UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO
Escola de Engenharia de São Carlos-EESC
Instituto de Física de São Carlos-IFSC
Instituto de Química de São Carlos-IQSC

Técnica do Pulso Eletroacústico para Medidas de Perfis de Carga

Espacial em Dielétricos

Jorge Tomioka

Tese apresentada à Área de Inter-unidades em Ciências e Engenharia de Materiais, do IFSC, IQSC e da EESC, São Carlos, para obtenção do título de Doutor em Ciências e Engenharia de Materiais.

Orientador: *Prof. Dr. José Alberto Giacometti*

São Carlos - SP
1999

Tomioka, Jorge

Técnica do Pulso Eletroacústico para Medidas de Perfis de Carga Espacial
em Dielétricos/ Jorge Tomioka

114p

Tese (Doutorado) – Instituto de Física de São Carlos, 1999

Orientador: Prof. Dr. José Alberto Giacometti

1. Carga Espacial. 2. Técnica do Pulso Eletroacústico. 3. Materiais
Poliméricos Isolantes. 4 Alta Tensão Elétrica.

I. Título

Índice

LISTA DE FIGURAS.....	5
LISTA DE TABELAS	7
DEDICATÓRIA	8
AGRADECIMENTOS.....	9
RESUMO	10
ABSTRACT	11
I - INTRODUÇÃO	12
1.1 Medidas Elétricas e Dielétricas	13
1.2 Técnicas acústicas de medidas de carga espacial	15
1.2.1 Técnicas da propagação de onda de pressão – PWP/PPS.....	15
1.2.2 Técnica do pulso de pressão induzida por laser – LIPP	16
1.2.3 Técnica do Pulso Eletroacústico- PEA	16
1.3 Comentários sobre as técnicas	17
1.4 Motivação da linha de pesquisa	19
1.5 Objetivos do Trabalho	22
II - PRINCÍPIO BÁSICO DA TÉCNICA DO PULSO ELETROACÚSTICO..	23
2.1 Equações Gerais	23
2.2 Determinação das densidades de cargas induzidas nos eletrodos	25
2.3 Forças Geradas pelo Campo Elétrico Pulsado.....	26
2.4 Incidência da onda acústica no transdutor.....	28
2.5 Geração de sinais elétricos no transdutor	32
2.6 Resposta elétrica medida no osciloscópio	33
2.7 Comentários Finais	35
III - DESCRIÇÃO DO SISTEMA PEA	36
3.1 Diagrama geral do sistema.....	36
3.2 Análise acústica do sistema.....	37
3.3 Transdutor Piezolétrico	39

3.4	Fonte de tensão dc.....	40
3.5	Gerador de pulso de tensão	41
3.6	Atenuador	43
3.7	Amplificador e osciloscópio.....	45
IV	- PROCEDIMENTO DE DESCONVOLUÇÃO DO SINAL E CALIBRAÇÃO DA MEDIDA	48
4.1	Procedimento para desconvolução do sinal.....	48
4.2	Exemplo do cálculo da função de transferência e desconvolução do sinal medido.....	51
4.3	Considerações Gerais sobre o Método PEA.....	53
4.3.1	DETERMINAÇÃO DA FUNÇÃO DE TRANSFERÊNCIA.....	54
4.3.2	AVALIAÇÃO DA APROXIMAÇÃO LINEAR $P(T)$ VERSUS $E_p(T)$	56
4.4	Atenuação e dispersão durante a propagação.....	57
4.5	Demonstração do problema de acoplamento acústico	59
4.5	Conclusão.....	62
V	- RESULTADOS.....	63
5.1	Polímeros e Amostras	63
5.2	Avaliação preliminar das propriedades elétricas de amostras.....	65
5.3	Procedimento Experimental - Medidas com o PEA.....	68
5.3	Perfis de carga espacial para o polietileno ZSA-LPDE.....	70
5.4	Perfis de carga espacial para o polietileno MSA-LPDE.....	76
5.5	Perfis de carga espacial para o polietileno MTA-LPDE.....	81
5.7	Importância da injeção de carga espacial na rigidez dielétrica e efeito do tratamento por ozônio	91
VI	- CONCLUSÃO	95
APÊNDICE A		97
DEDUÇÃO DO COEFICIENTE DE GERAÇÃO ACÚSTICO NUMA INTERFACE		97
APÊNDICE B		102

ANÁLISE DA ATENUAÇÃO E DISPERSÃO DO PULSO ACÚSTICO	102
B.1 Análise da teoria da atenuação e dispersão	102
B.2 Cálculo dos fatores de atenuação e dispersão.....	103
APÊNDICE C.....	106
C - 1 Publicações em Congressos e Simpósios	106
C - 2 Atividades de Desenvolvimento de Projetos.....	107
VI - REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	109

Lista de Figuras

Figura 1 Instalação de redes cabos de 500kV AC (a) Subterrâneo (b) Submarino (c) corte transversal do cabo (d) corredor de linha de transmissão convencional.	21
Figura 2 Parte superior da figura: desenho esquemático do sistema experimental. Parte inferior: diagrama de geração e de propagação dos sinais [31]	24
Figura 3 Desenho esquemático da amostra/eletrodos, mostrando as forças, campos elétricos e cargas induzidas. A faixa azul corresponde a uma fatia da carga espacial na amostra.	27
Figura 4 Desenho esquemático da disposição dos elementos do sistema PEA. K são os coeficientes de transmissão e geração dos sinais acústicos e Z as impedâncias acústicas.	29
Figura 5 Diagrama do sinal acústico que chega ao transdutor e circuito elétrico equivalente ao conjunto transdutor/ amplificador.....	34
Figura 6 - Representação da atuação da função de transferência sobre o sinal $V_T(t)$	34
Figura 7 - Diagrama esquemático do circuito e do sistema PEA.....	37
Figura 8 - Configurações do gerador de pulso de tensão.....	42
Figura 9 Circuito disparo do relê.....	43
Figura 10 Conexão do circuito atenuador no sistema	44
Figura 11 Curva característica da impedância do circuito atenuador tipo Δ	45
Figura 12 Comparação dos sinais correspondente ao pulso elétrico obtidos em diferentes osciloscópios.....	47
Figura 13 Sinal típico de medida com aplicação do campo elétrico $E = 0,2 \text{ MV/cm}$ (não há injeção de cargas no volume da amostra).....	52
Figura 14 Função de transferência do sistema calculada no domínio da frequência.	53
Figura 15 Perfis das camadas de carga induzidas nos eletrodos da amostra, após o processo de desconvolução do sinal.	53
Figura 16 Sinal medido para a amostra virgem (sem qualquer tratamento: térmico, elétrico e químico) em curto circuito e com a aplicação da tensão ($E=0,05 \text{ MV/cm}$) para a calibração e obtenção da função transferência.....	55
Figura 17 Amplitude do sinal elétrico medido; correspondente a carga induzida no eletrodo inferior do sistema em função da tensão de polarização.....	56
Figura 18 Coeficientes de atenuação e dispersão para o PE (a) atenuação e (b) dispersão.....	58
Figura 19 Sinal medido com amostra de PET.	59
Figura 20 Medida com PET sem fita semi-condutoras	60
Figura 21 Amostra com duas fitas semi-condutora	61
Figura 22 Amostra com fita semi-condutora no eletrodo inferior.....	61

<i>Figura 23 Densidade de corrente em função do campo elétrico aplicado para diferentes polietilenos (a) T= 30 °C e (b) T= 90 °C</i>	<i>66</i>
<i>Figura 24 Densidade de corrente para amostra M4 em diferentes temperaturas</i>	<i>67</i>
<i>Figura 25 Esquema usado nas medida de perfis de carga espacial</i>	<i>70</i>
<i>Figura 26 Perfis da carga espacial da amostra ZSA-LPDE no instante da polarização.....</i>	<i>72</i>
<i>Figura 27 Perfis da carga espacial da amostra ZSA-LPDE polarizada durante 10 minutos</i>	<i>73</i>
<i>Figura 28 Perfis da carga espacial da amostra ZSA-LPDE no instante do curto-circuito</i>	<i>74</i>
<i>Figura 29 Perfis da carga espacial da amostra ZSA-LPDE após 10 minutos em curto-circuito.....</i>	<i>75</i>
<i>Figura 30 Perfis da carga espacial da amostra MSA-LPDE no instante da polarização.....</i>	<i>77</i>
<i>Figura 31 Perfis da carga espacial da amostra MSA-LPDE polarizada durante 10 minutos</i>	<i>78</i>
<i>Figura 32 Perfis da carga espacial da amostra MSA-LPDE no instante do curto-circuito</i>	<i>79</i>
<i>Figura 33 Perfis da carga espacial de amostras do tipo MSA-LPDE após 10 minutos em curto-circuito (a) polarização positiva (b) polarização negativa.....</i>	<i>80</i>
<i>Figura 34 Perfis da carga espacial da amostra MTA-LPDE no instante da polarização</i>	<i>82</i>
<i>Figura 35 Perfis da carga espacial da amostra MTA-LPDE polarizada durante 10 minutos.....</i>	<i>83</i>
<i>Figura 36 Perfis da carga espacial da amostra MTA-LPDE no instante do curto-circuito.....</i>	<i>84</i>
<i>Figura 37 Perfis da carga espacial da amostra MTA-LPDE após 10 minutos em curto-circuito</i>	<i>85</i>
<i>Figura 38 Perfis da carga espacial da amostra MMA-LPDE no instante da polarização</i>	<i>87</i>
<i>Figura 39 Perfis da carga espacial da amostra MMA-LPDE polarizada durante 10 minutos.....</i>	<i>88</i>
<i>Figura 40 Perfis da carga espacial da amostra MMA-LPDE no instante do curto-circuito.....</i>	<i>89</i>
<i>Figura 41 Perfis da carga espacial da amostra MMA-LPDE após 10 minutos de curto-circuito</i>	<i>90</i>
<i>Figura 42Detalhes do perfis de carga espacial da amostra MSA-LDPE.....</i>	<i>92</i>
<i>Figura 43 Resultados para tensão de ruptura com aplicação de pré-tensão.....</i>	<i>94</i>
<i>Figura 44 Elemento de volume e as grandezas envolvidas no cálculo</i>	<i>97</i>
<i>Figura 45 Detalhes da ação das pressões na interface entre dois meios.....</i>	<i>100</i>

Lista de Tabelas

<i>Tabela 1 Técnicas experimentais para medidas de perfis de campo elétrico.....</i>	<i>14</i>
<i>Tabela 2 Técnicas acústicas de medida do perfil de carga espacial [1].....</i>	<i>18</i>
<i>Tabela 3 Características de várias técnicas acústicas para determinação de perfis de carga espacial em dielétricos[14].</i>	<i>19</i>
<i>Tabela 4 Características acústicas dos elementos do sistema.....</i>	<i>38</i>
<i>Tabela 5 Valores das impedâncias acústicas dos elementos do PEA.....</i>	<i>38</i>
<i>Tabela 6 Valores dos coeficientes de transmissão e geração acústica.....</i>	<i>39</i>
<i>Tabela 7 Propriedades físicas do PVDF.....</i>	<i>40</i>
<i>Tabela 8 Características da fonte modular de alta tensão da Matsusada usada no gerador de pulso...</i>	<i>41</i>
<i>Tabela 9 Características do relé de mercúrio da Sanyu</i>	<i>42</i>
<i>Tabela 10 Características do amplificador bipolar MITEQ Inc.....</i>	<i>45</i>
<i>Tabela 11 Características dos osciloscópios TekTronix TDS 684B e TDS 380.....</i>	<i>46</i>
<i>Tabela 12 Tipos de amostras utilizadas nas medidas.....</i>	<i>64</i>
<i>Tabela 13 Propriedades físico-químicas dos PE obtidas com diferentes catalisadores.....</i>	<i>64</i>

Dedicatória

In the whole world,

- ✓ *The happiest and most splendid thing is having an occupation for a whole lifetime.*
- ✓ *The most miserable thing is as a human being not having education (culture).*
- ✓ *The most lonesome thing is not having an occupation.*
- ✓ *The ugliest thing is to envy other's livelihood.*
- ✓ *The noblest thing is to serve others by no means expecting retribution.*
- ✓ *The most beautiful thing is wholly having affection, tender feeling.*
- ✓ *The most sorrowful thing is lying.*

Translated By Antônio Norio Nakagaito

Fukuzawa, Yukichi (b. Jan. 10, 1835, Osaka - d. Feb. 3, 1901, Tokyo), author, educator, and publisher who was probably the most influential man outside government service in the Japan of the Meiji Restoration following the overthrow of the Tokugawa family in 1868. He led the struggle to introduce western ideas to increase, as he repeatedly wrote, Japanese "strength and independence."

Encyclopaedia Britannica - Micropaedia

Dedico aos meus pais e minhas irmãs pela compreensão e dedicação e ao Tio Ex-premier Yasuhiro Nakasone do Japão pelos apoios pessoais e pela dedicação à política.

Agradecimentos

Agradeço às pessoas que diretamente ou indiretamente contribuíram para o desenvolvimento deste trabalho.

Ao Prof. Dr. José Alberto Giacometti pela orientação e discussões sobre a tese e pela amizade. Agradecimento especial ao Professor Teruyoshi Mizutani pela co-orientação e também pelo apoio e divulgação da técnica PEA na COPEL – Companhia Paranaense de Energia que me possibilitou a abertura para desenvolver atividades junto ao laboratório LAC, com ênfase na qualificação de produtos industriais.

Agradecimentos especiais a todos os amigos que me motivaram nos momentos mais difíceis. Especialmente para Paulo Ribeiro e Maria de Fátima da Universidade da Nova Lisboa (Portugal), Fábio Akcelrud Durão, Célio Wisniewski, Maria José Wisniewski, Aldo Eloizo Job, Romildo Gerônimo Ramos Antônio Norio Nakagaito, Ricardo Zanon e Roberto Carobeno pela amizade de longa data. E aos demais amigos que não recordo no momento.

Ao Prof. Dr. Yashiro Yamamoto pela apoio de viagem ao Japão que me possibilitou buscar novos conhecimentos científicos e culturais.

Aos técnicos do grupo de polímeros: José Roberto Bertho, Níbio José Mangerona, Débora Balogh, Rosangela Maria Marcondes de Oliveira e Ademir Soares que me auxiliaram durante o período do programa de doutorado.

Aos docentes do grupo de polímeros “Prof. Bernhard Gross”, Prof. Dr. Roberto Faria Mendonça pela empenho dedicado ao desenvolvimento científico no grupo, Prof. Guilherme Leal Ferreira pelas contribuições conceituais, Prof. Mariangela T. Figueiredo pelas discussões teóricas, Osvaldo Novais de Oliveira Jr. pela dedicação à pesquisa e a Profa. Dra. Débora Gonçalves pelo apoio e amizade.

Ao docente da SEL-EESC/USP, Prof. Dr. Rui Corrêa Altafin pelas motivações e apoios concedidos durante a visita do Professor T. Mizutani.

À docente da UFSCar – DEMA, Profa. Dra. Maria Zanin pela elaboração da temática do projeto.

Ao Walterley Araujo Moura pela continuidade do projeto PEA no grupo de polímeros e Hitoshi Semi na Nagoya University.

Agradeço aos assistentes: Profa. Kazue Kaneko, Prof. Tatsuo Mori e Prof. Akimori Tabata da Nagoya University – Japão, pelas discussões sobre a teoria e a técnica do método PEA. Aos membros da comunidade internacional pelo incentivo e discussões do uso da técnica PEA: Prof. Yasuhiro Tanaka e Prof. Tatsuo Takada do Musashi Institute of Technology (Japão), Prof. Yasuo Suzuoki da University of Nagoya (Japão), Masamitsu Kosaki do Toyohashi Institute of Technology (Japão), Takashi Maeno da Communication Research Laboratory (Japão), Gian Carlo Montanari da University of Bologna (Itália), Bjørn Sanden da Norwegian University of Technology (Noruega), John M. Alison do King’s College (Reino Unido) e Prof. Dilip das Gupta – University of Wales (Inglaterra).

Ao pessoal do Laboratório Central – LAC COPEL /UFPR, Dr. Paulo Scarpa, Prof. René Robert, MSc. Luís Eduardo Caron e MSc. Henrique José Ternes Neto que me possibilitaram o meu ingresso como pesquisador no seguimento industrial.

