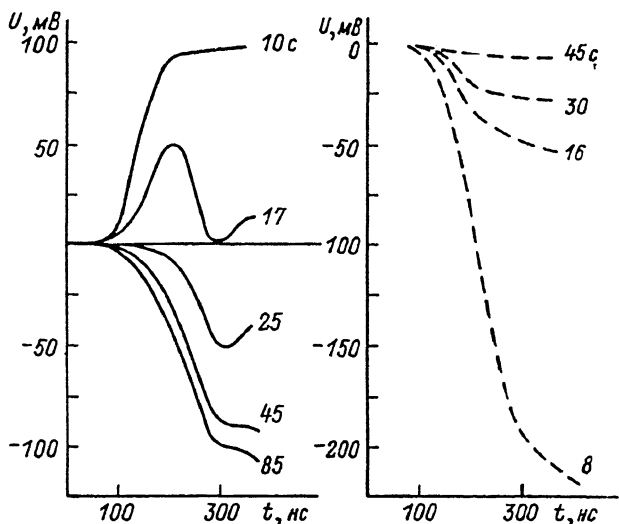


Рис. 4. Измеряемый сигнал при зондировании керамики Ф-7.

$h = 0.9$ мм; а — U в различные моменты времени после приложения напряжения $V = 1$ кВ, б — после снятия напряжения.

полимерных материалов и смол, а также для керамик ПНБ, AlN, М-23 (кривые 1—4 на рис. 2). Для остальных исследованных материалов наблюдается “обратная” полярность измеряемого сигнала (кривые 5—8 на рис. 2), когда знаки α_{qn} и α отличаются.

2. Для ряда материалов наблюдается изменение U со временем выдержки образцов в электрическом поле. Для некоторых материалов эти изменения значительны при воздействии электрического поля в течении многих часов, для других материалов существенные изменения U происходят в течении секунд, минут. Так, для AlN значения U уменьшаются примерно на порядок при воздействии электрического поля в течение 1 мин. Напротив, величина U существенно возрастает со временем для керамики М-23 (рис. 3). Интересно, что для различных месторождений слюды наблюдается как увеличение, так и уменьшение U .

Со временем после подачи напряжения для некоторых материалов наблюдалось изменение полярности U . Для ГВ-7 и 22ХС изменение полярности происходит через доли и единицы секунд, для Ф-7 — через десятки секунд (рис. 4). Изменение полярности U объясняется нами изменением со временем соотношения различных составляющих α , прежде всего за счет изменения α_s .

3. После снятия напряжения значения U для ряда материалов (ВК, LiF, ПТФЭ, ПЭТФ, MgO) уменьшаются на 2—3 порядка в течение единиц, долей секунд. Однако для некоторых материалов, находящихся в электрическом поле в течение нескольких минут, значения U после снятия напряжения могут быть значительными длительное время (кривая 3 на рис. 2, рис. 3, 4). Существенно заметить, что после снятия напряжения значения U для Ф-7 больше значений для образца в электрическом поле (рис. 4), что объясняется различными знаками α_e и α_s .

Различные знаки U наблюдаются также при зондировании диэлектриков, облученных заряженными частицами. Например, полярности U при зондировании облученных электронами образцов ПММА, ПС, ПНБ, с одной стороны, и образцов САФ, LiF, МК, с другой стороны, противоположны. Результаты зондирования образцов протонами по описанной в работе [16] методике показали, что качественное распределение напряженности электрического поля в образцах существенно не отличается.

Результаты зондирования полярных диэлектриков (МК, СК-1, LiF, САФ)

протонома, альбедным методом [17] и акустическим давлением показали, что в первые часы и сутки измеряемый сигнал определяется напряженностью электрического поля объемного заряда. Через несколько месяцев после облучения образцов измеряемый при акустическом зондировании электрический сигнал практически не зависит от E и определяется величиной p_s . Через 2—3 года после облучения образцов МК, СК-1, LiF электронами напряженность электрического поля в их объеме не регистрируется при зондировании протонами и рентгеновским излучением [18]. Однако при акустическом зондировании образцов через 10—13 лет после облучения значения измеряемого сигнала U соответствуют по величине сигналам, которые регистрируются при зондировании необлученных образцов, находящихся в электрическом поле, от внешнего источника напряженностью порядка $10^4, 10^3$ В/см. Очевидно, что электрические сигналы при зондировании облученных образцов обусловлены пьезоэффектом за счет p_s .

