

PHƯƠNG PHÁP NGHỊCH ĐẢO ĐỂ THU ĐƯỢC DÒNG ĐIỆN PHÂN CỰC TRONG THỜI GIAN RẤT NGẮN TỪ PHÉP ĐO QUANG PHỔ ĐIỆN MÔI TRÊN VẬT LIỆU PEN

OBTENTION OF POLARIZATION CURRENT IN VERY SHORT TIME FROM DIELECTRIC SPECTROSCOPY MEASUREMENT USING INVERSE METHOD ON PEN MATERIAL

Hoàng Mai Quyên^{1,*},
Nguyễn Mạnh Quân¹, Nguyễn Duy Minh²

TÓM TẮT

Mục đích của nghiên cứu là thu được dòng điện phân cực trong thời gian rất ngắn (10^{-6} đến 10s) khi mà các kỹ thuật đo dòng điện thông thường không thực hiện được. Cơ sở để thực hiện nghiên cứu này là hằng số điện môi phức nhận được từ phép đo quang phổ điện môi trên vật liệu phân cực PEN. Các cơ chế tích thoát gắn liền với quá trình phân cực, β , β^* và α được quan sát thấy trên phần ảo của hằng số điện môi phức (tổn hao điện môi) tại các tần số và nhiệt độ đo khác nhau. Các hàm số Cole-Cole được sử dụng để mô hình hóa các cơ chế tích thoát, nhờ đó hằng số điện môi phức được biểu thị dưới dạng hàm số liên tục trong miền tần số. Phép biến đổi Fourier ngược tần số - thời gian sau đó được thực hiện để thu được dòng điện phân cực trong thời gian rất ngắn. Các dòng điện thu được có sự tương quan tốt với dòng điện trong thời gian dài, đo được bởi phương pháp APC.

Từ khóa: PEN; phép đo quang phổ điện môi; hàm số Cole-Cole; biến đổi Fourier ngược; dòng điện phân cực.

ABSTRACT

The aim of the study is to obtain polarization current in a very short time (10^{-6} to 10s) not measurable by classical techniques. The complex permittivity which obtained from dielectric spectroscopy measurements on PEN (a polar material) is the basic data of this study. The relaxations associated with the polarization processes, β , β^* and α , were observed on the imaginary part of the complex permittivity (dielectric loss) at different frequencies and temperatures. The Cole-Cole functions were used to modeling the relaxations, whereby the complex permittivity was expressed as a continuous function in the frequency domain. The frequency-time inverse Fourier transform was then performed to obtain the polarization current in a very short time. The results had a good correlation with the current in a long time measured by the APC method.

Keywords: PEN; dielectric spectroscopy; Cole-Cole function; Inverse Fourier transform; polarization current.

¹Khoa Điện, Trường Đại học Công nghiệp Hà Nội

²Trường Đại học Điện Lực

*Email: hoangmaiquyen@hau.edu.vn

Ngày nhận bài: 15/01/2021

Ngày nhận bài sửa sau phản biện: 10/6/2021

Ngày chấp nhận đăng: 25/6/2021

KÝ HIỆU

Ký hiệu	Đơn vị	Ý nghĩa
ϵ_0	F/m	Hằng số điện môi của chân không
ϵ^*	-	Hằng số điện môi phức
ϵ'	-	Hằng số điện môi
ϵ''	-	Tổn hao điện môi
E	V/m	Cường độ điện trường

CHỮ VIẾT TẮT

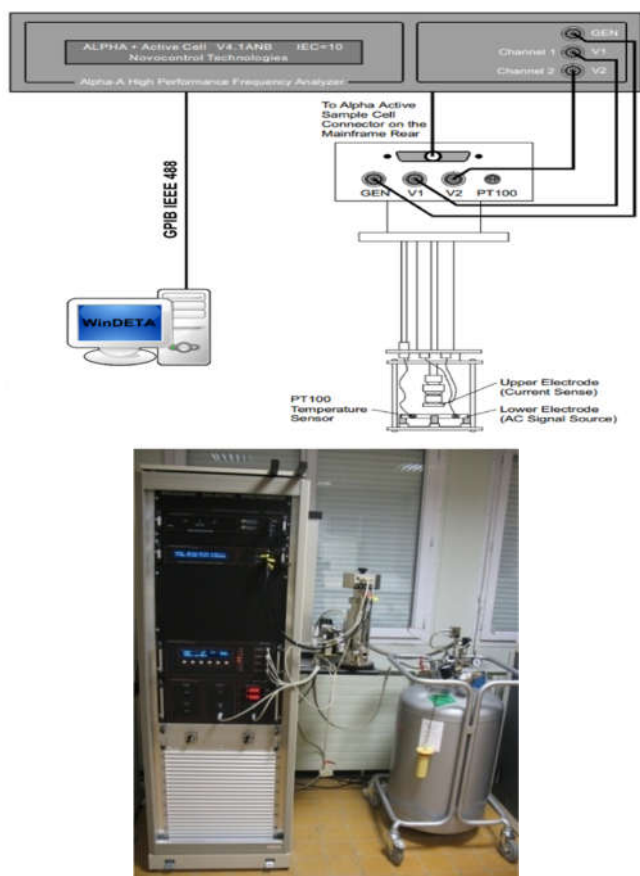
PEN	Poly(ethylene naphthalene 2,6-dicarboxylate)
APC	Alternate polarization current