Aos órgãos fomentos de pesquisa e desenvolvimento tecnológico: CNPq, FAPESP, CAPES e JICA (Japan International Cooperation Agency)

Resumo

Neste trabalho descreve-se a implementação da técnica do pulso eletroacústico (PEA) para a determinação de perfis de carga espacial em dielétricos. O método é baseado no sinal acústico gerado pela aplicação de um pulso de tensão elétrica de curta duração na amostra. O sinal acústico gerado é detectado usando-se um transdutor piezoelétrico acoplado à amostra. São discutidos os detalhes experimentais do sistema e os procedimentos matemáticos para o tratamento do sinal elétrico medido. O tratamento matemático do sinal é baseado na técnica de desconvolução que permite determinar a função de transferência do sistema. A função de transferência permite eliminar do sinal medido as distorções introduzidas pelo circuito de medida, pelas reflexões espúrias do sinal acústico, etc.. Mostra-se também os procedimentos matemáticos para se corrigir a atenuação e dispersão do sinal acústico durante a propagação através da amostra.

A técnica PEA foi utilizada para o estudo dos perfis de carga espacial injetada em amostras de polietileno sintetizados com diferentes catalisadores: Ziegler-Natta e Metallocene. O campo elétrico aplicado para polarizar as amostras e injetar cargas elétricas nas amostras foi variado de 0,05 MV/cm a 0,9 MV/cm. Nas amostras de polietileno sem aditivos a injeção de cargas elétricas na amostra é bem menor que em amostras com aditivos anti-oxidantes. Mostra-se também que o campo elétrico de ruptura depende da carga injetada na amostra, sendo ele maior quando a polaridade da tensão de teste de ruptura é a mesma da tensão aplicada que provocou a injeção de cargas elétricas na amostra.

Abstract

It is described the implementation of the electroacoustic pulse technique, PEA, for the determination of space charge profiles in dielectrics. The method is based on the acoustic signal generated by the application of a voltage pulse with short duration on the sample. The acoustic signal generated by pulse is detected by using a piezoelectric transducer coupled to the sample. Details of the experimental system and of the mathematical procedure for the treatment of the measured electric signals are discussed. The mathematical treatment is based on the deconvolution technique which enable us to obtain the transference function of the system. The use of a transference function eliminates distortions caused by reflections that are introduced by the measurement circuit. Mathematical procedures for the correction of attenuation and dispersion of the acoustic signal during the propagation throughout the sample are also discussed.

The PEA technique was used to measure the profiles of injected space charge in polyethylene synthesized using different catalysts: Ziegler-Natta and Metallocene. The electric field applied to polarize and to inject electric charges in the sample was varied from 0.05MV/cm to 0.9MV/cm. In samples of polyethylene without additives it was observed that the injection of charges is less intense than in samples containing anti oxidant additives. It is also shown that the critical electric field for the breakdown depends on the injected charge on the sample being, larger if the rupture tests were performed using the same polarity of the voltage used to pole the samples. Breakdown measurements were also performed with ozone treated samples..

I - Introdução

A determinação dos perfis de campo elétrico (ou da carga espacial/polarização elétrica correspondentes) é fundamental para caracterizar as propriedades elétricas de materiais dielétricos e isolantes. No passado, o seccionamento da amostra, a colocação de provas de potencial elétrico e correntes termo estimuladas eram as técnicas disponíveis. Elas são destrutivas, rudimentares e só podem ser aplicadas em condições muito restritas. Após a década de 70, vários métodos foram concebidos para realizar medidas de perfis de campo elétrico. Na década de 80, as técnicas foram aperfeiçoadas e passaram a ter uso freqüente em universidades, centros de pesquisa e indústrias fabricantes de materiais isolantes elétricos para transmissão e distribuição de energia elétrica.

Na área de engenharia de materiais o interesse em medidas de perfis do campo elétrico surgiu da aplicação de polietileno como material isolante em cabos para transmissão de energia elétrica. No Japão, na década de 60, durante o projeto da linha de transmissão entre as ilhas de Hokkaido e Honshu foram iniciados os estudos do polietileno de baixa densidade e reticulado (XLPE) [1]. Durante os testes, após aplicação de tensão elétrica dc (polaridade positiva), observou-se que a tensão elétrica de ruptura para um impulso de polaridade negativa era menor do que aquela que se obteria com um impulso positivo. Este resultado indicou a acumulação da carga espacial no material isolante a qual distorce o campo elétrico interno da amostra, levando a valores diferentes de tensões de ruptura. Em 1971, conclusão parecida foi obtida em experimentos realizados por Cooper [2].

No estudo de ciência dos materiais dielétricos o conhecimento do perfil de campo elétrico é fundamental pois ele permite obter informações do processo de

injeção de cargas nas amostras, dos perfis de polarização elétrica, etc.. Estas informações são necessárias para o desenvolvimento de modelos teóricos de transporte e armazenamento de cargas e dos processos de orientação dipolar em dielétricos.

1.1 Medidas Elétricas e Dielétricas

Antes da existência de técnicas experimentais para a medida de perfis de campo elétrico o estudo de dielétricos era restrito ao uso de métodos macroscópicos, tais como medidas de correntes de absorção, medidas das características de corrente - tensão, constante dielétrica (permissividade) complexa, histerese dielétrica, correntes termicamente estimuladas (TSC) [3,4,5] e entre outros. O estudo era baseado no conceito de que a amostra era uma “caixa preta” e dos resultados obtidos com as técnicas de medidas procurava-se descrever os fenômenos ocorrendo no volume da amostra.

Pela razão acima mencionada, muitos esforços foram feitos para se ter medidas dos perfis do campo com técnicas não destrutivas associados à carga espacial ou polarização elétrica. As medidas abrem o caminho para compreender os processos microscópicos e possibilita, por exemplo, selecionar materiais e minimizar riscos de rupturas elétricas em isolantes submetidos a alta tensão. Atualmente os métodos mais usados para medir os perfis de carga espacial/polarização em um meio dielétrico são baseados na propagação de perturbações térmica ou acústica através da amostra. Um resumo das técnicas e época de desenvolvimento está listados na Tabela 1.

Para pulsos acústicos excitados pelo movimento abrupto das cargas internamente na amostra medida é baseado no sinal elétrico gerado quando um pulso elétrico é aplicado nos eletrodos da amostra. Isto é conhecido como método

eletroacústico (PEA) [6,7,8,9]. A onda acústica gerada em função do tempo é medida através de um transdutor piezoelétrico acoplado à amostra. O sinal acústico que chega ao transdutor em função do tempo é diretamente relacionado com a posição das cargas no interior da amostra.

Década	Técnicas
Antes de 1970	Método de Dissecção Método de provas de potencial (métodos primitivos)
1970-80	LIPP (Laser-Induced Pressure Pulse Method) PPS (Piezoelectrically Generated Pressure Step Method) PWP (Piezoelectrically Generated Pressure Pulse Method) PEA (Pulsed Electroacoustic Method) TP (Thermal Pulse) LIMM (Laser Intensity Modulation Method) TS (Thermal Step method) (métodos não destrutivos)
1990 ...	Uso rotineiro na caracterização da distribuição de carga espacial em materiais dielétricos e isolantes.

Tabela 1 Técnicas experimentais para medidas de perfis de campo elétrico.

O segundo método acústico utiliza um pulso gerado externamente à amostra por um transdutor piezoelétrico ou laser de alta potência. Esse método é conhecido como propagação da onda de pressão [10,11,12,13]. As cargas elétricas fixas na estrutura molecular da amostra sofrerão deslocamentos da posição de equilíbrio devido a passagem do pulso acústico e este movimento causará a variação da carga $q(t)$ induzida nos eletrodos da amostra, a qual pode ser detectada diretamente pela medida da corrente $i(t)$ em curto circuito ou pela tensão $V_s(t)$ em circuito aberto. A tensão $V_s(t)$ em circuito aberto é proporcional ao perfil do campo elétrico $E(x)$ (a posição x na amostra é relacionada diretamente com o tempo de propagação) enquanto que a corrente $i(t)$

medida em curto circuito fornece um sinal proporcional à densidade da carga espacial $\rho(x)$ no volume do dielétrico [14].

Os métodos acústicos têm sido amplamente usados e grandes esforços têm sido feitos para aperfeiçoá-los em medidas com amostras planas e, também, em medidas em cabos coaxiais[15,16,17,18,19] usados para a distribuição de energia elétrica.

1.2 Técnicas acústicas de medidas de carga espacial

Várias técnicas para a determinação de cargas espaciais, polarizações e perfis de campo elétrico em dielétricos estão atualmente num estágio bastante desenvolvido e nesta seção elas são descritas em mais detalhes. Os desenhos esquemáticos das montagens e as equações básicas das técnicas são resumidos na Tabela 2.

Neste trabalho serão utilizadas apenas amostras dielétricas sem polarização elétrica, razão pela qual a partir daqui os métodos serão referidos como métodos para determinação dos perfis de carga espacial. Os métodos térmicos para determinação dos perfis de carga também não serão discutidos.

1.2.1 Técnicas da propagação de onda de pressão – PWP/PPS

Na técnica PWP o pulso acústico é gerado por um transdutor piezoelétrico (quartzo, niobato de lítio ou PVDF - poli(fluoreto de vinilideno)). Ao se aplicar um pulso de tensão ao transdutor (da ordem de 5 nanosegundos) é gerado um pulso eletroacústico que propagará através da amostra perturbando as cargas elétricas do material. Como mencionado, o sinal medido será a corrente elétrica em curto circuito ou a tensão em circuito aberto.

Outra alternativa é aplicar um degrau de pressão (PPS) com tempo de subida da ordem de centenas de picosegundos e nesse caso $i(t)$ fornece o perfil do campo elétrico [20]. O método PPS foi desenvolvido no grupo de pesquisa de Eisenmenger [21] e tem sido utilizado com sucesso para medir a distribuição de polarização em filmes de PVDF. Outros grupos como o de Mulhaupt [22] da Alemanha e de Takada do Japão [23] também utilizam a técnica.

1.2.2 Técnica do pulso de pressão induzida por laser – LIPP

Usando um laser de alta potência (em geral, YAG) irradia-se o eletrodo da amostra com um pulso de curta duração. Quando o pulso de laser atinge a amostra, ele é parcialmente absorvido gerando por ablação um pulso acústico intenso e de curta duração, o qual propagará no dielétrico.

A propagação do pulso acústico na amostra na montagem LIPP é idêntico ao do PWP[11,12]. Este método foi bastante utilizado pelo grupo de Sessler [24] na Alemanha, grupo de Lewiner [25] na França e o grupo de Mizutani no Japão [26]. A vantagem do uso do laser é a capacidade de gerar ondas acústicas de alta intensidade que produzem sinais elétricos nas amostras de até 100mV (medidos sobre 50 ohms)[26].

1.2.3 Técnica do Pulso Eletroacústico- PEA

Esta técnica foi desenvolvida por Takada no Japão em 1983[7]. Inicialmente, ele tentou medir o perfil da carga espacial em uma amostra de eletreto, aplicando um pulso de tensão elétrica de duração entre 5 a 100 nanosegundos. Devido ao limite da banda de frequência do transdutor piezoelétrico (PZT), o sinal elétrico detectado não era

proporcional ao perfil da carga espacial. Para resolver o problema foi necessário desenvolver uma técnica de desconvolução para obter o perfil da carga espacial [6,7,8]. Transdutores piezoelétricos baseados em filmes finos do polímero PVDF, com banda larga de frequência e baixa impedância acústica, tornou possível implementar o método PEA para realizar medidas em amostras de espessura da ordem de 2 mm, sem o uso de desconvolução [27,28] (o sensor de PVDF é facilmente manuseado e fixado sem problemas de adesão, ao contrário de transdutores de cerâmica que necessitam cuidados especiais [15,16,18,19]). Com o desenvolvimento do método PEA, muitos trabalhos foram publicados. Amostras do tipo cabos coaxiais de XLPE, LDPE e diversos filmes têm sido estudados [6,7,8,15,16,19,28].

1.3 Comentários sobre as técnicas

As características das técnicas PWP/PPS, LIPP e PEA são resumidas na Tabela 3. As técnicas LIPP e PWP usam o mesmo princípio de funcionamento, mas apresentam diferenças nas construções. O método LIPP necessita de um laser pulsado de alta potência e as amostras devem ser metalizadas numa das faces com múltiplas camadas para absorver feixe do laser sem sofrerem muito dano. O método LIPP é o sistema de maior custo (laser e osciloscópio de digital de banda larga) e não permite realizar muitas medidas com a mesma amostra (devido a destruição do eletrodo). Com as técnicas PWP/PPS e PEA um grande número de medidas podem ser realizadas com uma única amostra, permitindo realizar médias e melhorar a relação sinal/ruído. Em geral, com as técnicas PEA e PWP utiliza-se um processo de desconvolução matemática para tratar o sinal elétrico medido para obter perfis da carga espacial.

<p>(a) Método da pressão de propagação de onda – PWP</p>	$p(t) = K \int_0^t k(\tau) e_p(t - \tau) d\tau$ $i(t) = K \int_0^t \rho(\tau) p(t - \tau) d\tau$
<p>(b) Método pulso de pressão induzida por LASER – LIPP</p>	$i(t) = K \int_0^t \rho(\tau) p(t - \tau) d\tau$
<p>(c) Método de propagação de pulso eletroacústico – PEA</p>	$p(t) = K \int_0^t \rho(\tau) e_p(t - \tau) d\tau$ $V_s(t) = K \int_0^t \Phi(\tau) p(t - \tau) d\tau$

Tabela 2 Técnicas acústicas de medida do perfil de carga espacial [1]

O método PEA é um sistema bastante interessante pois o circuito elétrico do transdutor de medida é independente do circuito elétrico da amostra, permitindo assim aplicar uma ddp na amostra. O sistema é sensível ao ruído elétrico externo pois são necessários pulsos elétricos de elevada tensão (da ordem de 600V) e estreitos

(nanossegundos) e este problema é solucionado colocando-se uma linha de atraso para a detecção do pulso acústico.

Técnica	PWP/PPS	LIPP	PEA
Distúrbio espacial não uniforme	Pulso ultra-sônico (compressão ou zona de rarefação)	Pulso ultra-sônico (compressão ou zona de rarefação)	Pulso elétrico gerando pulsos acústicos
Geração de distúrbio	Onda acústica gerada pelo dispositivo piezoelétrico	Absorção de um pulso estreito de LASER na parte frontal do eletrodo	Força gerada pelo pulso de campo elétrico nas cargas da amostra
Processo de detecção	Corrente entre eletrodos	Corrente entre eletrodos	Transdutor piezoelétrico fixo no eletrodo
Resolução típica por espessura da amostra	$<10\mu\text{m}/100\mu\text{m}$ (com desconvolução)	$30\mu\text{m}/2\text{mm}$ (direto) $1\mu\text{m}/50\mu\text{m}$ (direto)	$30\mu\text{m}/2\text{mm}$ (direto) $20\mu\text{m}/100\mu\text{m}$ (com desconvolução)

Tabela 3 Características de várias técnicas acústicas para determinação de perfis de carga espacial em dielétricos[14].

1.4 Motivação da linha de pesquisa

Nos centros urbanos com grandes concentrações populacionais e industriais é necessário transmitir e distribuir energia elétrica de forma mais segura como por cabos coaxiais subterrâneos. Na Figura 1(a) ilustra-se a instalação de um cabo subterrâneo de 500kV e na Figura 1(b) um cabo submarino de 275kV. O aumento da tensão elétrica a ser transmitida leva, na mesma proporção, o aumento da área a ser ocupada para instalação de redes de transmissão de energia (áreas ocupadas pela linha). A capacidade de transmissão do cabo subterrâneo de 500kV ilustrado na *Figura 1 (c)*, (segundo os fabricantes) é da ordem de 1GW de potência por fase e nas torres de transmissão aérea (para transportar a mesma quantidade de energia), seriam necessárias várias linhas por fase, estruturas metálicas para torres, isoladores e principalmente o espaço físico a ser

ocupado (ver *Figura 1d*). Alguns estudos mostram ainda que altos valores de campo eletromagnético podem induzir alterações biológicas em seres que habitam nas proximidades das linhas de transmissão[29]. As linhas aéreas de transmissão também são vulneráveis ao vandalismo, sabotagem, pouso de pássaros, mudanças climáticas e acidentes que provocariam interrupções da transmissão de energia.

O desenvolvimento desses cabos requer o conhecimento avançado das propriedades elétricas dos materiais dielétricos. Portanto, no campo científico surge a necessidade de pesquisar e entender os mecanismos de condução e ruptura elétrica em materiais isolantes poliméricos para projetar linhas mais eficientes. Tem de se compreender os efeitos da adição de produtos como plastificantes e anti-oxidantes. Ressalta-se ainda que as propriedades elétricas das amostras obtidas em laboratórios não podem ser tomadas como referências absolutas para a fabricação de cabos. Na fase de produção de cabos, o polímero passa por processamento físico bastante diferente daqueles usados para preparar as amostras. Partículas de impurezas também podem afetar a qualidade dos cabos. Na indústria Sumitomo Electric Industries Ltda. do Japão, as extrusoras de polímeros são instaladas numa sala limpa de classe 1000 ppm, mesmo nível de limpeza para fabricação de semicondutores tal como Ga-As[30].