Выводы

В полярных случаях, когда значения p_s и $\varepsilon_0 \varepsilon E$ существенно отличаются, интерпретация экспериментальных результатов не вызывает принципиальных трудностей. При $\alpha_E \gg \alpha_s$ метод позволяет определить конфигурацию напряженности электрического поля в диэлектрике, напротив, при $\alpha_E \ll \alpha_s$ — профиль медленной составляющей релаксационной поляризации. Зондирование неполярных диэлектриков с модельными электрическими полями дает удовлетворительные результаты. Такие результаты представлены в [4] для ПТФЭ и получены нами для ПЭНП и ПС. Полученные нами результаты акустического зондирования облученных электронами образцов ПС и ПНБ достаточно хорошо совпадают с результатами зондирования протонами по описанной в [16] методике. В случаях, когда значения α_E и α_s сравнимы по порядку, необходимо искать возможности определения вклада E и p_s в величину измеряемого сигнала. Эта проблема в известных работах не затрагивалась. Результаты анализа проблемы показали возможности ее решения, которые будут в дальнейшем обсуждаться.

Список литературы

- [1] Laurenceau P., Dreyfus G., Lewiner J. // Phys. Rev. Lett. 1977. Vol. 38. N 1. P. 46—49.
- [2] Розно А. Г., Громов В. В. // Письма в ЖТФ. 1979. Т. 5. Вып. 11. С. 648—651.
- [3] Migliori A., Thompson J. P. // J. Appl. Phys. 1980. Vol. 51. N 1. P. 479—485.
- [4] Alquie C., Dreyfus G., Lewiner J. // Phys. Rev. Lett. 1981. Vol. 47. N 20. P. 1483—1487.
- [5] Migliori A., Hofler T. // Rev. Sci. Instrum. 1982. Vol. 53. N 5. P. 662—666.
- [6] Sessler G. M., West J. E., Gerhard G. // Phys. Rev. Lett. 1982. Vol. 48. N 8. P. 563—566.
- [7] Gerhard-Mulhaupt R. // Phys. Rev. B. 1983. Vol. 27. N 4. P. 2494—2503.
- [8] Розно А. Г., Громов В. В. // Изв. АН СССР. Сер. физика. 1986. Т. 50. № 3. С. 446—454.
- [9] Electrets // Ed. by G. M. Sessler. Berlin; Heidelberg; New York: Springer Verlag, 1980.
- [10] Боев С. Г. // Электричество. 1984. № 12. С. 67—68.
- [11] Рез И. С., Поплавок Ю. М. Диэлектрики. Основные свойства и применения в электронике. М.: Радио и связь, 1989. 288 с.
- [12] Луцейкин Г. А. Полимерные электреты. М.: Химия, 1984. 184 с.
- [13] Eisenmenger W., Haardt M. // Sol. St. Commun. 1982. Vol. 41. N 12. P. 917—920.
- [14] Hayakawa R., Wada J. // Adv. Polymer Sci. 1973. Vol. 11. N 1. P. 1—55.
- [15] Луцейкин Г. А. // Успехи химии. 1983. Т. 52. № 8. С. 1410—1431.
- [16] Боев С. Г., Падерин В. А. // ПТЭ. 1987. № 5. С. 191—194.
- [17] Дергобовоз К. А., Евдокимов О. Б., Кононов Б. А. Радиационная диагностика электрических потенциалов. М.: Атомиздат, 1978. 88 с.
- [18] Костюков Н. С., Сигаев Г. И., Антонова Н. П., Боев С. Г. // Электронная техника. Материалы. 1979. Вып. 7 (132). С. 72—76. Техника эксперимента. 1987. № 5. С. 191—194.

Научно-исследовательский институт высоких напряжений
при Томском политехническом институте

Поступило в Редакцию
10 апреля 1991 г.