1. GIỚI THIỆU

Phân cực và dẫn điện là hai quá trình chủ yếu xảy ra trong chế độ làm việc bình thường của vật liệu cách điện khi đặt dưới một điện trường. Nhiều nghiên cứu thực nghiệm cũng như mô phỏng về hai hiện tượng phân cực và dẫn điện đã được thực hiện trên nhiều vật liệu cách điện rắn khác nhau [1-3], trong đó nhiều nhất là các nghiên cứu về hiện tượng dẫn điện do hiện tượng này thường giữ vai trò chủ đạo trong khoảng thời gian đủ dài (từ vài chục giây trở lên). Hiện tượng phân cực khó được quan sát trong các nghiên cứu trên vật liệu không phân cực (non-polar materials) và thường được bỏ qua khi coi hằng số điện môi ϵ là không đổi với mọi nhiệt độ và trong mọi thời điểm. Trong bài báo này, chúng tôi lựa chọn nghiên cứu trên vật liệu PEN, một loại vật liệu cách điện có cực tính cao (polar material) qua đó làm nổi bật hiện tượng phân cực trong vật liệu. Quá trình phân cực gồm nhiều giai đoạn bao gồm phân cực điện tử, phân cực nguyên tử (hay ion) và phân cực định hướng (hay lưỡng cực). Trong khi hai giai đoạn đầu diễn ra khá nhanh (dưới 10^{-12} s), thì phân cực định hướng có thể diễn ra trong thời gian dài (từ 10^{-9} đến 10^5 s) và là loại phân cực chủ yếu được xét đến trong các nghiên cứu trong kỹ thuật điện [4]. Quá trình này liên quan đến sự định

hướng theo chiều điện trường của các moment lưỡng cực tồn tại trong phân tử điện môi và gây ra một dòng điện lớn trong thời gian đầu, tức thời gian rất ngắn, sau đó giảm dần theo thời gian. Dòng điện thuần phân cực có giá trị lớn này không đo được bằng các kỹ thuật thông thường. Điều đó gây ra những hạn chế đến việc nghiên cứu toàn diện và sâu sắc hiện tượng phân cực trong điện môi cũng như việc nghiên cứu về những tác động của dòng điện phân cực đến đặc tính điện, tuổi thọ và độ tin cậy của hệ thống cách điện tại thời điểm ngay khi đặt điện áp lên điện môi. Nghiên cứu của chúng tôi chỉ ra một cách để nhận được dòng điện phân cực trong thời gian rất ngắn, dựa trên cách dữ liệu về phép đo quang phổ điện môi. Phép đo này cung cấp các đại lượng gắn liền với hiện tượng phân cực trong miền tần số là hằng số điện môi và tổn hao điện môi [5]. Các dữ liệu thực nghiệm này cần được mô hình hóa để có khả năng chia nhỏ biến số tùy biến. Việc này đã được giải quyết trong nhiều nghiên cứu trước đó trên các vật liệu phân cực như PET, PEN bằng các hàm số và các dạng đặc biệt của hàm số Havriliak-Negami [6, 7]. Với mục tiêu là thu được dòng điện trong miền thời gian, một biến đổi Fourier ngược đã được thực hiện trên dữ liệu thực nghiệm được mô hình hóa. Dòng điện sau khi nhận được, dùng để nghiên cứu hiện tượng phân cực hoặc góp phần vào việc cải tiến độ chính xác của các mô phỏng dòng điện ngoài khi đặt một điện áp lên điện môi.

2. PHÉP ĐO QUANG PHỔ ĐIỆN MÔI



Hình 1. Thiết bị thí nghiệm của phép đo quang phổ điện môi [8, 9]

Phép đo quang phổ điện môi giúp xác định hằng số điện môi phức (ϵ^*) của vật liệu cách điện rắn. Phần thực của hằng số điện môi (ϵ') cho phép định lượng độ phân cực của vật liệu gọi là hằng số điện môi, trong khi đó phần ảo (ϵ'') gắn liền với năng lượng hao phí trong điện môi gọi là tổn hao điện môi. Nguyên lý chính của phép đo được giới thiệu trong [5]. Trong nghiên cứu của chúng tôi, phép đo quang phổ điện môi được thực hiện bởi một máy đo quang phổ dải rộng Novocontrol Alpha-A trong môi trường Nitơ lỏng (hình 1) cho phép nghiên cứu các đặc tính của điện môi trong một dải tần số rộng từ 10^{-1} đến 10^6 Hz và với một dải nhiệt độ rộng từ -150 đến 400°C, dưới một điện áp hình sin có giá trị hiệu dụng trong khoảng 5mV đến 3V. Giá trị của nhiệt độ và hệ số tổn hao điện môi trong phép đo được đảm bảo chính xác với sai số tương ứng dưới 0,1°C và $5 \cdot 10^{-5}$.

Để thu được kết quả tối ưu cho phép đo, hình dạng của mẫu thử vật liệu phải thỏa mãn các điều kiện sau đây [8]: điện dung của mẫu thử phải nằm trong khoảng 50 đến 200pF (tối ưu là 100pF) trong dải tần số từ 100kHz đến 10MHz. Ở dải tần số thấp, điện dung của mẫu thử có thể lớn hơn dải trên, đến 2nF, vẫn đem lại kết quả chính xác. Nếu hằng số điện môi của mẫu thử đã biết, điện dung của mẫu thử có thể được xác định bởi công thức sau:

$$C = \frac{\epsilon_0 \epsilon_r S}{d} = \frac{\epsilon_0 \epsilon_r \pi D^2}{4d} \tag{1}$$

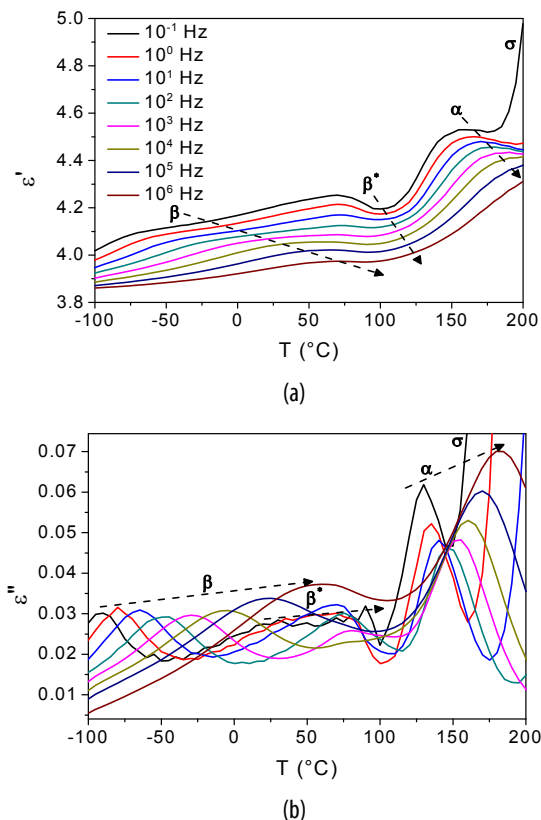
Trong đó, D là đường kính của điện cực kim loại (m), d là chiều dày của mẫu thử (m).