(a)

(b)

(c)

(d)

Figura 1 Instalação de redes cabos de 500kV AC (a) Subterrâneo (b) Submarino (c) corte transversal do cabo (d) corredor de linha de transmissão convencional.

1.5 Objetivos do Trabalho

Um dos objetivos principais foi implementar em São Carlos a técnica do pulso eletroacústico para medidas dos perfis da distribuição da cargas elétricas injetadas nos polímeros isolantes. Como será visto no corpo da tese, a técnica PEA é bastante elaborada pois exige o processamento matemático dos sinais elétricos medidos para que se consiga determinar os perfis de carga com sucesso. Conseguiu-se o domínio de toda a técnica para a construção do sistema PEA e dos procedimentos matemáticos de desconvolução dos sinais. O sistema foi empregado no estudo do processo de injeção de cargas elétricas no polímero polietileno entrecruzado (XLPE) ao qual foi aplicado uma tensão elétrica.

O trabalho também contribui de forma imensurável na minha formação como pesquisador na área de materiais para isolamento elétrica. Saliente-se que o início do trabalho se deveu ao interesse em realizar estudos de pesquisa no exterior com bolsa tipo sanduíche. Assim, a minha formação acadêmica de doutorado foi obtida no IFSC, em São Carlos, e a maior parte do trabalho de pesquisa foi realizada na Universidade de Nagoya - Departamento de Engenharia Elétrica, Eletrônica e Sistema de Informação, Japão sob orientação do Prof. Teruyoshi Mizutani, durante o ano de 1997 e início de 1998. A minha contribuição naquela universidade foi a montagem da técnica PEA que possibilitou a comparação entre os perfis de carga espacial utilizando a técnica LIPP.

A técnica PEA já implementada no Grupo de Polímeros “Prof. Bernhard Gross” e abrirá novos horizontes na pesquisa de materiais isolantes poliméricos.

II - Princípio Básico da Técnica do Pulso Eletroacústico

A montagem da técnica PEA é bastante compacta e constituída dos seguintes elementos básicos: gerador de pulso de tensão com duração de 5ns e amplitude de 600V, sistema porta – amostra, sensor piezoelétrico de PVDF, osciloscópio de alta resolução para medida do sinal e fonte dc de alta tensão para polarizar eletricamente as amostras. O diagrama esquemático do sistema PEA é mostrado na *Figura 2*. Salienta-se que o único equipamento de alto custo é o osciloscópio digital de banda em frequência de até 1GHz. Os detalhes dos componentes eletro-eletrônicos serão descritos no capítulo III.

Na análise teórica apresentada são consideradas as seguintes hipóteses:

- a) a geometria da amostra é planar, i.e., o perfil varia somente numa única direção;
- b) a forma da onda acústica gerada por uma camada de carga de espessura infinitesimal é a mesma que a do pulso elétrico aplicado;
- c) a resposta acústica obtida é linear com a tensão elétrica;
- d) a velocidade de propagação da onda acústica na amostra independe da frequência e não há atenuação;
- e) não há polarização elétrica nas amostras.

2.1 Equações Gerais

Considere uma amostra, espessura d , com carga espacial $\rho(x)$ no volume, onde x é a coordenada no interior da amostra. Quando um campo elétrico pulsado $e_p(t)$ com duração ΔT é aplicado nos eletrodos A e B da amostra, são geradas forças nos

eletrodos da amostra e forças na carga espacial do volume da amostra. Estas forças geram pulsos acústicos, os quais propagaram-se-ão na amostra e na direção do transdutor e na direção oposta. No transdutor piezoelétrico, o pulso acústico $p(t)$ é convertido em sinal elétrico o qual é amplificado e medido num osciloscópio digital de alta resolução.

Figura 2 Parte superior da figura: desenho esquemático do sistema experimental. Parte inferior: diagrama de geração e de propagação dos sinais [31]

A equação de Poisson, que relaciona o campo elétrico $E(x)$ e a distribuição de carga espacial $\rho(x)$ é dada por

$$\frac{dE(x)}{dx} = \frac{\rho(x)}{\varepsilon} \quad (1)$$

onde ε é a constante dielétrica do material.

A tensão elétrica na amostra em função da distância é expressa por:

$$\int_0^x E(x')dx' = V(x), \text{ com } V(0)=0 \quad (2)$$

As cargas superficiais induzidas nos eletrodos A e B, conforme ilustradas na *Figura 2*, são dadas por:

$$\sigma_1 = -\varepsilon E_1 \quad (3)$$

$$\sigma_2 = \varepsilon E_2 \quad (4)$$

onde E_1 e E_2 são respectivamente os campos elétricos nas interfaces dos eletrodos B e A.

2.2 Determinação das densidades de cargas induzidas nos eletrodos

As densidades de carga induzida nos eletrodos σ_1 e σ_2 dependem do pulso aplicado de campo elétrico $e_p(t)$, da tensão externa V_{dc} e da carga espacial $\rho(x)$. Os seus valores podem ser determinados usando a equação de Poisson e a segunda lei de Kircchoff. Para o desenho esquemático da *Figura 3*, com tensão aplicada V_{dc} , temos a seguinte expressão:

$$\int_0^L E(x)dx + V_{dc} = 0 \quad (5)$$

Da equação (1), tem-se:

$$E(x) - E(0) = \frac{1}{\epsilon} \int_0^x \rho(x)dx \quad (6)$$

Determina-se $E(0)$ a partir da condição estabelecida na equação (5). As densidades de carga σ_1 na posição $x=0$ (eletrodo B) e σ_2 na posição na posição $x=d$ (eletrodo A) são:

$$\sigma_1 = \epsilon E_{dc} - \int_0^d \frac{d-x}{d} \rho(x)dx \quad (7)$$

$$\sigma_2 = -\epsilon E_{dc} - \int_0^d \frac{x}{d} \rho(x)dx \quad (8)$$

2.3 Forças Geradas pelo Campo Elétrico Pulsado

Usando as equações (3) e (4) as forças geradas sobre os eletrodos A e B pelo campo elétrico, são expressas por:

$$f_1 = \frac{1}{2} \sigma_1 E_1 = \frac{1}{2} \epsilon E_1^2 \quad (9)$$

$$f_2 = \frac{1}{2} \sigma_2 E_2 = -\frac{1}{2} \epsilon E_2^2 \quad (10)$$

A força $\Delta f_3(x)$, devido ao campo elétrico $E(x)$, que atua sobre a camada de carga espacial $\Delta \rho(x)$, para região $0 < x < d$, é expressa por:

$$\Delta f_3(x) = \rho(x) \Delta x E(x) \quad (11)$$

Figura 3 Desenho esquemático da amostra/eletrodos, mostrando as forças, campos elétricos e cargas induzidas. A faixa azul corresponde a uma fatia da carga espacial na amostra.

O campo elétrico $E(x)$ no interior da amostra é composto de três partes: campo elétrico, E_{dc} , campo produzido pela carga espacial, E_C e o campo elétrico pulsado $e_p(t)$. Assim os campos nas interfaces dos eletrodos, E_1 e E_2 , são:

$$E_1 = E_{dc} + E_C^1 + e_p(t) \quad (12)$$

$$E_2 = E_{dc} + E_C^2 + e_p(t) \quad (13)$$

onde E_C^1 e E_C^2 são os campos elétricos produzidos pela carga espacial nos eletrodos A e B. Ressalta-se que E_{dc} e E_C não variam no tempo e portanto geram forças que não dependem do tempo e não contribuirão para a geração do pulso de pressão. Substituindo as equações (12) e (13) nas equações (9) e (10) e desprezando os termos correspondentes à E_{dc} e E_C obtém-se:

$$f_1(t) = \left[\sigma_1 + \frac{\epsilon}{2} e_p(t) \right] e_p(t) \quad (14)$$

$$f_2(t) = \left[\sigma_2 - \frac{\varepsilon}{2} e_p(t) \right] e_p(t) \quad (15)$$

ao mesmo tempo o campo elétrico pulsado $e_p(t)$ induz uma força $\Delta f_3(x_i, t)$ sobre a camada de carga espacial de espessura Δx_i e descrita pela equação (11):

$$\Delta f_3(x, t) = \rho(x_i) \Delta x_i E(x_i, t) \quad (16)$$

2.4 Incidência da onda acústica no transdutor

Os sinais acústicos gerados são ondas de pressão e portanto são iguais as forças por unidade de área das equações (14), (15) e (16). A partir deste ponto as denominaremos de p_1, p_2 e $\Delta p_3(x_i, t)$

As forças f_1, f_2 e $\Delta f_3(x_i, t)$ causarão o movimento das cargas σ_1, σ_2 e $\rho(x_i) \Delta x_i$, gerando ondas acústicas que propagarão na direção do transdutor e no sentido oposto. Como o transdutor é fixo no eletrodo B, são consideradas somente componentes das ondas acústicas que propagam na direção do eletrodo B e não serão considerados os sinais de reflexões internas dos sinais acústicos. Levando em conta os diferentes atrasos de cada parte das ondas acústicas, p_1 e p_2 para atingir o transdutor (veja Figura 4), elas são escritas em função do tempo:

$$p_1(t) = K_{2G} K_{3T} \left[\sigma_1 + \frac{1}{2} \varepsilon e_p \left(t - \frac{b}{v_{Al}} \right) \right] e_p \left(t - \frac{b}{v_{Al}} \right) \quad (17)$$

$$p_2(t) = K_{1G} K_{2T} K_{3T} \left[\sigma_2 - \frac{1}{2} \varepsilon e_p \left(t - \frac{d}{v_{sa}} - \frac{b}{v_{Al}} \right) \right] e_p \left(t - \frac{d}{v_{sa}} - \frac{b}{v_{Al}} \right) \quad (18)$$

Figura 4 Desenho esquemático da disposição dos elementos do sistema PEA. K são os coeficientes de transmissão e geração dos sinais acústicos e Z as impedâncias acústicas.

onde b é a espessura do eletrodo B (linha de atraso), v_{sa} velocidade de propagação de som na amostra, v_{Al} velocidade de propagação acústica no eletrodo B, veja Figura 4, d/v_{sa} é o tempo de propagação do pulso através da amostra e b/v_{Al} o tempo através da linha de atraso. As constantes K_{iT} são coeficientes de transmissão dos sinais acústicos de um meio para outro enquanto que K_{iG} são coeficientes de geração dos sinais acústicos quando as forças são aplicadas na interface dos dois meios. Os coeficientes são dados por:

$$K_{1G} = \frac{Z_{sa}}{Z_a + Z_{sa}} \quad (19)$$

$$K_{2T} = \frac{2Z_{Al}}{Z_{Al} + Z_{sa}} \quad (20)$$

$$K_{2G} = \frac{Z_{Al}}{Z_{Al} + Z_{sa}} \quad (21)$$

$$K_{3T} = \frac{2Z_p}{Z_{Al} + Z_p} \quad (22)$$

onde Z_{Ab} , Z_{sa} e Z_p são respectivamente as impedâncias acústicas do alumínio, da amostra e do transdutor. Os coeficientes de transmissão K_{iT} são obtidos através da teoria de propagação de ondas. As deduções dos coeficientes de geração K_{iG} que são originários nas interfaces do eletrodo/amostra são demonstradas no Apêndice A.

No volume da amostra a perturbação acústica gerada pela carga espacial propaga-se nos dois sentidos: uma na direção do transdutor e outra na direção oposta. Portanto, a componente do sinal acústico, contendo a informação da carga espacial, tem metade da amplitude. O sinal acústico no transdutor será:

$$\Delta p_3(t) = \frac{1}{2} K_{2T} K_{3T} \rho(x_i) \Delta x_i e_p \left(t - \frac{x_i}{v_{sa}} - \frac{b}{v_{Al}} \right) \quad (23)$$

onde $\tau_i = x_i / v_{sa}$ é o tempo de propagação do sinal da posição x_i até $x=0$ da amostra.

Como $x_i = v_{sa} \tau_i$ é a localização da camada de carga espacial no interior da amostra podemos escrever que $\Delta x_i = v_{sa} \Delta \tau_i$ e ainda que, $\rho(x_i) = \rho(v_{sa} \tau_i) = \rho'(\tau_i)$, obtém-se:

$$\Delta p_3(t) = \frac{1}{2} K_{2T} K_{3T} v_{sa} \rho'(\tau_i) \Delta \tau_i e_p \left(t - \tau_i - \frac{b}{v_{Al}} \right) \quad (24)$$

A equação (24) descreve a onda gerada pela camada de carga $\rho \Delta x_i$ atingindo o eletrodo B. A onda acústica total originária de toda carga espacial $\rho(x)$ será a somatória de todas as componentes, $\sum \Delta p_3(x_i, t)$. No limite $\Delta \tau_i \rightarrow 0$ obtém-se o pulso acústico $p_3(t)$ que atinge o transdutor (passando pela linha de atraso, eletrodo B):

$$p_3(t) = \frac{K_{2T}K_{3T}}{2} v_{sa} \int_0^t \rho'(\tau) e_p \left[t - \tau - \frac{b}{v_{Al}} \right] d\tau \quad (25)$$

A expressão do sinal $p(t)$ que alcança o transdutor é a soma dos pulsos acústicos é dada por:

$$p(t) = p_1(t) + p_2(t) + p_3(t) \quad (26)$$

Nas expressões (17) e (18) aparecem termos do tipo $\varepsilon e_p^2/2$, os quais não precisam ser considerados nos cálculos pois só dependem da forma do pulso elétrico aplicado (ele entrará apenas no fator de calibragem dos sinais medidos). Eliminando os termos quadráticos $\varepsilon e_p^2/2$ a equação (26) é dada por:

$$\begin{aligned} p(t) = & K_{2G}K_{3T}\sigma_1 e_p \left(t - \frac{b}{v_{Al}} \right) + K_{1G}K_{2T}K_{3T}\sigma_2 e_p \left(t - \frac{b}{v_{Al}} - \frac{d}{v_{sa}} \right) \\ & + \frac{K_{2T}K_{3T}}{2} v_{sa} \int_0^t \rho'(\tau) e_p \left[t - \tau - \frac{b}{v_{Al}} \right] d\tau \end{aligned} \quad (27)$$

Para simplificar a análise dos sinais que chegam ao transdutor a seguinte condição é necessária para a construção do sistema experimental,:

$$\chi = K_{1G}K_{2T}K_{3T} = K_{2G}K_{3T} = \frac{K_{2T}K_{3T}}{2} \quad (28)$$

A equação (28) admite que todos pulsos $p_1(t)$, $p_2(t)$ e $p_3(t)$ gerados no sistema chegam ao transdutor com o mesmo fator de amplitude. A condição dada pela equação (28) é obtida experimentalmente escolhendo de forma apropriada, os materiais dos eletrodos, da amostra e do absorvedor.

Saliente-se que em meios sólidos reais ocorrem efeitos de atenuação e dispersão dos pulsos acústicos, principalmente quando se trata de polímeros como PE que

apresentam uma plasticidade elevada. Uma discussão desse efeitos é feita no Apêndice B.

2.5 Geração de sinais elétricos no transdutor

Devido ao efeito piezoelétrico a onda acústica que propaga no transdutor induz a carga $q(t)$ nos seus eletrodos, dada por:

$$q(t) = d_{33} p(t) S \quad (29)$$

onde d_{33} é a constante de tensão piezoelétrica e S a área do transdutor. A ddp entre duas superfícies do transdutor é expressa por:

$$V_T(t) = q(t) / C_T \quad (30)$$

o C_T é a capacitância elétrica do transdutor, igual a $\epsilon^T S / \ell$, ℓ é a espessura e ϵ^T a constante dielétrica do transdutor. Substituindo equação (29) em (30), tem-se:

$$V_T(t) = \frac{d_{33} \ell}{\epsilon^T} p(t) \quad (31)$$

Portanto, o potencial elétrico gerado no transdutor é diretamente proporcional à onda acústica $p(t)$.