Vật liệu thí nghiệm được sử dụng trong nghiên cứu này là PEN bán kết tinh dạng phim, có nhiệt độ nóng chảy là 269°C và nhiệt độ thủy tinh hóa là 121°C [10]. Mẫu thử vật liệu thí nghiệm có độ dày 188µm, đường kính 20mm, tại trung tâm mỗi mặt phim được phủ một lớp kim loại bằng vàng có đường kính 16mm. Các phép đo quang phổ điện môi trên mẫu thử này được thực hiện dưới điện áp xoay chiều 1V, trong dải tần số từ 0,1Hz đến 1MHz và trong dải nhiệt độ từ -100 đến 200°C.

Hình 2 giới thiệu sự biến thiên của phần thực và phần ảo của hằng số điện môi phức của vật liệu PEN theo nhiệt độ với các giá trị khác nhau của tần số. Chúng ta có thể quan sát được ba đỉnh được đặt tên là β , β^* và α - liên hệ với ba cơ chế tích thoát (relaxation - xuất hiện cực đại hoặc cực tiểu) điện môi. Ba đỉnh này cũng được báo cáo trong các nghiên cứu đã được công bố trên vật liệu PEN bán kết tinh [11] và PEN vô định hình [12]. Đỉnh thứ nhất, β , có nguồn gốc từ các dao động cục bộ của nhóm ester (-O-C=O), tương tự như quá trình của đỉnh β trong vật liệu PET [13]. Nguồn gốc của đỉnh β^* gắn liền với sự dao động của hai vòng benzen là các nhóm cacbonyl xung quanh [14], trong khi đó đỉnh α liên hệ trực tiếp với sự chuyển động vi mô Brownian của các phân đoạn trong chuỗi phân tử và là hệ quả của sự sắp xếp lại các chuỗi trong vùng vô định hình của vật liệu [15].

Trên hình 2a, phần thực của hằng số điện môi phức ϵ' giảm khi tần số tăng trong cả dải nhiệt độ đo. Trên hình 2b,

ta thấy rằng các đỉnh β , β^* và α dịch chuyển theo chiều tăng của nhiệt độ khi tần số tăng. Trong các đỉnh này, đỉnh β và α có hình dạng càng rộng khi tần số càng tăng. Biên độ của hai đỉnh này giảm khi tần số biến thiên từ 0,1 đến 100Hz, sau đó tăng lại ở các tần số cao hơn. Với đỉnh β^* , rất khó để xác định chính xác sự thay đổi về độ rộng cũng như biên độ của đỉnh này, do sự xếp chồng của nó với đỉnh α ở gần. Ở các tần số thấp (từ 0,1 đến 100Hz) và ở các nhiệt độ cao (từ 150°C), xuất hiện sự tăng nhanh của ϵ'' mà nguyên nhân của hiện tượng này chính là cơ chế dẫn điện của vật liệu được kích hoạt.

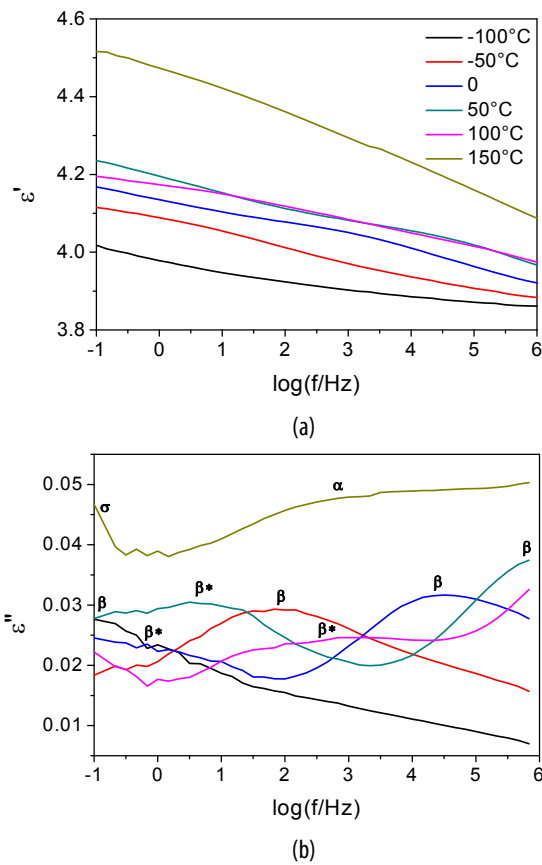


Hình 2. Phần thực (a) và phần ảo (b) của hằng số điện môi phức của vật liệu PEN trong khoảng nhiệt độ từ -100 đến 200°C với các tần số từ 0,1Hz đến 1MHz

Hình 3 giới thiệu sự biến thiên của phần thực và phần ảo của hằng số điện môi phức của vật liệu PEN theo tần số với các giá trị khác nhau của nhiệt độ trong hệ tọa độ bán-logarit. Hằng số điện môi ϵ' giảm theo chiều tăng của tần số. Điều này được giải thích bởi các thành phần cấu thành ϵ' , là β , β^* và α , đều giảm khi tần số tăng tuân theo sự biến thiên Havriliak-Negami [7]. Theo chiều biến thiên của nhiệt độ, chúng ta nhận thấy rằng ϵ' có xu hướng chung là tăng khi nhiệt độ tăng, trừ trường hợp 50°C và 100°C trên hình 3a. Điều này có thể giải thích do sự biến thiên không theo chiều cố định về độ lớn của các cơ chế tích thoát β và β^* , mà các cơ chế này lại giữ vai trò chủ đạo trong khoảng giữa hai giá trị nhiệt độ trên.

Trên hình 3b, ba đỉnh tích thoát β , β^* và α , được quan sát thấy trên các đường cong của tổn hao điện môi. Khi nhiệt độ tăng, các đỉnh này dịch chuyển theo chiều tăng của tần số. Quan sát này phù hợp với các định luật Arrhenius và

Vogel-Fulcher-Tammann. Tuy nhiên, cả ba đỉnh này không xuất hiện cùng nhau trong cửa sổ tần số đo (từ 10^{-1} đến 10^6 Hz) với một nhiệt độ đo nhất định. Ví dụ, tại -50°C, chỉ có đỉnh β được xác định. Từ 0 đến 100°C, hai đỉnh β và β^* xuất hiện, trong khi đó tại 150°C đỉnh α và điện dẫn σ mới là các hiện tượng được quan sát thấy.