A expressão para o sinal elétrico $V_T(t)$ é obtida substituindo a equação (27) em (30):

$$V_T(t) = K \left[\sigma_I e_p \left(t - \frac{b}{v_{Al}} \right) + \sigma_2 e_p \left(t - \frac{b}{v_{Al}} - \frac{d}{v_{sa}} \right) \right]$$

$$+ v_{sa} \int_0^t \rho'(\tau) e_p \left[t - \tau - \frac{b}{v_{Al}} \right] d\tau \quad (32)$$

$$\text{onde } K = \frac{d_{33} \ell \chi}{\epsilon^T}.$$

2.6 Resposta elétrica medida no osciloscópio

Na Figura 5 é ilustrado o circuito equivalente do sistema transdutor/amplificador, onde v_T é a velocidade de propagação acústica no transdutor e τ_T corresponde ao tempo de propagação acústica no transdutor. Seja $V_S(t)$ o sinal amplificado por um amplificador de banda larga. Como o circuito é capacitivo, o sinal $V_S(t)$ sobre o resistor sofre uma atenuação dependente da frequência e a correção é descrita pela relação entre a tensão de saída no amplificador $V_S(t)$ e a tensão gerada pelo transdutor de PVDF, $V_T(t)$. A correção é dada por:

$$\Omega(\omega) = \frac{V_S(\omega)}{V_T(\omega)} = \frac{i\omega\tau_e}{1 + i\omega\tau_e} \quad (33)$$

onde ω é a frequência angular e $\tau_e = R_A C_T$ a constante de tempo do circuito equivalente (R_A é a resistência de entrada do amplificador e C_T a capacitância do transdutor).

O sinal de saída no amplificador $V_S(t)$ do circuito é expressa por:

$$V_s(t) = \int_0^t V_T(\tau) \Omega(t - \tau) d\tau \quad (34)$$

onde $\Omega(t)$ é a função de transferência do circuito RC.

Figura 5 Diagrama do sinal acústico que chega ao transdutor e circuito elétrico equivalente ao conjunto transdutor/ amplificador

Em situações reais, a função de transferência $\Omega(t)$ deve ser substituída por uma outra $\Phi(t)$, mais geral, que inclui outros termos de correção devido a outros fatores do sistema que distorcem o sinal medido $V_s(t)$ (a tensão medida também é distorcida pelo transdutor, por reflexões acústicas espúrias, amplificador de sinal, etc.). Na Figura 6 representa-se a ação da função de transferência $\Phi(t)$ sobre o sinal originário do transdutor $V_T(t)$ e o sinal medido no osciloscópio $V_s(t)$. A expressão geral do sinal distorcido será dada por:

$$V_s(t) = \int_0^t V_T(\tau) \Phi(t - \tau) d\tau \quad (35)$$

Figura 6 - Representação da atuação da função de transferência sobre o sinal $V_T(t)$.

Em resumo, se for medido o sinal $V_s(t)$ e se a função $\Phi(t)$ for conhecida determina-se por desconvolução o sinal $V_T(t)$. Usando a equação (31) e o fato da forma do pulso elétrico $e_p(t)$ ser conhecido determina-se então a distribuição de carga por desconvolução da equação (32).

2.7 Comentários Finais

Neste capítulo descreveu-se a dedução das equações do método PEA. No capítulo IV serão descritos os procedimentos experimentais para determinar a função de transferência $\Phi(t)$ e os métodos matemáticos para realizar a desconvolução do sinal medido (transformada rápida de Fourier – FFT). Como será visto, o processo possibilitará levar em conta possíveis reflexões dos sinais acústicos no sistema, corrigir a resposta do transdutor e realizar a calibração para se obter medidas absolutas das densidades de carga.

III - DESCRIÇÃO DO SISTEMA PEA

Neste capítulo será descrito o sistema experimental PEA mostrando os diagramas dos circuitos, materiais empregados e suas características e os detalhes do acoplamento acústico. Serão também discutidos a escolha de cada elemento (transdutor, amplificador, etc.).

3.1 Diagrama geral do sistema

Na Figura 7 é ilustrado o diagrama simplificado do sistema PEA. O sistema é constituído dos seguintes dispositivos: gerador de pulso de duração da ordem de 5ns e amplitude de até $V_p = 600V$, a fonte de tensão de polarização V_{dc} , o atenuador para evitar reflexões dos sinais de alta frequência, o porta-amostra, o transdutor piezoelétrico e o amplificador. O gerador de pulso é desacoplado da fonte de polarização através do capacitor C. Para coletar o sinal foi utilizado um osciloscópio digital de banda larga de 1GHz conectado num microcomputador.

A amostra é um filme de polietileno de espessura no intervalo $100\mu m < d < 1mm$ e com formato plano para adaptação na célula porta amostra. O eletrodo superior é de forma cilíndrica com diâmetro de 8 mm. Para obter um bom acoplamento acústico entre o eletrodo superior e a amostra é utilizada uma fita semi condutora a qual é pressionada pelo eletrodo contra a amostra.

O sistema é totalmente blindado eletricamente para evitar interferência dos sinais elétricos de frequência. O circuito elétrico é projetado para cabo coaxiais de 50Ω de impedância e para ser compatível com o osciloscópio, por exemplo (alguns fabricantes utilizam dois valores opcionais de impedância de entrada: 50Ω e $1M\Omega$).

3.2 Análise acústica do sistema

A linha de atraso entre amostra e o transdutor (eletrodo inferior) é utilizada para transmitir o pulso acústico para o transdutor piezoelétrico. A linha de atraso (bloco de alumínio) deve ser suficientemente longa para que o pulso seja transmitido sem a interferência das múltiplas reflexões que ocorrem no sistema e também evitar o efeito do ruído elétrico originário do chaveamento da tensão no gerador de pulso elétrico. A borracha de silicone colocada atrás do transdutor tem a função de absorvedor acústico evitando o aparecimento de sinais acústico de reflexão no transdutor.

Figura 7 - Diagrama esquemático do circuito e do sistema PEA

Para referência futura na Tabela 4 são listadas as características dos materiais utilizados em cada elemento do PEA e na Tabela 5 os valores das impedâncias acústicas de todos os elementos do sistema.

Os valores dos coeficientes acústicos de geração e transmissão são calculados pelas equações (19), (20), (21) e (22) e seus valores são listados na Tabela 6.

Para obter acoplamento acústico ideal, os valores dos coeficientes de geração e transmissão (ilustrados na Tabela 6) devem satisfazer a equação (28). Verifica-se que para os materiais usados na construção tem-se

$$\chi = K_{1G} K_{2T} K_{3T} = K_{2G} K_{3T} = \frac{K_{2T} K_{3T}}{2} = 0.33$$

	Amostra	Linha de atraso	Transdutor	Absorvedor
Material	LDPE	Alumínio	PVDF	Borracha de silicone
Velocidade de propagação acústica (m/s)	2000	6400	2200	2000
Densidade ρ(kg/m³)	940	2695	1780	1180
Impedância acústica $Z=(10^6\text{kg/sm})$	1.88	17.30	3.90	1.88
Fator de atenuação (neper/cm)	0.54 (1.5MHz)	0.0205 (10MHz)	-	0.57 (2.5MHz)

Tabela 4 Características acústicas dos elementos do sistema

Elemento	Material	Impedância Acústica (10 ⁶ kg/sm ²)
Absorvedor A	Fita semicondutora	$Z_a=1.88$
Amostra	LDPE, XLPE, HDPE, etc.	$Z_{as}=1.88$
Linha de atraso	Alumínio	$Z_{Al}=17.3$
Transdutor	PVDF	$Z_p=3.90$
Absorvedor B	Borracha de silicone	$Z_b=1.88$

Tabela 5 Valores das impedâncias acústicas dos elementos do PEA

Coeficientes de geração e transmissão acústica	
K_{1G}	0.50
K_{2G}	0.90
K_{2T}	1.80
K_{3T}	0.37

Tabela 6 Valores dos coeficientes de transmissão e geração acústica.

A fita semi-condutora utilizada no sistema deverá apresentar propriedades acústicas próximas da amostra para obtermos um acoplamento acústico. Para exemplificar, se a fita semi condutora for retirada, os sinais acústicos $p_1(t)$, $p_2(t)$ e $p_3(t)$ ao serem gerados e propagariam com constantes de proporcionalidade χ diferentes (veja equação (28)). Essas constantes diferentes acabariam dificultando os cálculos de desconvolução para obtenção do perfil de carga espacial pois as amplitudes de $p_1(t)$, $p_2(t)$ e $p_3(t)$ teriam de ser corrigidas.

3.3 Transdutor Piezolétrico

O transdutor piezoelétrico (PVDF de 9 μm de espessura) utilizado na montagem do PEA foi fornecido pela empresa japonesa NISHIKI Co. O transdutor é metalizado com uma fina camada de alumínio em ambas as faces. Na Tabela 7 ilustra-se as propriedades do transdutor piezoelétrico (PVDF). Um transdutor cerâmico apresenta uma banda de frequência de até 100 MHz[32]. Mas pelo fato de não ser dúctil, dificulta a obtenção de um bom acoplamento acústico. Com o desenvolvimento dos transdutores poliméricos, no caso o PVDF, tem-se um filme fino e plástico que pode ser montado com facilidade sobre superfícies lisas. Com isso obtém-se um bom acoplamento acústico. Outra vantagem do uso do PVDF é a sua fina espessura que permite melhorar

a resolução do PEA. Para a espessura de 9 μm o tempo de trânsito no transdutor é da ordem de 4 ns que corresponde a 250 MHz de frequência de corte no limite superior.

Propriedades	Símbolos	Valores	Unidades	Condições
Espessura	L	9	μm	-
Constante piezolétrica	D_{33}	-33×10^{-12}	$(\text{C}/\text{m}^2)/(\text{N}/\text{m}^2)$	Lateralmente
Constante de tensão piezoelétrica	G_{33}	-339×10^{-3}	$(\text{V}/\text{m})/(\text{N}/\text{m}^2)$	Lateralmente
Capacitância	C	379×10^{-12}	F/cm^2	A 10KHz
Impedância acústica	Z_p	3.9×10^6	kg/sm^2	Em três direções
Densidade	ρ	1.78×10^3	kg/m^3	-
Velocidade de propagação acústica	V_p	2.2×10^3	m/s	Em três direções
Módulo de Young	Y	2×10^9	N/m^2	-

Tabela 7 Propriedades físicas do PVDF

3.4 Fonte de tensão dc

O sistema PEA foi construído com a possibilidade de aplicar uma tensão elétrica **dc** na amostra simultaneamente às medidas da distribuição de carga. A fonte dc permite a medida das mudanças dos perfis de carga em função do tempo de aplicação da tensão e em função da amplitude. Para este trabalho foi utilizado uma fonte de tensão da marca Matsusada Inc. de 0 – 30 kV . Um resistor de 100 $\text{k}\Omega$, para alta tensão e com baixa indutância, é conectado em série com a fonte dc. Esta resistência tem como principal função limitar a corrente da fonte para amostra e aumentar a proteção dos circuitos.

3.5 Gerador de pulso de tensão

O gerador produz um pulso de tensão de 5 ns de largura e tensão máxima de até 600V. Existem basicamente duas configurações de geradores de pulso usando cabo coaxial: carregamento interno e carregamento externo, (veja Figura 8). Neste trabalho optou-se pelo gerador de pulso com carregamento interno, pois para um mesmo comprimento de cabo coaxial fornece um pulso com a metade de duração do carregamento interno. A resistência R_0 deve ser escolhida de acordo com a frequência de geração de pulsos. No projeto foi utilizado um resistor R_0 no valor de $4\text{ M}\Omega$ para a frequência em torno de 100 Hz. O resistor R_i é a resistência para acoplamento da impedância com o cabo coaxial, neste caso de $50\ \Omega$. A amplitude de tensão de saída é metade da fonte de alta tensão. Neste sistema foi utilizado fonte de tensão dc modular, modelo HV-5PN da Matsusada Inc. As características básicas da fonte são apresentadas na Tabela 8.

Características	Valores
Tensão de alimentação	1.5 ~ 15 Vdc
Corrente de alimentação típica	600mA
Impedância da fonte	$8\text{M}\Omega$
Ripple (pico a pico)	0.1%
Tensão de saída	200 ~ 5000 V
Corrente de saída típica	600mA
Tensão de saída máxima	5500 V

Tabela 8 Características da fonte modular de alta tensão da Matsusada usada no gerador de pulso

(a) carregamento interno

(b) carregamento externo

Figura 8 - Configurações do gerador de pulso de tensão

A duração do pulso é determinada através do comprimento do cabo coaxial de impedância de 50Ω . Conforme mostrada na Figura 8, os principais parâmetros são: v é a velocidade de propagação do pulso no cabo, l_C o comprimento do cabo e ΔT a duração pulso. O chaveamento é feito por um relê de mercúrio de alto desempenho. Dados referentes ao relê modelo USM-11512H da Sanyu são apresentados na Tabela 9.

Característica	Valores
Tensão de alimentação do indutor	24V
Resistência do indutor	800Ω
Corrente típica no indutor	30mA
Alta tensão máxima para chaveamento	5000V
Alta tensão típica para chaveamento	3500V
Corrente de alta tensão para chaveamento	3.0 A
Tempo de chaveamento (abertura e fechamento)	3.0/3.0 ms

Tabela 9 Características do relê de mercúrio da Sanyu

Para gerar pulsos utilizando o gerador na configuração de cabo da Figura 8 (a) utiliza-se um circuito disparo (ver Figura 9), com frequência em torno de 100 Hz (periodicidade de 10 ms). Esse valor foi escolhido para evitar reflexões de sinais dos pulsos durante a medida do sinal. Para uma amostra de 100 μm , com velocidade de propagação acústica em torno de $v_{sa}=2000$ m/s temos um tempo de trânsito do pulso acústico na amostra em torno de 50 ns. Portanto o tempo de 10 ms (1/100 Hz) é suficiente para que todos os sinais acústicos sejam atenuados através do sistema.

Figura 9 Circuito disparo do relê

3.6 Atenuador

Um atenuador é conectado em série com o gerador de pulso (veja Figura 10). É muito importante a presença desse atenuador neste tipo de medida, pois o seu papel principal é atenuar reflexões dos sinais e seu uso é muito comum em circuitos de alta frequência. Todo conjunto deve ser blindado eletricamente para evitar ruídos de sinais elétricos de alta frequência. Para projetar este tipo de circuito é necessário especificar a atenuação do sinal em decibéis. Na Figura 11 é ilustrado uma curva típica para a escolha dos valores de cada resistor do circuito atenuador tipo Δ . No projeto foi utilizado um

circuito com atenuação da ordem de -6 dB, valor este suficiente para bloquear reflexões dos componentes de alta frequência. Saliente-se que a amplitude do pulso de tensão aplicado na amostra é da ordem de metade do valor de 600 volts produzido pelo gerador. A impedância equivalente do circuito atenuador é 50Ω que é necessária para acoplar o circuito com o cabo coaxial utilizado no sistema.

Uma forma alternativa de determinar os valores das resistências do circuito é utilizar as expressões abaixo. Os valores das resistências V e W são expressas por:

$$V = \frac{Z}{2} \left(\frac{k^2 - 1}{k} \right) \quad (36)$$

$$W = Z \left(\frac{k+1}{k-1} \right) \quad (37)$$

onde $k = \log_{10}^{-1} \left(\frac{n}{20} \right)$ ou $k^2 = \log_{10}^{-1} \left(\frac{n}{10} \right)$ e n é nível de atenuação em decibéis[33].

Figura 10 Conexão do circuito atenuador no sistema

Figura 11 Curva característica da impedância do circuito atenuador tipo Δ

3.7 Amplificador e osciloscópio

O sinal elétrico gerado pelo pulso acústico no transdutor é amplificado por um amplificador de banda larga e medido num osciloscópio digital. O amplificador de sinal utilizado tem as características ilustradas na Tabela 10.

O osciloscópio digital deve apresentar características específicas, tais como: banda de frequência larga, boa resolução de medida e armazenar digitalmente o sinal transiente. As características de dois osciloscópios frequentemente utilizados neste tipo de medidas são apresentadas na Tabela 11.

	Características
Modelo	AU1332
Frequência	0.01 – 500 MHz
Ganho mínimo	45 Db
Impedância de entrada e saída	50/50Ω
Ruído médio	1.4 dB
Tensão de alimentação	15Vdc

Tabela 10 Características do amplificador bipolar MITEQ Inc.