Hình 3. Phần thực (a) và phần ảo (b) của hằng số điện môi phức của vật liệu PEN trong khoảng tần số từ 0,1Hz đến 1MHz với các nhiệt độ từ -100 đến 150°C

Sự xuất hiện của các cơ chế tích thoát, tuy không đồng thời trong cửa sổ đo, nhưng hằng số điện môi phức luôn là sự xếp chồng của tất cả các cơ chế đó tại bất kì nhiệt độ nào. Sự xem xét về ảnh hưởng của từng cơ chế đối với độ phân cực, trong giới hạn của thí nghiệm, đòi hỏi phân tích tổng thể các dữ liệu thực nghiệm tại tất cả các nhiệt độ để tìm ra quy luật biến thiên của các tham số nhờ đó ngoại suy được các thành phần không xuất hiện trong cửa sổ đo.

3. PHƯƠNG PHÁP NGHỊCH ĐẢO TẦN SỐ - THỜI GIAN

3.1. Mô hình hóa hằng số điện môi phức trong miền tần số

Việc nghiên cứu hiện tượng phân cực của vật liệu PEN cần thông tin về dòng điện phân cực chạy qua vật liệu, nhất là trong khoảng thời gian rất ngắn (< 1s) khi mà các phép đo dòng điện ngoài trực tiếp hiện nay gần như không thể chạm tới giới hạn thời gian này. Để nhận được dòng điện phân cực trong khoảng thời gian rất ngắn, chúng tôi sử dụng phương pháp nghịch đảo tần số - thời gian đối với dữ liệu thực nghiệm thu được từ phép đo quang phổ điện môi. Việc biến đổi từ miền tần số sang miền thời gian được thực hiện bởi Phép biến đổi Fourier ngược (IFFT) [16]. Tuy

nhiên, đầu vào của phép biến đổi số này phải là một hàm số liên tục, nghĩa là miền xác định của biến số có thể được chia nhỏ tùy ý chứ không phải là các điểm rời rạc như dữ liệu thực nghiệm thu được của phép đo quang phổ điện môi. Điều đó dẫn đến một bước quan trọng trong nghiên cứu của chúng tôi, trước bước nghịch đảo tần số - thời gian, đó là mô hình hóa hằng số điện môi đo được (ϵ' và ϵ'') bằng các hàm số liên tục trong miền tần số. Qua việc tìm hiểu các nghiên cứu trước đó về vấn đề này, chúng tôi sử dụng các hàm số kinh nghiệm Cole-Cole để hồi quy các dữ liệu thực nghiệm [12, 17, 18]. Trong đó, một hàm số Cole-Cole có dạng như sau:

$$\epsilon^*(\omega) = \epsilon'(\omega) - j\epsilon''(\omega) = \epsilon_\infty + \frac{\Delta\epsilon}{1 + (j\omega\tau)^b} \quad (2)$$

Trong đó: $\Delta\epsilon = \epsilon_s - \epsilon_\infty$ với ϵ_s là hằng số điện môi tĩnh tại thời điểm $t = \infty$ hoặc tần số $f = 0$ và ϵ_∞ là hằng số điện môi vô hạn tại thời điểm $t = 0$ hoặc tần số $f = \infty$, b là tham số xác định độ rộng của của đỉnh tích thoát đối xứng, τ là thời gian tích thoát tương ứng với đỉnh tích thoát.

Với mỗi đỉnh tích thoát, thông thường được hồi quy bằng một hàm số Cole-Cole. Như vậy đối với dữ liệu thực nghiệm ở nhiệt độ cao, chúng ta phải tính đến tất cả các cơ chế tích thoát và điện dẫn (β , β^* , α và σ). Khi đó, phương trình tổng quát để hồi quy dữ liệu thực nghiệm sẽ là:

$$\epsilon^*(\omega) = \epsilon'(\omega) - j\epsilon''(\omega) = \epsilon_\infty + \sum_{i=1}^n \frac{\Delta\epsilon_i}{1 + (j\omega\tau_i)^{b_i}} + \frac{\kappa}{\epsilon_0(j\omega)^s} \quad (3)$$

Với n là số lượng cơ chế tích thoát, κ và s là các hằng số của quá trình dẫn điện ($\kappa > 0$; $0 < s \leq 1$).

Trong quá trình thực hiện hồi quy dữ liệu thực nghiệm, để tránh sự phức tạp của hồi quy dữ liệu phức, chúng tôi thực hiện hồi quy lần lượt từng phần, phần thực và phần ảo của hằng số điện môi. Phương trình Cole-Cole từng phần được rút ra từ công thức (3) như sau:

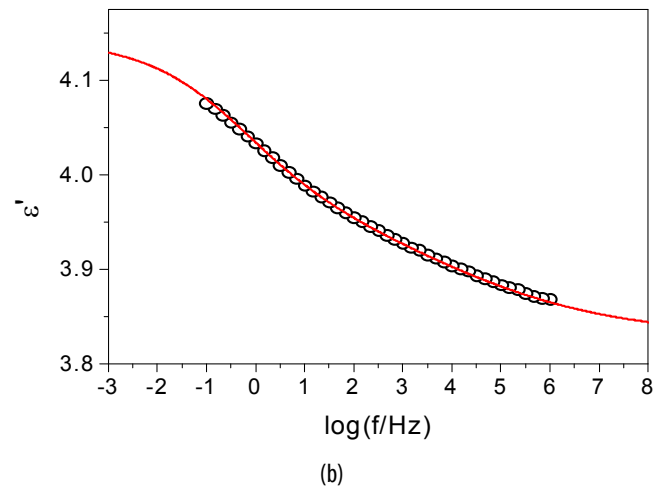
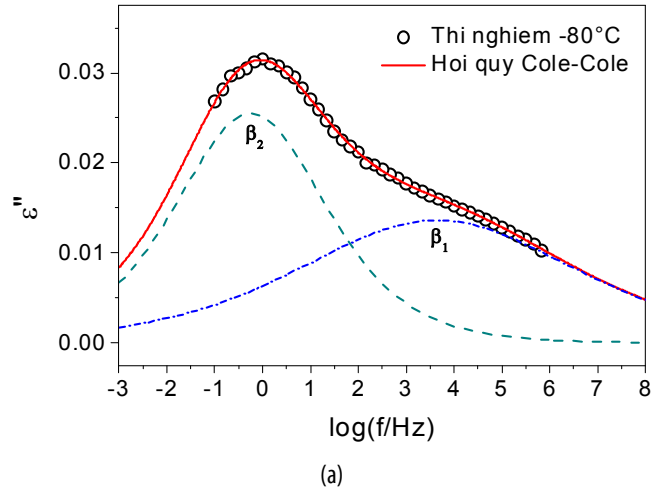
$$\epsilon'(\omega) = \epsilon_\infty + \sum_{i=1}^n \frac{\Delta\epsilon_i \cdot \cos(\varphi_i)}{\left[1 + 2(\omega\tau_i)^{b_i} \sin\frac{\pi(1-b_i)}{2} + (\omega\tau_i)^{2b_i}\right]^{1/2}} + \frac{\kappa}{\epsilon_0\omega^s} \cos\frac{\pi s}{2} \quad (4)$$

$$\epsilon''(\omega) = \sum_{i=1}^n \frac{\Delta\epsilon_i \cdot \sin(\varphi_i)}{\left[1 + 2(\omega\tau_i)^{b_i} \sin\frac{\pi(1-b_i)}{2} + (\omega\tau_i)^{2b_i}\right]^{1/2}} + \frac{\kappa}{\epsilon_0\omega^s} \sin\frac{\pi s}{2} \quad (5)$$

Với

$$\varphi_i = \arctan\left[\frac{(\omega\tau_i)^{b_i} \cos\frac{\pi(1-b_i)}{2}}{1 + (\omega\tau_i)^{b_i} \sin\frac{\pi(1-b_i)}{2}}\right] \quad (6)$$

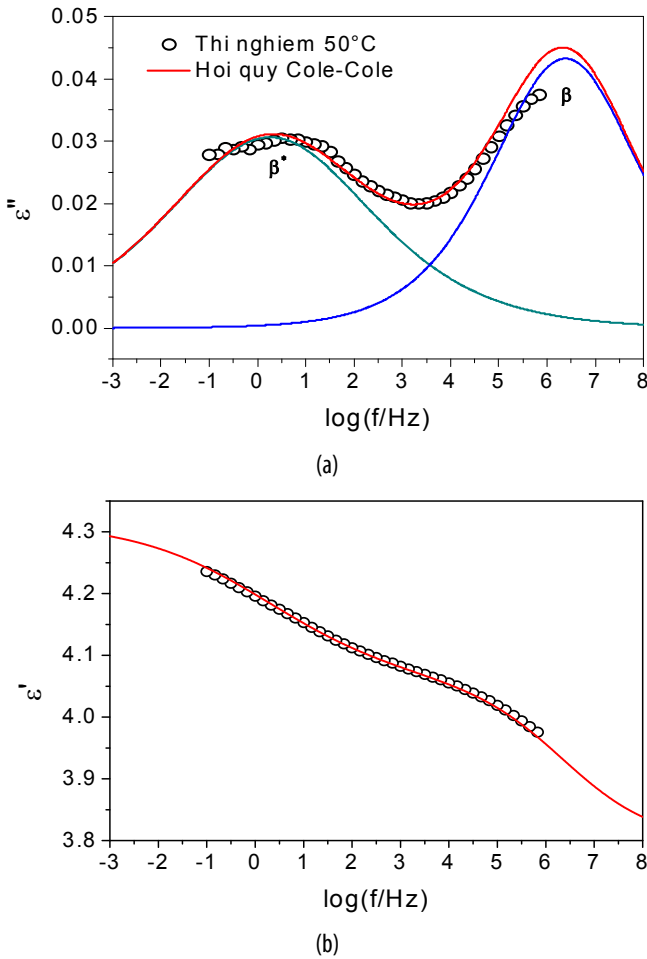
Chi tiết của quy trình hồi quy ngoại suy dữ liệu của phép đo quang phổ điện môi đã được trình bày trong một nghiên cứu trước đó [19]. Trong bài báo này, chúng tôi minh họa hai kết quả của quy trình hồi quy ngoại suy tại nhiệt độ -80 và 50°C.



Hình 4. Phần ảo (a) và phần thực (b) của hằng số điện môi phức của vật liệu PEN tại -80°C: dữ liệu thực nghiệm và kết quả hồi quy

Hình 4 giới thiệu kết quả hồi quy hằng số điện môi phức tại -80°C. Chỉ duy nhất đỉnh β xuất hiện trong cửa sổ đo, nhưng chúng ta cũng quan sát thấy một điểm “gãy” tại 10²Hz, điều này gắn liền với bản chất vật lý của đỉnh β , đó là sự xếp chồng của hai quá trình đối xứng, β_1 và β_2 [17]. Hakme và đồng tác giả [18] đã nghiên cứu về hai quá trình đối xứng này và phát hiện ra rằng, độ lớn của đỉnh β_2 phụ thuộc mạnh mẽ vào độ ẩm chứa trong mẫu thử vật liệu, trong khi độ lớn của đỉnh β_1 phụ thuộc vào tỉ suất và nhiệt độ kéo căng vật liệu. Việc hồi quy dữ liệu của phép đo quang phổ điện môi tại -80°C bằng hai đỉnh β_1 và β_2 cho một kết quả chính xác rất cao với cả phần thực và phần ảo của hằng số điện môi phức. Tuy nhiên ở các nhiệt độ cao hơn, ảnh hưởng của quá trình β_1 gần như không còn, để đơn giản quy trình hồi quy, chúng tôi chỉ dùng một hàm số Cole-Cole để hồi quy đỉnh β của hằng số điện môi phức.