	TDS 684B	TDS 380
Largura de banda	1 GHz	400MHz
Número de canais	4	2
Coleta de amostragem	5 Giga amostras por Segundo em 4 canais	2 Giga amostras por Segundo em 2 canais
Número de pontos	Máximo até 15.000	1000
Resolução vertical	8 Bits 1mV/divisão ~ 10V/divisão	8 Bits 2mV/divisão ~ 10V/divisão
Resolução de tempo	200 10^{-12} s ~ 10s por divisão	1 10^{-9} s ~ 5s por divisão
Impedância de entrada	50 ohms e 1M ohms	50 ohms e 1M ohms

Tabela 11 Características dos osciloscópios TekTronix TDS 684B e TDS 380

A escolha do osciloscópio é muito importante quando se trata de sinais de alta frequência. O pulso elétrico de 5 ns de largura, como usado neste trabalho, corresponde a um sinal com componentes em frequência de até 200 MHz. Para ilustrar a diferença da resolução dos sinais foram utilizados os dois osciloscópios: TDS 380 e TDS 684B da TekTronix. Na Figura 12 observa-se claramente a diferença dos sinais medidos para o pulso elétrico de 5ns de largura e 600 V de amplitude (sinais normalizados). O sinal medido no osciloscópio modelo TDS684B apresenta uma subida bastante abrupta e o mesmo não acontece com o modelo TDS380 o qual produz uma resposta mais lenta e alargamento do sinal do pulso apesar da especificação de banda do osciloscópio ser 400 MHz. Este resultado é muito importante na medida do sinal pois obteríamos como resultados interpretações distorcidas do perfil da carga espacial.

Figura 12 Comparação dos sinais correspondente ao pulso elétrico obtidos em diferentes osciloscópios

IV - PROCEDIMENTO DE DESCONVOLUÇÃO DO SINAL E CALIBRAÇÃO DA MEDIDA

Neste capítulo são descritos todos os passos do procedimento de desconvolução do sinal medido usando a técnica de transformada rápida de Fourier – FFT. O cálculo no domínio da frequência simplifica a complexidade das equações escritas no domínio de tempo.

4.1 Procedimento para desconvolução do sinal

As equações básicas para desconvolução dos sinais medidos são as equações (32) e (35), as quais reproduzimos aqui:

$$V_T(t) = K \left[\sigma_1 e_p \left(t - \frac{b}{v_{Al}} \right) + \sigma_2 e_p \left(t - \frac{b}{v_{Al}} - \frac{d}{v_{sa}} \right) + v_{sa} \int_0^t \rho'(\tau) e_p \left[t - \tau - \frac{b}{v_{Al}} \right] d\tau \right] \quad (38)$$

$$V_S(t) = \int_0^t V_T(\tau) \Phi(t - \tau) d\tau \quad (39)$$

O primeiro passo para obter o perfil de carga espacial é determinar a função de transferência $\Phi(t)$ da equação (39). Como foi mencionado, $\Phi(t)$ leva em conta os efeitos de reflexões acústicas, atenuação do circuito de medida, transdutor não ideal, etc.. O procedimento consiste, a partir de uma distribuição de cargas conhecida, medir-se a resposta e então, do sinal medido, determinar $\Phi(t)$. Experimentalmente uma distribuição de carga conhecida é obtida aplicando-se uma pequena ddp na amostra na condição de que não haja injeção de cargas elétricas. Esta situação corresponde a carga

espacial nula e duas camadas superficiais de cargas induzidas nos eletrodos da amostra. Nessa condição equação (38) é simplificada e rescrita como:

$$V_T(t) = K \left[\sigma_1 e_p \left(t - \frac{b}{v_{Al}} \right) + \sigma_2 e_p \left(t - \frac{b}{v_{Al}} - \frac{d}{v_{sa}} \right) \right] \quad (40)$$

onde as camadas de cargas no eletrodos tem espessuras desprezíveis e poderiam ser representadas por funções do tipo delta σ_1 e σ_2 .

De acordo com equação (40), $p(t)$ corresponderia a dois sinais acústicos que chegam em diferentes tempos o transdutor. Por simplicidade de cálculo o procedimento descrito acima é feito apenas para o primeiro sinal que chega ao transdutor. O primeiro sinal foi gerado junto ao eletrodo inferior e assume-se que ele não sofre atenuação e dispersão quando propaga através da linha de atraso. O segundo sinal terá de propagar também através da amostra e eventualmente poderá ser atenuado (dependerá muito do material a ser medido). Os efeitos de atenuação e dispersão serão discutidos em um item separado (Apêndice B) e, portanto, não considerados aqui.

A partir da equação (40) determina-se numericamente a função $V_T(t)$ pois o pulso elétrico, $e_p(t)$, pode ser medido com o osciloscópio (digitalizado) e as densidades de cargas seriam funções delta. Da equação (39), com os dados numéricos de $V_T(t)$ e do sinal medido $V_S(t)$ determina-se numericamente a função $\Phi(t)$ utilizando um método numérico de desconvolução. Durante a determinação de $\Phi(t)$ pode-se também realizar a calibração dos sinais medidos pois as densidades de cargas nos eletrodos são conhecidas ($\sigma = \sigma_1 = -\sigma_2 = \varepsilon \frac{V_{dc}}{d}$, equação (3)).

A partir do conhecimento de $\Phi(t)$, obtido da medida com distribuição de carga conhecida, pode-se então calcular o perfil de carga numa amostra na qual houve injeção de cargas no volume. Com referência a equação (39), mede-se $V_S(t)$, conhece-se $\Phi(t)$ e

por desconvolução determina-se $V_T(t)$. A partir de $V_T(t)$ usa-se a equação (38) e, novamente por desconvolução, obtém-se o perfil de carga na amostra.

Na prática, a determinação do perfil de carga espacial é feita transformando as funções que dependem do tempo para o domínio da frequência. Isto leva a um conjunto de equações algébricas que facilitam sobremaneira os cálculos. Os cálculos seguem a mesma lógica descrita acima e as equações (39) e (40), com carga espacial nula no domínio da frequência, são expressas por:

$$V_s(f) = \Phi(f)V_T(f) \quad (41)$$

$$V_T(f) = K \left[\sigma_1(f)e_p(f) \exp\left(-2\pi f i \frac{b}{v_{Al}}\right) + \sigma_2(f)e_p(f) \exp\left(-2\pi f i \left(\frac{b}{v_{Al}} + \frac{d}{v_{sa}}\right)\right) \right] \quad (42)$$

Usando a transformada de Fourier dos sinais obtém-se a função de transferência $\Phi(f)$ através das equações (41) e (42). Para o cálculo da função $\Phi(f)$ assume-se que o aparecimento e desaparecimento das densidades de carga σ_1 e σ_2 nos eletrodos são descritas por funções do tipo gaussiana, ao invés de função do tipo delta. A função gaussiana é dada por

$$g(t) = \exp\left(-n^2 t^2\right) \frac{n}{\sqrt{2\pi}} \quad (43)$$

onde n^{-1} determina a largura da função. Esta função foi escolhida para facilitar os cálculos e a sua largura é escolhida por método numérico iterativo e na prática ela corresponde a largura temporal do pulso elétrico aplicado.

Uma vez determinada $\Phi(f)$ usa-se a equação (41) e a equação a seguir para determinar o perfil de carga no domínio da frequência:

$$\begin{aligned}
V_T(f) = K & \left[\sigma_I(f) e_p(f) \exp\left(-2\pi f i \frac{b}{v_{Al}}\right) \right. \\
& + v_{sa} \rho(f) e_p(f) \exp\left(-2\pi f i \frac{b}{v_{Al}}\right) \\
& \left. + \sigma_2(f) e_p(f) \exp\left(-2\pi f i \left(\frac{b}{v_{Al}} + \frac{d}{v_{sa}}\right)\right) \right] \quad (44)
\end{aligned}$$

após determinar $\rho(f)$ aplica-se a transformada Fourier inversa para obter o perfil de carga no espaço da amostra.

4.2 Exemplo do cálculo da função de transferência e desconvolução do sinal medido

Na Figura 13 é mostrado o sinal medido no osciloscópio para uma amostra de polietileno de espessura de 100 μm na qual foi aplicada a tensão de 2000 volts, o que corresponde ao campo elétrico de 0.2MV/cm. Este campo elétrico é suficientemente pequeno para não injetar cargas elétricas no volume da amostra e portanto a distribuição de carga seria apenas aquelas de densidades de cargas induzidas nos eletrodos da amostra. A densidade de carga induzida é $\sigma = 0.41 \text{ mC/m}^2$ e determinada a partir da capacidade elétrica da amostra. Como pode ser observado na Figura 13 o sinal apresenta uma forma bastante complexa. A primeira parte do sinal corresponde a camada de carga induzida no eletrodo inferior da amostra e a segunda parte a camada de carga no eletrodo superior. Considerando que a principal deformação do sinal é causada pelo circuito formado pelo transdutor e amplificador (circuito diferenciador) o sinal medido corresponderia, a grosso modo, à derivada da distribuição de carga. O pequeno pico que

ocorre entre a primeira e a segunda parte do sinal é provavelmente devido a sinais acústicos secundários causados por reflexões.

Nos cálculos usa-se a função gaussiana para representar as camadas de carga induzidas nos eletrodos. A largura a meia altura é escolhida ter um valor mínimo de $\Delta \approx V_{SA} \Delta T$, onde ΔT é a largura do pulso elétrico aplicado. Esta escolha foi feita por tentativa e erro foi necessária para evitar oscilações nos resultados calculados.

Figura 13 Sinal típico de medida com aplicação do campo elétrico $E = 0,2 \text{ MV/cm}$ (não há injeção de cargas no volume da amostra)

Na Figura 14 mostra-se a função transferência calculada no domínio da frequência e, na Figura 15, a distribuição de carga induzida nos eletrodos da amostra. Neste cálculo a função transferência é escolhida de tal forma que quando ela “age” sobre o sinal medido produzindo como “saída” a distribuição de carga, a qual foi escolhida como uma função gaussiana. É interessante notar que o segundo sinal (correspondente ao eletrodo superior) é de menor amplitude e mais largo que o primeiro sinal correspondente ao eletrodo inferior. Esses dois efeitos ocorrem devido aos efeitos de atenuação e dispersão quando o sinal propaga através da amostra.

Figura 14 Função de transferência do sistema calculada no domínio da frequência.

Figura 15 Perfis das camadas de carga induzidas nos eletrodos da amostra, após o processo de desconvolução do sinal.

4.3 Considerações Gerais sobre o Método PEA

4.3.1 Determinação da função de transferência

Uma das dificuldades do método PEA é a determinação da função de transferência pois há a possibilidade de existirem cargas residuais na amostra antes de aplicar a tensão elétrica. Elas seriam devidas, por exemplo, ao processo de fabricação das amostras. Essas cargas residuais poderiam gerar um sinal apreciável quando comparado com o sinal obtido durante a aplicação da tensão para calibração do sistema. No caso das amostras de polietileno observou-se que a sua influência não é significativa, conforme é discutido a seguir, e ilustrado na Figura 16.

A condição ideal para se determinar a função de transferência é a de se obter medidas sob a aplicação de um campo elétrico bastante baixo para não haver injeção de cargas elétricas na amostra e não haver cargas residuais. Para avaliar a importância da carga residual no caso do polietileno, mediu-se o sinal sem campo aplicado e depois o sinal sob o campo elétrico de 0,05 MV/cm (veja Figura 17(a)). Do sinal sob campo aplicado subtraiu-se o sinal em curto circuito e então calculou-se a função de transferência. Na Figura 16 (b) mostra-se os perfis das cargas induzidas nos eletrodos (sob campo de 0,2 MV/cm) calculados usando a função de transferência, obtida a partir da subtração e sem subtração do sinal da amostra em curto circuito. Pode ser observada na Figura 16 que os resultados são muito parecidos indicando que a função transferência independe do sinal devido a carga residual.

Figura 16 Sinal medido para a amostra virgem (sem qualquer tratamento: térmico, elétrico e químico) em curto circuito e com a aplicação da tensão ($E=0,05\text{MV}/\text{cm}$) para a calibração e obtenção da função transferência

(a) Sinal medido (b) Perfil da carga espacial

4.3.2 Avaliação da aproximação linear $p(t)$ versus $e_p(t)$

Nas equações (17) e (18) aparecem termos de segunda ordem em $e_p(t)$ os quais foram desprezados na dedução das equações do método PEA. Para avaliar se a aproximação é válida vamos estimar os valores de cada termo da equação (18). Usando os dados experimentais da seção 4.2 temos que o termo $\sigma_1 e_p(t)$ tem um valor da ordem de 1200 CV/m^3 enquanto que o termo $\varepsilon e_p^2/2$ é 82 CV/m^3 , ou seja, o termo linear é da ordem de 14 vezes maior que o termo quadrático (utilizou-se a tensão de 2 kV e a amplitude do pulso de tensão que chega a amostra é $\sim 300\text{V}$, devido ao atenuador de -6dB). A Figura 17 mostra a amplitude máxima do sinal correspondente à carga induzida no eletrodo superior do sistema. Em curto circuito ele é da ordem de 10 mV enquanto o sinal sob o campo de polarização de 0.1MV/cm é da ordem de 120 mV. O resultado ilustrado na Figura 17 também mostra que a amplitude é proporcional à tensão de polarização, como era de se esperar se o termo não linear for desprezado das equações (17) e (18).

Figura 17 Amplitude do sinal elétrico medido; correspondente a carga induzida no eletrodo inferior do sistema em função da tensão de polarização

4.4 Atenuação e dispersão durante a propagação

A técnica PEA é baseada na propagação de sinais acústicos nos polímeros em estudo e por esta razão é importante avaliar as propriedades acústicas do material para interpretar corretamente as medidas de perfis de carga espacial [34]. Uma das preocupações é avaliar se o sinal correspondente à carga induzida no eletrodo superior (o qual é de menor amplitude que o sinal do eletrodo inferior) é atenuado quando ele propaga pela amostra ou se a amplitude é menor devido a falta de acoplamento adequado entre os materiais que compõe o sistema (condição da Equação (28) e seção 3.2). A seguir será mostrado que para nos resultados obtidos com o polietileno, a diminuição do sinal é compatível com a atenuação do sinal acústico durante a sua propagação através da amostra.

As relações da velocidade acústica e atenuação com os parâmetros do material são bem conhecidas para os materiais dispersivos [40,41]. A seguir, determina-se o coeficientes de atenuação, α , e de dispersão, β , em função da frequência e compara-se os valores obtidos com os conhecidos na literatura. É importante ressaltar que a partir dos coeficientes de atenuação e dispersão pode-se seguir o caminho inverso, isto é, corrigir as medidas experimentais dos perfis de carga obtidos com o polietileno.

Foi implementado um algoritmo de cálculo utilizando as equações descritas no Apêndice B. O cálculo é feito para que as densidades de carga σ_1 e σ_2 que são encontradas nas medidas, como as da Figura 18, passem após a correção de atenuação e dispersão, a ter mesma largura e a mesma amplitude. Os resultados para os coeficientes de atenuação e dispersão são mostrados na Figura 18(a) e (b), os cálculos foram feitos com a curva ilustrada na Figura 15. Os resultados dos cálculos da atenuação e dispersão mostrou-se razoável até 50 MHz, acima deste valor observou-se valores inconsistentes

que podem ser atribuídos aos sinais de alta frequência. Técnicas experimentais de atenuação e dispersão mostram um valor máximo de frequência em torno de 20 MHz [40, 42].

Figura 18 Coeficientes de atenuação e dispersão para o PE (a) atenuação e (b) dispersão

O efeito da atenuação aumenta de forma não linear com a frequência enquanto que o efeito da dispersão é linear. Os resultados obtidos aqui concordam razoavelmente com os obtidos por outros métodos experimentais[34], mas a comparação mais cuidadosa fica difícil pois os polietilenos são provavelmente diferentes.

Como conclusão final tem-se a evidência de que o sinal de menor amplitude e correspondente a carga induzida no eletrodo superior é compatível com a atenuação de

sinais acústicos no polietileno. A outra evidência da diminuição do sinal por atenuação será apresentada a seguir.

4.5 Demonstração do problema de acoplamento acústico

O sistema PEA é baseado no feito em que as condições impostas pela equação (28) sejam satisfeitas. Para melhor compreender o efeito de acoplamento acústico e atenuação dos sinais acústicos, utilizou-se uma amostra de poli(etileno tereftalato), PET, de 200 μm de espessura. Foram realizadas medidas com combinações de colocação da amostra e da fita condutora, conforme é ilustrado a seguir.

Figura 19 Sinal medido com amostra de PET.

A Figura 19 mostra o sinal medido com a fita semi-condutora entre o eletrodo superior e a amostra de PET, como sempre é feito nas medidas para obter o acoplamento acústico. Neste caso, o sinal medido e correspondente à carga induzida no eletrodo superior apresenta uma amplitude quase igual ao sinal correspondente à carga induzida no eletrodo inferior. Como a impedância acústica do PET é aproximadamente

igual ao do polietileno, tem-se a evidência que no PET o acoplamento acústico obedece a equação (28) e que o sinal de menor amplitude observado no polietileno é devido a atenuação.