Hằng số điện môi phức tại 50°C chủ yếu được xếp chồng bởi hai cơ chế β và β^* . Kết quả hồi quy tại nhiệt độ này được giới thiệu trên hình 5, trong đó đỉnh β được ngoại suy từ việc hồi quy tại những nhiệt độ thấp hơn. Kết quả hồi quy hằng số điện môi ϵ' luôn có sai số dưới 5% tại tất cả các nhiệt độ.



Hình 5. Phần ảo (a) và phần thực (b) của hằng số điện môi phức của vật liệu PEN tại 50°C: dữ liệu thực nghiệm và kết quả hồi quy

3.2. Phép nghịch đảo tần số - thời gian

Sau khi mô hình hóa kết quả của phép đo quang phổ điện môi bằng các hàm số thực nghiệm Cole-Cole, chúng tôi đi sẽ tích hợp mô hình hóa này vào phép nghịch đảo để thu được dòng điện trong miền thời gian. Quá trình nghịch đảo xuất phát từ phương trình Maxwell-Ampere trong hệ phương trình Maxwell:

$$J_T(t) = j_c(t) + \frac{\partial D(t)}{\partial t} \tag{7}$$

Trong đó: J_T là dòng điện tổng, j_c là dòng điện dẫn và D là độ dịch chuyển điện tích gây ra bởi quá trình phân cực. Độ dịch chuyển điện tích trong miền tần số được biểu thị như sau:

$$D(\omega) = \epsilon_0 \epsilon^*(\omega) E(\omega) \tag{8}$$

Thay phần phân cực (cơ chế tích thoát) trong phương trình (3) vào (8), biểu thức của độ dịch chuyển điện tích được viết thành công thức (9).

$$D(\omega) = \epsilon_0 \epsilon_\infty E(\omega) + \epsilon_0 E(\omega) \sum_{i=1}^n \frac{\Delta \epsilon_i}{1 + (j\omega \tau_i)^{b_i}} \tag{9}$$

$$= \epsilon_0 [\epsilon_\infty + \Delta\Theta(\omega)] E(\omega)$$

Với:
$$\Delta\Theta(\omega) = \sum_{i=1}^n \frac{\Delta \epsilon_i}{1 + (j\omega \tau_i)^{b_i}} \tag{10}$$

Thực hiện phép biến đổi Fourier ngược đối với hàm $\Delta\Theta$, $\Delta\Theta(t_j) = TF^{-1}\{\Delta\Theta(\omega)\}$, ta thu được độ dịch chuyển điện tích trong miền thời gian như công thức (11).

$$D(t_j) = \epsilon_0 [\epsilon_\infty E(t_j) + \Delta\Theta(t_j) * E(t_j)] \tag{11}$$

Dấu * trong công thức (11) biểu thị một tích chập (một phép biến đổi tích phân đặc biệt), t_i là các thời điểm tương ứng với sự chia nhỏ trong miền tần số khi biến đổi Fourier ngược. Giả sử dùng N điểm để chia nhỏ đều miền tần số. Mỗi đoạn chia trong miền tần số sẽ là $\Delta f = f_{max}/(N-1)$. Số điểm cần tính toán trong phép biến đổi Fourier ngược là $2N$ và đoạn chia trong miền thời gian sẽ bằng:

$$\Delta T = \frac{1}{2N\Delta f} \approx \frac{1}{2f_{max}}$$

Khi đó: $t_j = j\Delta T$

Lấy đạo hàm theo thời gian của độ dịch chuyển điện tích, ta sẽ thu được dòng điện phân cực:

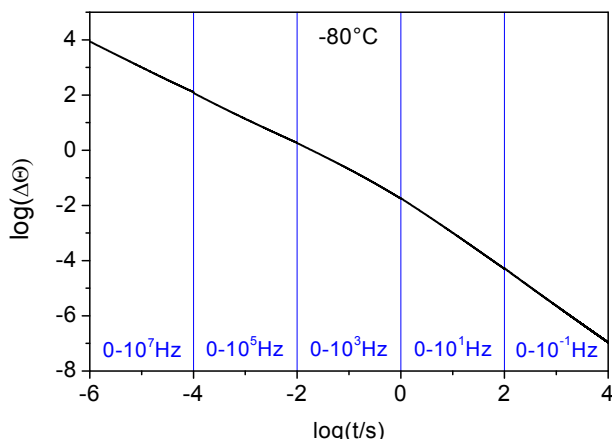
$$j_d(t_j) = \frac{\partial D(t)}{\partial t} = \epsilon_0 [\epsilon_\infty \delta(t_j) + \Delta\Theta(t_j)] E(t_j) \tag{12}$$

Trong đó, $\delta(t_j)$ là một xung Delta-Dirac.

Mục đích bây giờ là thu được dòng điện ở thời gian rất ngắn (từ 10^{-6} đến 10s) tương ứng với dải tần số đo (10^{-1} đến 10^6 Hz). Thực hiện phép nghịch đảo trong một dải tần số rộng như vậy đòi hỏi số lượng rất lớn các điểm để chia nhỏ dải tần số này sao cho nhận được kết quả chính xác. Trong các lần thử nghiệm phép nghịch đảo với số lượng điểm chia khác nhau, chúng tôi thấy rằng nếu số lượng điểm chia chưa đạt đến một mức nhất định, thì các dòng điện nhận được không trùng nhau khi số lượng điểm chia khác nhau. Để nhận được dòng điện chính xác, chúng tôi luôn lấy kết quả là dòng điện, không còn thay đổi cho dù số lượng điểm chia tăng lên. Tuy nhiên thời gian tính toán với một số lượng lớn điểm chia trong dải tần số rộng đang xét lớn hơn nhiều. Chính vì vậy, trước hết, chúng tôi đã chia nhỏ dải tần số xét thành các dải tần số nhỏ hơn và sau đó, thực hiện phép nghịch đảo trên từng dải tần số nhỏ này.