A retirada da camada semi-condutora colocada acima do eletrodo superior diminui o pulso originário desse eletrodo, conforme ilustrado na Figura 20. Neste caso, conclui-se que não há um bom acoplamento acústico. As medidas utilizando a fita semi-condutora em ambos os lados da amostra leva à uma distorção muito grande dos sinais, como mostrado na Figura 21. O uso de apenas uma fita semi-condutora no eletrodo inferior causa a inversão do sinal medido, como mostrado na Figura 22.

O acoplamento acústico do sistema é, portanto, um fator muito importante para se obter os sinais adequados e consistentes com os resultados esperados. Assim, o acoplamento deve ser detalhadamente avaliado para se utilizar o sistema PEA para diferentes materiais.

Figura 20 Medida com PET sem fita semi-condutoras

Figura 21 Amostra com duas fitas semi-condutora

Figura 22 Amostra com fita semi-condutora no eletrodo inferior

4.5 Conclusão

Neste capítulo apresentou-se os principais procedimentos para obtenção dos perfis de carga espacial. Foi mostrado um exemplo preliminar para uma amostra de polietileno utilizando a técnica de desconvolução do sinal medido utilizando a técnica de transformada rápida de Fourier – FFT. Discute-se também a linearidade da calibração do sistema de medidas e um teste para verificar a importância da carga residual nas amostras na determinação da função de transferência. Os coeficientes de atenuação e dispersão do sinal foram calculados, e são compatíveis com os resultados encontrados na literatura e, portanto, nos fornecem a evidência de que no polietileno ocorre a atenuação do sinal acústico quando ele propaga pela amostra. Para analisar a importância do acoplamento acústico foi utilizada uma amostra de PET e, a partir, destes resultados fica claro a importância do uso adequado do sistema PEA.

V – Resultados

A seguir apresenta-se os resultados experimentais obtidos em amostras de polietileno de baixa densidade, LDPE. Foram realizadas medidas com diferentes tipos de LPDE, obtidos com catalisadores de Ziegler-Natta e Metallocene e em amostras desses polímeros contendo ou não anti-oxidantes. Saliente-se que os perfis de carga espacial são apresentados sem correções de atenuação e de dispersão. Estas correções não foram feitas devido ao uso da camada semi-condutora no eletrodo superior, os resultados serão discutidos de forma qualitativa. São também mostradas medidas de condução elétrica e de tensão de ruptura dielétrica.

A principal contribuição deste trabalho é a comparação de resultados de medidas de injeção de cargas elétricas para diferentes formulações de polietileno de baixa densidade, os quais foram sintetizados com diferentes catalisadores. Este trabalho de doutoramento permitiu a apresentação de vários trabalhos em congressos e simpósios nacionais e internacionais e pretende-se nos próximos meses submeter trabalhos em revista internacional (ver Apêndice C).

5.1 Polímeros e Amostras

Os polímeros LPDE utilizados neste trabalho foram sintetizados utilizando dois tipos de catalisadores: Ziegler-Natta e Metallocene [35]. Historicamente os pesquisadores Dr. K. Ziegler e Dr. Z. Natta, em 1953, obtiveram um catalisador de alto desempenho para polimerização de poliofenos levando à polímeros com índice de polidispersão menor do que os obtidos com catalisadores convencionais. Posteriormente, na década de 80, o catalisador do tipo Metallocene foi desenvolvido por Dr. W. Kaminsky e seus colaboradores e, atualmente, é utilizado por indústrias de

polímeros, por ser mais eficiente do que o catalisador de Ziegler-Natta [36]. Os polietilenos obtidos através de catalisadores Metallocenos têm atraído a atenção de muitos pesquisadores e fabricantes de materiais isolantes elétricos pois apresentam melhores propriedades elétricas.

Os vários tipos de amostras utilizadas são listadas na Tabela 12 e foram fornecidas pela Japan Polychem Co. na forma de filmes. Estes polímeros são preparados em formulações para atender as indústrias do setor de isolantes elétricos e a quantidade de aditivos não foi fornecida pelo fabricante; apenas é informado a presença de acetofenona, um produto usado para a reticulação do polímero. Na Tabela 13 são listadas as principais propriedades físico-químicas das amostras utilizadas neste trabalho. Os filmes foram preparados através do método de sopro (idêntico à fabricação de sacos plásticos) [37] e as amostras com espessuras da ordem de 20 ou 100 μm .

Código da amostra	Catalisador utilizado e composição
ZSA-LDPE	Ziegler-Natta sem anti-oxidante
MSA-LDPE	Metallocene sem anti-oxidante
MTA-LDPE	Metallocene tratado superficialmente com anti-oxidante
MMA-LDPE	Metallocene e misturado com anti-oxidante

Tabela 12 Tipos de amostras utilizadas nas medidas

Propriedades	Metallocene®	Ziegler®
Peso molecular médio M_w	70.5×10^3	103.1×10^3
Polidispersão (M_w/M_n)*	1.8	3.3
Densidade (g/cm^3)	0.918	0.918
Temperatura de Fusão, °C início/fim, DSC	116.4/118.9	122.8/127.8
Índice de Fluidez MFR (g/10min.)	2.89	2.01

Tabela 13 Propriedades físico-químicas dos PE obtidas com diferentes catalisadores.

**Relação entre peso molecular M_w e a distribuição do peso molecular M_n*

5.2 Avaliação preliminar das propriedades elétricas de amostras

Para se ter uma avaliação preliminar das propriedades elétricas das amostras utilizou-se uma tensão do tipo rampa, com taxa de subida de 500 V/s. Estas medidas permitiram avaliar a tensão crítica de ruptura das amostras e escolher os materiais mais adequados para uso em isolamento elétrica. Pôde-se também destas medidas estimar a condutividade elétrica das amostras.

As *Figura 23* (a) e (b) mostram as curvas da densidade de corrente versus campo elétrico durante a aplicação da rampa de tensão, para as amostras catalisadas por Ziegler-Natta (LL1 a LL3) e Metallocene (M1 a M5). Estes códigos correspondem aos polietilenos obtidos com diferentes substâncias para cada tipo de catalisador. A *Figura 23* (a) corresponde aos resultados para a temperatura de 30 °C e a *Figura* (b) a 90 °C. O aumento abrupto da corrente elétrica indica o campo crítico no qual é iniciado o processo de ruptura da amostra.

Observa-se para os polietilenos obtidos utilizando o catalisador Ziegler-Natta apresentam uma subida linear da corrente, em ambas as temperaturas, até o campo elétrico da ordem de 1 MV/cm, quando ocorre o aumento abrupto da corrente. Por outro lado, o polietileno catalisado por Metallocene o aumento abrupto ocorre por volta de 4 MV/cm. Na *Figura 24* mostra-se a comparação dos resultados obtidos a diferentes temperaturas para uma amostra de polietileno catalisada por Metallocene. Vê-se que elas apresentam uma tensão crítica em torno de 2 MV/cm para 30°C e 4MV/cm 90°C.

Destes resultados conclui-se que os polietilenos obtidos com o catalisador Metallocene é o material que possui as melhores características elétricas, razão pela qual foram escolhidos o polietileno – Metallocene, código M4, e o polietileno Ziegler-Nata – LL1, para comparação dos resultados.

Figura 23 Densidade de corrente em função do campo elétrico aplicado para diferentes polietilenos (a) $T = 30\text{ °C}$ e (b) $T = 90\text{ °C}$

Figura 24 Densidade de corrente para amostra M4 em diferentes temperaturas

Das medidas de rampa de tensão pode-se também obter informações sobre o processo de condução elétrica das amostras. A densidade de corrente total, $J(t)$, para um dielétrico, sem polarização elétrica, pode ser escrita como

$$J(t) = \varepsilon \frac{dE(t)}{dt} + J_c(t)$$

onde $E(t)$ é o campo elétrico e $J_c(t)$ é a corrente de condução. Como $\frac{dE}{dt} = k$ tem-se que

$$J(t) = \varepsilon k + J_c(t)$$

Assim, a medida da corrente fornece informações do processo de condução da amostra. Nas figuras mostradas vê-se que a densidade de corrente cresce a uma taxa aproximadamente constante até atingir o campo crítico de ruptura. Conclui-se portanto que o processo de condução deve ser ôhmico pois

$$J(t) = \varepsilon k + \sigma E$$

ou seja, a taxa de subida da densidade de corrente fornece diretamente a condutividade elétrica da amostra. Para valores elevados de tensão de polarização é observado um aumento da taxa na curva de corrente, efeito este devido a injeção de carga espacial na amostra [38,39].

As curvas da Figura 24 mostram que os valores da condutividade elétrica das amostras são aproximadamente iguais, independentemente do catalisador utilizado na síntese. Usando as curvas da Figura 24, para a temperatura de 30 °C, estima-se uma condutividade elétrica da ordem de $4.7 \times 10^{-15} \text{ Scm}^{-1}$. A condutividade para a temperatura de 90 °C é ligeiramente maior, $7.9 \times 10^{-15} \text{ Scm}^{-1}$, pois a taxa de subida da densidade de corrente é maior que a da temperatura de 30 °C (veja Figura 24).

5.3 Procedimento Experimental - Medidas com o PEA

Nestas medidas foi utilizado o osciloscópio de alta resolução com banda de frequência de 1GHz da marca TekTronix, modelo TDS684B. O sinal elétrico medido no osciloscópio foi processado utilizando os algoritmos de desconvolução e calibração descritos no capítulo anterior. O acoplamento acústico foi conseguido colocando a fita semi-condutora no eletrodo superior (onde se aplica a tensão) como já descrito no capítulo IV. Para a obtenção da função de transferência e calibração dos sinais aplicou-se na amostra o campo elétrico de 0.05MV/cm, de baixa intensidade para não injetar cargas elétricas nas amostras.

Para observar a dinâmica do efeito de injeção de carga espacial, as amostras têm de ser submetidas a campos elétricos elevados no processo de polarização elétrica, durante um período de tempo que pode durar horas. Neste trabalho o procedimento foi

estudar o comportamento da dinâmica de injeção de cargas em função do valor do campo elétrico e do tempo de sua aplicação na amostra.

Para as medidas de variação do campo elétrico foi adotado o procedimento experimental esquematizado na Figura 25 (sugerido pela EDF, Electricité du France, para avaliar a injeção de cargas em polímeros para uso em isolamento elétrica). As amostras foram inicialmente colocadas em curto-circuito para eliminar eventuais cargas elétricas remanescentes do processo de produção. A medida com uma amostra foi iniciada aplicando-se o campo elétrico 0.05 MV/cm durante 10 minutos e depois a amostra é mantida em curto circuito durante 10 minutos. Este processo foi repetido para vários valores de campo até se chegar ao valor de 0.9 MV/cm. As medidas do perfil de carga espacial foram realizadas nos pontos indicados na Figura 25, marcados de 1 a 5. Sempre foi realizada uma primeira medida no ponto 1 para verificar se amostra continha no seu volume cargas residuais. Nos pontos 2 e 4 as medidas com o PEA foram realizadas alguns segundos após a aplicação da tensão ou após colocar em curto circuito a amostra.

Nas próximas seções serão mostrados os resultado dos perfis de carga medidos para os quatro tipos de amostras e para tensões de polaridade positiva e negativa.

Figura 25 Esquema usado nas medida de perfis de carga espacial

5.3 Perfis de carga espacial para o polietileno ZSA-LPDE

O polietileno do tipo ZSA é obtido pela síntese com o catalisador Ziegler-Nata e as amostras foram preparadas sem nenhum aditivo. As medidas foram realizadas sem deposição de eletrodos metálicos nas amostras, isto é, um lado da amostra ficou em contato com a base de alumínio do sistema (o eletrodo inferior é correspondente à carga induzida que aparece em $d = 0$ nas figuras dos perfis) e o outro lado ficou em contato com a borracha condutora (sinal que aparece em $d = 100 \mu\text{m}$).

O conjunto de Figuras 26 a 28 mostram os resultados obtidos em diferentes intervalos de tempo, para diversas tensões de polaridade positiva e negativa. A comparação dos resultados da Figura 27, após dez minutos de aplicação da tensão, indica que somente o eletrodo de borracha condutora injeta cargas na amostra. É interessante notar também que ele injeta cargas positivas quando ele é polarizado positivamente e negativas quando polarizado negativamente.

Outra comparação interessante são os resultados mostrados nas Figura 28 e 29. Na primeira figura mostra-se que a carga espacial imediatamente após o curto circuito e na Figura 29, dez minutos após o curto circuito. Na Figura 29, o perfil medido corresponde a carga residual que ficou presa na amostra (note que a escala destas figuras são menores que a escalas das Figuras 26 e 27). Após a amostra ficar em curto por dez minutos, para polarização positiva, apenas uma pequena quantidade de carga espacial residual positiva permanece perto do eletrodo positivo enquanto que para a polarização negativa a carga negativa aparece distribuída por toda a amostra e com maior quantidade perto do eletrodo inferior da amostra. Este resultado é difícil de compreender, pois para os resultados da Figura 27 (b) era de se esperar uma concentração de carga espacial maior perto do eletrodo inferior da amostra. Por esta razão estas medidas requerem um estudo mais aprofundado.

É interessante salientar que nas medidas em curto circuito as cargas que aparecem em torno dos valores $d = 0$ e em $d = 100 \mu\text{m}$ nas figuras correspondem às cargas induzidas nos eletrodos devido ao campo elétrico produzido pela carga espacial existente na amostra. Verifica-se experimentalmente que as cargas totais calculadas por integração numérica dos perfis medidos são nulas, como era de se esperar pois as amostras estão em curto circuito.

Figura 26 Perfis da carga espacial da amostra ZSA-LPDE no instante da polarização

(a) polarização positiva (b) polarização negativa

Figura 27 Perfis da carga espacial da amostra ZSA-LPDE polarizada durante 10 minutos

(a) polarização positiva (b) polarização negativa

Ponto de medida 4

Ponto de medida 4

Figura 28 Perfis da carga espacial da amostra ZSA-LPDE no instante do curto-circuito

(a) polarização positiva (b) polarização negativa

Ponto de medida 5

The graph displays the charge density ρ (in $\mu\text{C}/\text{cm}^3$) on the y-axis against the distance d (in μm) on the x-axis. The x-axis ranges from -25 to 125 μm , and the y-axis ranges from -10 to 25 $\mu\text{C}/\text{cm}^3$. Six data series are plotted, corresponding to different electric field strengths: 0.05 MV/cm (red), 0.10 MV/cm (green), 0.30 MV/cm (blue), 0.50 MV/cm (cyan), 0.70 MV/cm (magenta), and 0.90 MV/cm (yellow). All curves exhibit oscillatory behavior, with a prominent negative peak near $d = 0$ and a positive peak near $d = 90$ μm . The amplitude of these peaks increases as the electric field strength increases.

(a)

Ponto de medida 5

The graph displays the charge density ρ in $\mu\text{C}/\text{cm}^3$ on the y-axis (ranging from -20 to 60) against the distance d in μm on the x-axis (ranging from -25 to 125). Six data series are plotted for different electric field strengths:

- 0.05 MV/cm (red line with circles)
- 0.10 MV/cm (green line with triangles)
- 0.30 MV/cm (blue line with inverted triangles)
- 0.50 MV/cm (cyan line with diamonds)
- 0.70 MV/cm (magenta line with pluses)
- 0.90 MV/cm (yellow line with crosses)

As the electric field strength increases, the magnitude of both the positive peak at $d \approx 0 \mu\text{m}$ and the negative peak at $d \approx 100 \mu\text{m}$ increases. The 0.90 MV/cm curve shows the largest positive peak (around 15 $\mu\text{C}/\text{cm}^3$) and the deepest negative peak (around -10 $\mu\text{C}/\text{cm}^3$).

(a) polarização positiva (b) polarização negativa

5.4 Perfis de carga espacial para o polietileno MSA-LPDE

Este polietileno é sintetizado utilizando o catalisador do tipo Metallocene e as amostras também são preparadas sem aditivos. As medidas foram também feitas com as amostras sem a deposição de eletrodos metálicos.

Os resultados obtidos nesta amostra são mostrados nas Figuras 30 a 33, e são bastante similares aos descritos para as amostras do tipo ZSA. Dos resultados da Figura 31, sob tensão aplicada durante 10 minutos, vê-se que ocorre injeção de homocargas pelo lado da amostra em contato com a borracha condutora (eletrodo superior do sistema). Nesta situação os resultados para este tipo de amostra são similares aos mostrados na seção anterior para as amostras do tipo ZSA.