Hình 6 giới thiệu một ví dụ về hàm $\Delta\Theta(t)$ với miền thời gian rộng nhận được từ dữ liệu của phép đo quang phổ điện môi trên vật liệu PEN tại -80°C. Từ kết quả hồi quy dữ liệu thực nghiệm trên hình 4, ta thực hiện phép biến đổi Fourier ngược cho năm dải tần số, mỗi dải chứa 2^{20} điểm chia, xác định bởi các tần số lớn nhất sau: $f_{max} = 10^7, 10^5, 10^3, 10^1, 10^{-1}$ Hz. Với mỗi dải tần số này, chúng tôi chỉ lựa chọn một đoạn thời gian tương ứng có độ chính xác cao nhất, $\Delta\log(T) = 2$ với ví dụ này. Cuối cùng, việc ghép các đoạn thời gian này sẽ thu được phản hồi trong miền thời gian với thời gian rất nhanh, 1/3s. Nếu so sánh với việc thực hiện phép nghịch đảo trong duy nhất dải tần số $[0, 10^7]$ Hz chứa 2^{24} điểm, mặc dù đem lại cùng một kết quả chính xác nhưng thời gian tính toán lâu

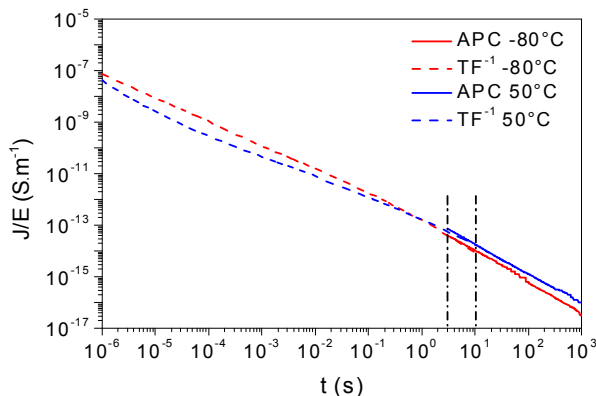
hơn nhiều, là 294s. Nếu dùng từ 2^{25} điểm chia, thời gian tính toán trở nên vô cùng lớn.



Hình 6. Phương pháp chia miền tần số trong phép biến đổi chuỗi Fourier ngược

4. SỰ TƯƠNG QUAN GIỮA KẾT QUẢ CỦA PHÉP ĐO QUANG PHỔ ĐIỆN MÔI VÀ PHÉP ĐO DÒNG ĐIỆN TẠI ĐIỆN TRƯỜNG YẾU

Trong phần này, chúng tôi xem xét sự tương quan giữa dòng điện trong khoảng thời gian rất ngắn thu được từ phép nghịch đảo tần số-thời gian với dòng điện đo được ở thời gian dài dưới điện trường yếu, từ đó xác thực được độ chính xác của phép nghịch đảo. Để có được sự tương quan, cả hai loại dòng điện này đều phải do quá trình phân cực trong vật liệu PEN gây ra. Dòng điện trong thời gian nhận được từ phép đo APC trên vật liệu PEN [20]. Trong phép đo APC, điện trường đặt lên điện môi là rất yếu để đảm bảo hiện tượng điện dẫn chưa được kích hoạt, nhờ đó dòng điện thu được là dòng thuần phân cực.



Hình 7. Dòng điện phân cực chuẩn hóa tại thời gian rất ngắn và thời gian dài

Trên hình 7 là các dòng điện phân cực trong một dải tần số rất rộng $[10^{-6}, 10^3\text{s}]$ tương ứng với hai nhiệt độ được chọn để minh họa là -80 và 50°C . Với mỗi nhiệt độ, có một dòng điện tại thời gian rất ngắn $[10^{-6}, 10^1\text{s}]$ thu được bởi phép nghịch đảo đối với hằng số điện môi phức, đo được bởi phép đo quang phổ điện môi; và một dòng điện tại thời gian dài $[3, 1000\text{s}]$ đo được bởi phép đo APC dưới điện trường yếu. Chúng tôi nhận thấy rằng một sự tương quan rất tốt giữa hai loại dòng điện này. Các phần dòng điện trong dải thời gian chung $[3, 10\text{s}]$ của hai phương pháp gần

như đồng nhất với mỗi nhiệt độ. Và các dòng điện tại -80 và 50°C cũng tách rời nhau.

Nghiên cứu này đem đến những thông tin liên quan đến hiện tượng phân cực, ở đây thể hiện qua dòng điện ngoài, trong một miền thời gian rất ngắn - không đo được bởi các kỹ thuật đo dòng điện hiện tại. Trong thời gian dài, dòng điện tại 50°C lớn hơn dòng điện tại -80°C . Nhưng khi thu được dòng điện trong thời gian rất ngắn, chúng ta thấy rằng đều đó không đúng trong toàn bộ miền thời gian. Ở thời gian rất ngắn, dòng điện tại -80°C lại lớn hơn dòng điện tại 50°C . Điều này được giải thích nếu như ta quan sát sự biến thiên của tổn hao điện môi theo tần số. Độ rộng của đỉnh β_2 trong hình 4 nhỏ hơn độ rộng của đỉnh β^* trong hình 5, có nghĩa là ảnh hưởng của cơ chế tích thoát β_2 kém hơn β^* ở các tần số xa tần số tích thoát (tần số mà tổn hao điện môi đạt giá trị lớn nhất). Hơn nữa, tại -80°C , chỉ tồn tại chủ yếu cơ chế β , trong khi tại 50°C là cả hai cơ chế β và β^* . Điều đó dẫn đến sự thay đổi độ dốc của dòng điện phân cực tại 10^{-3} s tại 50°C .

5. KẾT LUẬN

Phần thực (hằng số điện môi) và phần ảo (tổn hao điện môi) của hằng số điện môi phức - thu được từ phép đo quang phổ điện môi trên vật liệu PEN trong cửa sổ tần số $[10^{-6}, 10^1\text{Hz}]$ và cửa sổ nhiệt độ $[-100, 200^\circ\text{C}]$ có liên quan chặt chẽ đến hiện tượng phân cực thể hiện qua các cơ chế tích thoát β, β^* và α . Cơ chế dẫn điện σ cũng được quan sát thấy trên kết quả của phép đo tại những nhiệt độ cao ($> 150^\circ\text{C}$). Phép nghịch đảo tần số - thời gian được thực hiện trên dữ liệu thực nghiệm giúp thu được dòng điện phân cực trong khoảng thời gian rất ngắn $[10^{-6}, 10^{-1}\text{s}]$ với sự trợ giúp của các hàm số Cole-Cole và một phép biến đổi Fourier ngược. Dòng điện trong thời gian rất ngắn này cho thấy sự tương quan rất tốt với dòng điện trong thời gian dài đo được bởi phương pháp APC. Chúng ta nhận thấy nhiều thông tin gắn liền với hiện tượng phân cực định hướng có thể thu được và lý giải.