Quando se examina os resultados em curto circuito estes resultados são confirmados pela carga residual nas amostras. Na Figura 33, após a amostra ter ficado em curto circuito durante 10 minutos, vê-se claramente que perto do eletrodo de borracha condutora ($d = 100 \mu\text{m}$) há um acúmulo residual de carga positiva, veja Figura 33 (a), (polarização positiva) e um acúmulo de carga residual negativa, veja Figura 33 (b), (polarização negativa). Estes resultados são bastante coerentes ao contrário daqueles obtidos para as amostras do tipo ZSA.

Figura 31 Perfis da carga espacial da amostra MSA-LPDE polarizada durante 10 minutos

(a) polarização positiva (b) polarização negativa

Figura 32 Perfis da carga espacial da amostra MSA-LPDE no instante do curto-circuito

(a) polarização positiva (b) polarização negativa

Figura 33 Perfis da carga espacial de amostras do tipo MSA-LPDE após 10 minutos em curto-circuito (a) polarização positiva (b) polarização negativa

5.5 Perfis de carga espacial para o polietileno MTA-LPDE

Este polietileno é do tipo que foi sintetizado com o catalisador Metallocene e as amostras são tratadas superficialmente com anti-oxidante. Saliente-se que substâncias anti-oxidantes são empregadas para evitar a degradação do polímero causada por luz ultra violeta e, em geral, se utiliza como aditivo o dióxido de titânio. As medidas foram feitas em amostras metalizadas em ambas as faces com alumínio.

Os resultados experimentais para as amostras preparadas com tratamento superficial são mostrados nas Figuras 34 a 37. Das figuras 34 e 35 nota-se que, comparativamente aos resultados obtidos com as amostras anteriores (seções 5.3 e 5.4), a injeção de cargas é menor. Os resultados da Figura 36, imediatamente após o curto circuito, mostram que tanto para as amostras polarizadas positivamente ou negativamente ocorre a injeção de homocargas mais intensamente pelo eletrodo polarizado positivamente. Este resultado era de se esperar pois neste caso os dois lados da amostra possuem o mesmo tipo de eletrodo, ou seja, a mudança da polaridade é equivalente a trocar o lado pelo qual as cargas são injetadas. Este tipo de comportamento não ocorria nas amostras anteriores, aonde ocorria apenas injeção de cargas positivas ou negativas pela face da amostra em contato com a borracha condutora.

Figura 34 Perfis da carga espacial da amostra MTA-LPDE no instante da polarização

(a) polarização positiva (b) polarização negativa

Figura 35 Perfis da carga espacial da amostra MTA-LPDE polarizada durante 10 minutos

(a) polarização positiva (b) polarização negativa

Figura 36 Perfis da carga espacial da amostra MTA-LPDE no instante do curto-circuito

(a) polarização positiva (b) polarização negativa

Figura 37 Perfis da carga espacial da amostra MTA-LPDE após 10 minutos em curto-circuito

(a) polarização positiva (b) polarização negativa

5.6 Perfis de carga espacial no polietileno MMA-LDPE

Neste caso, o polietileno também foi sintetizado com o catalisador Metallocene e para a preparação das amostras foi adicionado no volume da amostra o anti-oxidante. As amostras foram metalizadas com eletrodos de alumínio em ambas as faces.

Os resultados obtidos para este tipo de polietileno estão mostrados nas Figuras 38 a 41 e são bastante semelhantes com os obtidos com as amostras do tipo MTA, descritos na seção anterior. Na Figura 40, imediatamente após o curto circuito, mostra-se que ocorreu uma injeção de cargas muito maior que em todas as amostras analisadas anteriormente. Também pode-se ver que nestas amostras que ocorre injeção de cargas positivas mais intensamente pelo eletrodo polarizado positivamente, apesar dos perfis medidos apresentarem um comportamento mais irregular em função do campo elétrico aplicado. É interessante notar da Figura 41, que após 10 minutos de curto circuito, a maior parte da carga acumulada durante a aplicação da tensão desapareceu do interior da amostra.

Como conclusão vê-se, portanto, que a presença de aditivos nas amostras leva a injeção de cargas de forma mais acentuada que nas amostras sem aditivos.

Figura 38 Perfis da carga espacial da amostra MMA-LPDE no instante da polarização

(a) polarização positiva (b) polarização negativa

*Figura 39 Perfis da carga espacial da amostra MMA-LPDE polarizada durante 10 minutos
(a) polarização positiva (b) polarização negativa*

Figura 40 Perfis da carga espacial da amostra MMA-LPDE no instante do curto-circuito

(a) polarização positiva (b) polarização negativa

Figura 41 Perfis da carga espacial da amostra MMA-LPDE após 10 minutos de curto-circuito
(a) polarização positiva (b) polarização negativa

5.7 Importância da injeção de carga espacial na rigidez dielétrica e efeito do tratamento por ozônio

Como foi mencionado na introdução deste trabalho, uma das maiores motivações para o estudo da injeção de cargas em polímeros foi o fato de amostras que tinham sido previamente submetidas a uma ddp elétrica (pré-tensão) apresentavam uma tensão de ruptura menor em comparação com amostras sem polarização prévia. Nesta seção do trabalho será mostrado um exemplo de medidas de cargas elétricas nas amostras as quais afetam na tensão de ruptura elétrica.

Nesta seção também é discutido o efeito do tratamento da amostra por ozônio na injeção de cargas, bem como na tensão de ruptura das amostras. O tratamento foi feito colocando-se a amostra numa câmara fechada e o ozônio produzido através de uma descarga corona.

Nas curvas da Figura 42 são mostrados os resultados dos perfis de carga espacial em função do tempo de polarização obtidos para amostras de polietileno (M-4) sintetizado com o catalisador Metallocene. A Figura 42 (a) mostra os perfis obtidos para uma amostra sem tratamento com ozônio, a Figura 42 (b) para amostras tratadas durante duas horas e a Figura 42 (c) para 4 horas de tratamento. Para maior clareza as curvas são ampliadas para mostrar o perfil da carga espacial no volume da amostra. Vê-se das figuras que a quantidade de carga injetada aumenta com o tempo de tratamento. A razão para isto deve estar associada ao fato do tratamento por ozônio afetar principalmente a superfície da amostra o que altera o processo de injeção de cargas elétricas do eletrodo da amostra para o volume. Nota-se também nestas amostras que ocorre injeção de homocargas (cargas positivas) pelo eletrodo da amostra que foi polarizado positivamente.

Figura 42 Detalhes do perfis de carga espacial da amostra MSA-LDPE

(a) sem tratamento (b) 2 horas de tratamento (c) 4 horas de tratamento

As medidas de rigidez dielétrica foram feitas seguindo o seguinte procedimento: inicialmente as amostras foram polarizadas com um campo elétrico (campo de pré-tensão), de polaridade positiva ou negativa, durante 5 minutos, a temperatura ambiente. Após o processo de polarização a medida de ruptura é realizada aplicando uma tensão

de polaridade positiva. do tipo impulso, com taxa de subida de 2 GV/s. Essas medidas de rigidez dielétrica foram realizadas a temperatura de 90°C e as amostras imersas em óleo isolante de silicone para garantir que não haja descargas elétricas espúrias. As medidas com amostras tratadas com ozônio foram realizadas sem aplicação da pré-tensão elétrica. Os valores das tensões de ruptura correspondem a média dos valores medidos realizando-se 25 ensaios com diferentes amostras.

Os resultados são apresentados na Figura 43 (a) e estas medidas foram realizadas aplicando nas amostras uma pré-tensão elétrica de valores: -2MV/cm, -1MV/cm, 0 MV/cm, 1MV/cm e 2MV/cm. A Figura 43 (a) mostra os valores da tensão de ruptura em função da tensão de pré-tensão. Para comparação na figura, é também mostrada a tensão de ruptura para diferentes tempos de tratamento com ozônio.

Quando a polaridade da pré-tensão for negativa a tensão de ruptura é menor quando comparada com a aplicação da pré-tensão de polaridade positiva. As pré-tensões positivas levam a injeção de cargas positivas através do eletrodo polarizado positivamente que produzem um campo elétrico de sentido oposto à aquele aplicado pela tensão impulsiva positiva. Para a tensão impulsiva negativa, os campos elétricos têm o mesmo sentido. Assim, a carga espacial diminui o campo elétrico interno durante a aplicação da tensão impulsiva positiva e aumenta para a negativa. Este efeito leva portanto a ruptura da amostra menor para tensões impulsivas negativas.

Figura 43 Resultados para tensão de ruptura com aplicação de pré-tensão

(a) Efeito da aplicação da pré-tensão (b) Efeito da oxidação

Na Figura 43 (b) mostra-se, em maiores detalhes, que o valor da tensão de ruptura diminui com o tempo de tratamento da amostra com ozônio. Este resultado mostra que, neste caso, a tensão de ruptura é coerente com o fato de que o tratamento provoca uma maior injeção de cargas nas amostras (veja Figura 43).

VI - Conclusão

Neste trabalho foram apresentados o equacionamento teórico e o princípio de funcionamento do sistema de pulso eletroacústico, PEA, para medidas de perfis de carga espacial em dielétricos. Para corrigir as distorções dos sinais elétricos medidos (efeitos de acoplamento acústico, circuito de medida, etc..) utiliza-se a técnica de desconvolução dos sinais medidos usando transformada rápida de Fourier - FFT. Observa-se no polietileno que os sinais medidos sofrem os efeitos de atenuação e dispersão que ocorrem durante a propagação do sinal acústico através da amostra. Para corrigir tais efeitos é necessário utilizar técnicas de recuperação do sinal baseadas na teoria de propagação de sinais acústicos em meios sólidos. Nos capítulos III e IV mostraram-se detalhes experimentais para implementação da montagem PEA e os procedimentos para o tratamento matemático dos sinais medidos.

No capítulo V foram apresentados os resultados obtidos em amostras de polietileno de baixa densidade sintetizadas com os catalisadores de Ziegler-Natta e Metallocene. Amostras desses polímeros sem aditivos mostraram um comportamento relativamente parecido mas a adição de aditivos anti-oxidantes indicaram uma injeção de carga muito mais acentuada.

Foram também realizadas medidas da tensão de ruptura dielétrica de amostras de polietilenos. Mostrou-se que a carga espacial, previamente injetada nas amostras por aplicação de uma pré-tensão, afetam sobremaneira o valor da tensão de ruptura. Tal comportamento é explicado pelo campo elétrico produzido pela carga espacial injetada no volume das amostras, a qual se superpõe ao campo elétrico aplicado durante a medida de ruptura. Mostrou-se também que a tensão de ruptura elétrica de amostras oxidadas com ozônio diminui com o tempo de tratamento.

Em resumo, foi mostrado que o efeito da injeção da carga espacial pode ser estudado através do sistema PEA. Os resultados obtidos aqui são importantes para a área de isolamento elétrica pois o conhecimento prévio das propriedades elétricas dos materiais permite prever eventuais falhas nos materiais usados para construção de cabos coaxiais usados na transmissão de energia elétrica. Conclui-se também que o uso de aditivos para proteger os materiais poliméricos contra intempéries deve ser cuidadosamente analisado pois pode piorar as propriedades elétricas do material.

Apêndice A

Dedução do Coeficiente de Geração Acústico numa Interface

Neste apêndice o problema a ser resolvido é a determinação do coeficiente de geração acústico K_{iG} de ondas geradas pela aplicação de uma força na interface entre duas superfícies de diferentes materiais. Este coeficiente determinará as amplitudes dos sinais acústicos que propagarão no sistema quando o campo elétrico gera forças nas camadas de cargas induzidas na interface eletrodo e amostra pela aplicação da tensão elétrica aplicada na amostra.

Seja x a coordenada que define a posição na amostra e $\xi(x)$ o deslocamento em relação à posição x de equilíbrio, veja Figura 44. Para a análise a seguir considera-se um elemento de volume da amostra de área A entre as posições x e $x+dx$.

Figura 44 Elemento de volume e as grandezas envolvidas no cálculo

A variação do elemento de volume devido ao deslocamento é dada por:

$$\Delta V = V_{final} - V_{inicial} \quad (45)$$

onde o volume inicial e final são dados por:

$$V_{inicial} = A (x + dx) - A x = A dx \quad (46)$$

e

$$V_{final} = A \left\{ \left[x + dx + \xi(x) + \frac{\partial \xi}{\partial x} dx \right] - [x + \xi(x)] \right\} = A \left(1 + \frac{\partial \xi}{\partial x} \right) dx \quad (47)$$

O deslocamento $\xi(x+dx)$ foi obtido da expansão em primeira ordem, isto é,

$$\xi(x+dx) = \xi(x) + \frac{\partial \xi}{\partial x} dx. \text{ Portanto, a variação do volume é obtida da equação (45),}$$

(46) e (47):

$$\Delta V = A \left(1 + \frac{\partial \xi}{\partial x} \right) dx - A dx = A \frac{\partial \xi}{\partial x} dx \quad (48)$$

A relação entre a variação de volume ΔV e a variação da pressão ΔP é obtida da definição da compressibilidade β do material:

$$\beta = -\frac{1}{V} \frac{\Delta V}{\Delta P} \quad \text{ou} \quad \Delta P = -\frac{1}{\beta} \frac{\Delta V}{V} \quad (49)$$

Substituindo os valores de ΔV e V na equação (49) tem-se então:

$$\Delta P = -\frac{1}{\beta} \frac{A \frac{\partial \xi}{\partial x} dx}{A dx} = -\frac{1}{\beta} \frac{\partial \xi}{\partial x} \quad (50)$$

Usando a segunda lei de Newton para a massa contida no elemento de volume ΔV tem-se:

$$AP[x + \xi(x+dx)] - AP \left[x + dx + \xi(x) + \frac{\partial \xi}{\partial x} dx \right] =$$

$$A\mu \left[x + d x + \xi(x) + \frac{\partial \xi}{\partial x} dx - x - \xi(x) \right] \frac{\partial^2 \xi}{\partial t^2} \quad (51)$$

onde μ é a densidade do material.

Assumindo que $\xi(x)$ tem pequenos valores pode-se considerar apenas os termos de primeira ordem da equação (51); isto é, $-\frac{\partial P}{\partial x} = \mu \frac{\partial^2 \xi}{\partial t^2}$. Usando $P = P_0 + \Delta P$

e considerando que P_0 tem valor constante, tem-se:

$$-\frac{\partial \Delta P}{\partial x} = \mu \frac{\partial^2 \xi}{\partial t^2} \quad (52)$$

usando a equação (49) para eliminar ΔP obtém-se a equação de onda:

$$\frac{\partial^2 \xi}{\partial x^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \xi}{\partial t^2} = 0 \quad (53)$$

onde $c^2 = \frac{1}{\beta \mu}$.