Trong những nghiên cứu sau, chúng tôi sẽ đi khai thác những thông tin về hiện tượng phân cực trên dòng điện trong thời gian rất ngắn thu được để hiểu rõ hơn về cơ chế dẫn điện cũng như tích hợp vào quá trình mô hình hóa vật liệu cách điện rắn dưới các ứng suất điện - nhiệt.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

[1]. G. Teyssède, C. Laurent, G.C. Montanari, F. Palmieri, A. See, L.A. Dissado, J.C. Fothergill, 2001. *Charge distribution and electroluminescence in cross-linked polyethylene under dc field*. Journal of Physics D: Applied Physics, 34, 2830-2844.

[2]. N. Saidi-Amroun, S. Berdous, M. Bendaoud, 2004. *Measured and simulated transient current in polyethylene terephthalate films below and above the glass transition temperature*. Proceedings of the 2004 IEEE International Conference on Solid Dielectrics (ICSD), Toulouse, France, 1, 137-140.

[3]. S. Le Roy, G. Teyssède, C. Laurent, G.C. Montanari, F. Palmieri, 2006. *Description of charge transport in polyethylene using a fluid model with a constant*

mobility: fitting model and experiments. Journal of Physics D: Applied Physics, 39, 1427-1436.

[4]. V. V. Duong, 2002. *Vat lieu dien - dien tu*. Vietnam National University Ho Chi Minh City Press.

[5]. C. Menguy, 1997. *Mesure des caractéristiques des matériaux isolants solides*. Techniques de l'Ingénieur, traité Génie électrique, D 2 310.

[6]. F. Alvarez, A. Alegría, J. Colmenero, 1991. *Relationship between the time-domain Kohlrausch-Williams-Watts and frequency-domain Havriliak-Negami relaxation functions*. Physical Review B, Vol. 44, pp. 7306-7312.

[7]. J.M. Alison, R.M. Hill, 1994. *A model for bipolar charge transport, trapping and recombination in degassed crosslinked polyethylene*. Journal of Physics D: Applied Physics, Vol. 27, pp. 1291-1299.

[8]. Novocontrol Technologies, 2010. *Alpha-A High resolution Dielectric, Conductivity, Impedance and Gain Phase Modular Measurement System*. <http://www.novocontrol.de>.

[9]. Novocontrol Technologies, 2014. *Alpha-A, Alpha and Beta High Performance Dielectric, Conductivity and Electrochemical Impedance Analyzers*. <http://www.novocontrol.de>.

[10]. R. Eveson, W.A. MacDonald, D. MacKerron, A. Hodgson, R. Adam, K. Rakos, K. Rollins, R. Rustin, M.K. Looney, J. Stewart, M. Asai, K. Hashimoto, 2008. *Optimising Polyester Films for Flexible Electronic Applications*. SID Int. Symp. Dig. Tech. Papers, 39, 1431-1434.

[11]. J.C. Cañadas, J.A. Diego, M. Mudarra, J. Belana, R. Díaz-Calleja, M.J. Sanchis, C. Jaimés, 1999. *Relaxational study of poly(ethylene-2,6-naphthalene dicarboxylate) by t.s.d.c., d.e.a. and d.m.a.* Polymer, Vol. 40, pp. 1181-1190.

[12]. A. Nogales, Z. Denchev, T.A. Ezquerra, 2000. *Influence of the Crystalline Structure in the Segmental Mobility of Semicrystalline Polymers: Poly(ethylene naphthalene-2,6-dicarboxylate)*. Macromolecules, Vol. 33, pp. 9367-9375.

[13]. B. Schartel, J.H. Wendorff, 1995. *Dielectric investigations on secondary relaxation of polyarylates: comparison of low molecular models and polymeric compounds*. Polymer, Vol. 36, pp. 899-904.

[14]. H. Dörlitz, H.G. Zachmann, 1997. *Molecular mobility in poly(ethylene-2,6-naphthalene dicarboxylate) as determined by means of deuterium NMR*. Journal of Macromolecular Science, Part B, Vol. 36, pp. 205-219.

[15]. J. Belana, M. Mudarra, J. Calaf, J.C. Cañadas, E. Menendez, 1993. *TSC study of the polar and free charge peaks of amorphous polymers*. IEEE Transactions on Electrical Insulation, Vol. 28, pp. 287-293.

[16]. <https://www.mathworks.com/help/matlab/ref/iff.html>

[17]. S.P. Bravard, R.H. Boyd, 2003. *Dielectric Relaxation in Amorphous Poly(ethylene terephthalate) and Poly(ethylene 2,6-naphthalene dicarboxylate) and Their Copolymers*. Macromolecules, Vol. 36, pp. 741-748.

[18]. C. Hakme, I. Stevenson, L. David, G. Boiteux, G. Seytre, A. Schönhals, 2005. *Uniaxially stretched poly(ethylene naphthalene 2,6-dicarboxylate) films studied by broadband dielectric spectroscopy*. Journal of Non-Crystalline Solids, Vol. 351, pp. 2742-2752.

[19]. M. Q. Hoang, L. Boudou, S. Le Roy, G. Teyssède, 2014. *Implementation of polarization processes in a charge transport model using time and frequency domain measurements on PEN films*. 9^{ème} conférence de la Société Française d'Electrostatique, Toulouse, France, 27-29 août 2014.

[20]. M. Q. Hoang, M. Q. Nguyen, 2018. *Polarization and Conduction Processes of PEN Film under Thermo - Electrical Stresses*. Journal of Science and Technology, Hanoi University of Industry, No. 48, p. 53-58.

AUTHORS INFORMATION

Hoang Mai Quyen¹, Nguyen Manh Quan¹, Nguyen Duy Minh²

¹Faculty of Electrical Engineering, Hanoi University of Industry

²Electric Power University