Estabelecida a equação de onda o objetivo é determinar as amplitudes das ondas acústicas geradas numa interface entre dois diferentes meios. A equação (50) para ΔP , pode ser reescrita com:

$$\Delta P = -\mu c^2 \frac{\partial \xi}{\partial x} \quad (54)$$

Na interface em $x=0$ age a sobrepressão ΔP_0 , que se divide entre os dois meios, as quais chamaremos de ΔP_1 e ΔP_2 . Portanto, a sobrepressão é dada por:

$$\Delta P_0 = \Delta P_1 + \Delta P_2 \quad (55)$$

onde ΔP_0 , ΔP_1 e ΔP_2 são funções do tempo e podem ser expressas em termos dos deslocamentos ξ_1 e ξ_2 nos dois meios:

$$\Delta P_1 = -\mu_1 c_1^2 \left. \frac{\partial \xi_1}{\partial x} \right|_{x=0} \text{ e } \Delta P_2 = -\mu_2 c_2^2 \left. \frac{\partial \xi_2}{\partial x} \right|_{x=0} \quad (56)$$

Sejam $\xi_1 = f_1(x - c_1 t)$ e $\xi_2 = f_2(x - c_2 t)$ as funções que representam a propagação das ondas nos dois meios. As suas derivadas são calculadas da seguinte

forma $\frac{\partial \xi_1}{\partial x} = \frac{d f_1}{d u_1} \frac{\partial u_1}{\partial x}$, onde $u_1 = x - c_1 t$. Assim $\frac{\partial u_1}{\partial x} = 1$ e em $x = 0$

$d u_1 = -c_1 dt$. Portanto em $x=0$ obtém-se:

$$\left. \frac{\partial \xi_1}{\partial x} \right|_{x=0} = -\frac{1}{c_1} \frac{d f_1}{d t} \text{ e } \left. \frac{\partial \xi_2}{\partial x} \right|_{x=0} = -\frac{1}{c_2} \frac{d f_2}{d t} \quad (57)$$

Figura 45 Detalhes da ação das pressões na interface entre dois meios

Substituindo as derivadas parciais na equação (57), obtém-se:

$$\Delta P_1 = \mu_1 c_1 \frac{d f_1}{d t} \text{ e } \Delta P_2 = \mu_2 c_2 \frac{d f_2}{d t} \quad (58)$$

Na interface $x = 0$, impõe-se que as velocidades nos dois meios, sejam iguais, ou seja:

$$\left. \frac{\partial \xi_1}{\partial x} \right|_{x=0} = \left. \frac{\partial \xi_2}{\partial t} \right|_{x=0} \quad (59)$$

Mas como $\frac{\partial \xi_1}{\partial x} = \frac{d f_1}{d u_1} \frac{\partial u_1}{\partial x}$ e $\frac{d u_1}{d t} = -c_1$ para $x = 0$ tem-se

$$\left. \frac{\partial \xi_1}{\partial t} \right|_{x=0} = \frac{d f_1}{d t}. \text{ De forma semelhante obtém-se } \left. \frac{\partial \xi_2}{\partial x} \right|_{x=0} = \frac{d f_2}{d t}. \text{ Então}$$

$\frac{\partial f_1}{\partial t} = \frac{d f_2}{d t}$ e lembrando que $f = f_1 = f_2$, da equação (58), obtém-se:

$$\frac{d f}{d t} = \frac{\Delta P_0}{\mu_1 c_1 + \mu_2 c_2} \quad (60)$$

e portanto da equação (56) obtém-se:

$$\Delta P_1 = \frac{\mu_1 c_1}{\mu_1 c_1 + \mu_2 c_2} \Delta P_0 \text{ e } \Delta P_2 = \frac{\mu_2 c_2}{\mu_1 c_1 + \mu_2 c_2} \Delta P_0 \quad (61)$$

Como $Z_1 = \mu_1 c_1$ e $Z_2 = \mu_2 c_2$ são as impedâncias acústicas nos dois meios, tem-se que a equação (61) pode ser expressa como:

$$K_{IG} = \frac{\Delta P_1}{\Delta P_0} = \frac{Z_1}{Z_1 + Z_2} \text{ e } K_{2G} = \frac{\Delta P_2}{\Delta P_0} = \frac{Z_2}{Z_1 + Z_2} \quad (62)$$

que são as expressões dos coeficientes de geração acústica que propaga no meio 1 e meio 2.

Apêndice B

Análise da Atenuação e Dispersão do Pulso Acústico

No desenvolvimento da teoria de funcionamento do PEA, capítulo II, considerou-se que o pulso acústico propaga num meio ideal. Em meios sólidos, como o polietileno, o pulso acústico é distorcido durante a sua propagação devido a atenuação e dispersão[40]. Nas medidas com o sistema PEA a atenuação e dispersão certamente afetam a determinação dos perfis de carga espacial, uma vez que os sinais acústicos são gerados ao longo da amostra e portanto viajam diferentes distâncias até atingirem o transdutor piezoelétrico.

A seguir descreve-se as equações básicas de propagação de ondas planas e o método matemático para tratar para os efeitos de atenuação e dispersão.

B.1 Análise da teoria da atenuação e dispersão

Para esta análise, assume-se que a onda acústica propagando na direção $\mathbf{x}$. A expressão da onda acústica plana em meio sem perdas é da por[41]:

$$p(x,t) = P_0 \exp(j\omega(t - x/v)) = P_0 \exp(j(\omega t - kx)) \quad (63)$$

onde P_0 é amplitude da onda acústica plana na posição $x=0$, ω é a frequência angular, v é velocidade de propagação e k é o número de onda. Para descrever a propagação num meio real com dispersão e atenuação introduz-se k na forma de número complexo [40,42]:

$$k = \beta - j\alpha \quad (64)$$

onde α corresponde ao fator de atenuação e $\beta = \omega / v$ ao fator de dispersão.

A equação (66) é expressa por:

$$p(x, t) = P_0 \exp(-\alpha x) \exp(j(\omega t - \beta x)) \quad (65)$$

A parte real da expressão descreve a atenuação do sinal e a parte imaginária é associado à propagação da onda. No domínio da frequência a onda acústica é escrita na forma de sua transformada de Fourier [40,42]:

$$P(f, x) = P(f, 0) \exp(j(\omega t - kx)) \quad (66)$$

onde $P(f, 0)$ é a transformada de Fourier do pulso acústico na posição $x = 0$. Da mesma forma k no domínio da frequência é dado por:

$$k(f) = \beta(f) - j\alpha(f) \quad (67)$$

onde $\beta(f) = 2\pi f / v(f)$. Substituindo k na equação (67), tem-se:

$$P(f, x) = P(f, 0) \exp(-\alpha(f)x) \exp(-j\beta(f)x) \quad (68)$$

Se $\alpha(f)$ e $\beta(f)$ forem conhecidos no domínio da frequência, o pulso acústico na posição x é expresso da seguinte forma:

$$p(t, x) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} P(f, x) \exp(j 2\pi f t) df \quad (69)$$

ou seja:

$$p(t, x) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} [P(f, 0) \exp(-\alpha(f)x) \exp(-j\beta(f)x)] \exp(j 2\pi f t) df \quad (70)$$

B.2 Cálculo dos fatores de atenuação e dispersão

Os sinais dos pulsos acústicos gerado nos pontos $x=0$ e $x=d$ da amostra são suficientes para calcular os efeitos da atenuação e dispersão. Um método numérico é introduzido aqui pela técnica da transformada de Fourier.

A transformada de Fourier dos pulsos acústicos na posições $x=0$ e $x=d$ são expressas por:

$$P(f,0) = |P(f,0)| \exp(-j\phi(f,0)) \quad (71)$$

$$P(f,d) = |P(f,d)| \exp(-j\phi(f,d)) \quad (72)$$

onde $|P(f,0)|$ e $|P(f,d)|$ são as amplitudes dos espectros e $\phi(f,0)$ e $\phi(f,d)$ são fases dos espectros respectivamente originários dos pulsos acústicos $p(t,0)$ e $p(t,x)$. As expressões $p(t,0)$ e $p(t,x)$ no domínio da frequência são expressas por:

$$P(f,0) = P_r(f,0) + jP_i(f,0) \quad (73)$$

$$P(f,d) = P_r(f,d) + jP_i(f,d) \quad (74)$$

onde os índices r e i indicam a parte real e imaginária da equações (74) e (75). As amplitudes dos espectros são expressas por:

$$|P(f,0)| = \sqrt{P_r^2(f,0) + P_i^2(f,0)} \quad (75)$$

$$|P(f,d)| = \sqrt{P_r^2(f,d) + P_i^2(f,d)} \quad (76)$$

as fases do espectro são calculadas pelas expressões:

$$\phi(f,0) = \tan^{-1} \left(\frac{P_i(f,0)}{P_r(f,0)} \right) \quad (77)$$

$$\phi(f,d) = \tan^{-1} \left(\frac{P_i(f,d)}{P_r(f,d)} \right) \quad (78)$$

Substituindo as equações (74) e (75) na equação (71) obtém-se a amplitude e fase dos espectros expressas por:

$$|P(f, d)| = |P(f, 0)| \exp(-\alpha(f) d) \quad (79)$$

$$\phi(f, d) = \phi(f, 0) + \beta(f) d \quad (80)$$

Consequentemente, obtém as expressões da atenuação e dispersão:

$$\alpha(f) = -\frac{1}{d} \ln \left(\frac{|P(f, d)|}{|P(f, 0)|} \right) \quad (81)$$

$$\beta(f) = -\frac{1}{d} [\phi(f, d) - \phi(f, 0)] \quad (82)$$

Portanto, os fatores de atenuação e dispersão são determinadas unicamente pela amplitude do espectro e fase dos pulsos acústicos originais.

Apêndice C

C - 1 Publicações em Congressos e Simpósios

Serão elaborados artigos para revistas arbitradas internacionais e nacionais referentes aos resultados e das medidas em andamento.

1. Jorge Tomioka, J. A. Giacometti, G. F. Leal Ferreira e T. Mizutani, *Método do pulso eletroacústico (PEA) para determinação do perfil de campo elétrico em dielétricos: Aplicação ao polietileno de baixa densidade*, VI SEMEL- Seminário de Materiais no Setor Elétrico e 13º CBCIMAT- Congresso Brasileiro de Engenharia e Ciências dos Materiais, Curitiba PR, 1998.
2. H. Semi, Jorge Tomioka, K. Kaneko, T; Mizutani and M. Ishioka, *Space Charge Profile of Oxided New Insulating Material*, 1998 National Convention of the Institute of Electrical Engineers of Japan.
3. Jorge Tomioka, J. A. Giacometti, G. F. Leal Ferreira e T. Mizutani, *Técnica do pulso eletroacústico (PEA) para determinação do perfil de campo elétrico em dielétricos poliméricos*, Simpósio sobre Ciência e Engenharia de Materiais no Mercosul, UFSCar, 1998.
4. R. Ishii, Jorge Tomioka, C. Banmongkol, T. Mori, T. Mizutani, M. Ishioka, *Effect of Oxidation on High-Field Phenomena of Low-Density Polyethylene Prepared by Metallocene Catalyst*, 1998 Asian International Conference on Dielectrics and Electrical Insulation and 30th Symposium on Electrical Insulating Materials, 1998.
5. Jorge Tomioka, J. A. Giacometti, G. F. Leal Ferreira e T. Mizutani, *“Método do pulso eletroacústico (PEA) para determinação do perfil de campo elétrico em dielétricos: Aplicação ao polietileno de baixa densidade”*, XII Encontro Nacional de Matéria Condensada da Sociedade Brasileira de Física, São Lourenço, MG, 1999.

6. J. Tomioka, J.A. Giacometti, D. Gonçalves, G.F.L. Ferreira e T. Mizutani
“*Degradação do Polietileno de baixa densidade devido ao tratamento em atmosfera oxidante: efeito nas propriedades elétricas*”, 22^a Reunião da Sociedade Brasileira de Química, Poços de Caldas, MG, 1999.
7. J. Tomioka, J.A. Giacometti, D. Gonçalves, G.F.L. Ferreira e T. Mizutani
“*Efeitos nas Propriedades Elétricas do Polietileno devido ao Tratamento em Atmosfera Oxidante*”, 7^a Reunião Anual da SBPN – Sociedade Brasileira de Pesquisadores Nikkeys, Londrina, PR, 1999.
8. J. Tomioka, J.A. Giacometti, D. Gonçalves, G.F.L. Ferreira e T. Mizutani
“*Determinação do Perfil da Carga Espacial em Meios Dielétricos Sólidos Utilizando Método do Pulso Eletroacústico (PEA)*”, 7^a Reunião Anual da SBPN – Sociedade Brasileira de Pesquisadores Nikkeys, Londrina, PR, 1999.
9. J. Tomioka, J.A. Giacometti, D. Gonçalves, G.F.L. Ferreira e T. Mizutani “*Evolução dos Materiais Poliméricos para Aplicação como Isolante Elétrico*”, 7^a Reunião Anual da SBPN – Sociedade Brasileira de Pesquisadores Nikkeys, Londrina, PR, 1999.
10. H. Semi, Jorge Tomioka, K. Kaneko, T. Mori, M. Ishioka, T. Mizutani, “*Space Charge Behaviors in Insulating Material*”, Trabalho aceito no International Symposium on Electrets- ISE10-99, Delphi, Grécia, 1999.

C - 2 Atividades de Desenvolvimento de Projetos

Após o retorno do programa de doutorado tipo sanduíche foram realizadas seguintes atividades:

- elaboração da carta convite da vinda do Prof. T. Mizutani pela FAPESP, processo número 98/07471-7;
- elaboração do projeto para implementação da técnica PEA no Grupo de Polímeros “Bernhard Gross” pela FAPESP, processo número 98/06812-5.

VI - Referências Bibliográficas

- 1 Takada T., Current Trend of Space Charge Measurement Techniques, Transaction on IEE of Japan A, Vol. 117, No. 6, pp. 545-551, - 1997 (em japonês).
- 2 A. Bradwell, R. Cooper and D B. Varlow, "Conduction in Polyethylene with Strong Electric Fields and the Effect of Prestressing on the Electric Strength", Proc. IEE, Vol.118, pp. 247-254, 1971.
- 3 R. Patsch "Space Charge Phenomena in Polyethylene at High Electric Fields", J. Phys. D, Vol. 23, pp. 1497-1505, 1990.
- 4 T. J. Lewis, "Electrical Effects at Interfaces and Surfaces", IEEE Trans. Electr. Insul., Vol. EI-2, pp. 289-295, 1986.
- 5 T. Hino, "Thermally Stimulated Characteristics in Solid Dielectrics", IEEE Trans. Electr. Insul., Vol. EI-15, pp. 301- 311, 1980.
- 6 T. Takada, T. Maeno, and H. Kushibe, "An Electric Stress Pulse Technique for the Measurement of Charges in a Plastic Plate Irradiated by an Electron Beam", IEEE Trans. Electr. Insul., Vol. EI-22, pp. 497-501, 1987.
- 7 T. Maeno, T. Futami, H. Kushibe, T. Takada, and C.M. Cooke, "Measurement of Spatial Charge Distribution in Thick Dielectrics Using the Pulsed Electroacoustic Method", IEEE Trans. Electr. Insul., Vol. EI-23, pp. 433-439, 1988.
- 8 T. Maeno, T. Futami, H. Kushibe, and T. Takada, "Measurement and Simulation of the Spatial Charge Distribution in Electron-beam-irradiated Polymers", J. Appl Phys., Vol. 65, pp. 1147-1151, 1989.
- 9 J.B. Bernstein, "Analysis of the Electrically Stimulated Acoustic-Wave Method for Observing Space Charge in Semi-insulating Films", Phys. Rev. B, Vol. 44, pp. 10804-10814, 1991.
- 10 P. Laurenceau, G. Dreyfus and J. Lewiner, "New Principle for the Determination of Potential Distributions in Dielectrics", Phys. Rev. Lett. Vol. 38, No. 1, pp. 46-49, 1977.

-
- 11 C. Alquié, G. Dreyfus, and J. Lewiner, "Stress-Wave Probing Electric Field Distribution in Dielectrics", *Phys. Rev. Lett.* Vol. 47, pp. 1483-1487, 1981.
- 12 J. Lewiner, "Evolution of Experimental Techniques for the Study of the Electrical Properties of Insulating Materials", *IEEE Trans. Electr. Insul.* Vol. EI -22, pp. 351 -360, 1986.
- 13 G. M. Sessler, J.E. West, and R. Gerhard, "High-Resolution Laser-Pulse Method for Measuring Charge Distributions in Dielectrics", *Phys. Rev. Lett.* Vol. 48, pp. 563-567, 1982.
- 14 R. Gerhard-Multhaupt, "Analysis of Pressure-wave Methods for the Nondestructive Determination of Spatial Charge or Field distributions in Dielectrics", *Phys. Rev. B*, Vol. 27, No. 4, pp. 2494-2503, 1983.
- 15 K. Fukunaga, H. Miyata, M. Sugimori and T. Takada, "Measurement of Charge Distribution in the Insulation of Cable Using Pulsed Electroacoustic Method", *Trans. IEE of Japan*, Vol. 110-A, No. 9, pp. 647-648, 1990 (in Japanese).
- 16 M. Yasuda, M. Ito and T. Takada, "Measurement of Charge Distributions in Coaxial Cable Using the Pulsed Electroacoustic Method", *Japanese J. Appl. Phys.*, Vol. 30, pp. 71-73, 1991.
- 17 S. Mahdavi, C. Alquié and J. Lewiner, "Measurement of Charge Distributions in Coaxial Structures Application to High Voltage Cables", *IEEE Proc. CEIDP Xerox Conference Center Leesburg Virginia USA*, pp. 296-302, 1989.
- 18 N. Hozumi, T. Okamoto and T. Imajo, "Space Charge Distribution Measurement in a Long Size XLPE Cable Using the Pulsed Electroacoustic Method", *IEEE Symposium on Electrical Insulation*, Baltimore, pp. 294-297, July 1992.
- 19 R. Liu, and T. Takada, "Pulsed Electro-acoustic Method for the Measurement of Space Charge Distribution in Power Cables under Both dc and ac Electric Fields", *J. Phys. D: Appl. Phys.* Vol. 26, pp. 986-993, 1993.

-
- 20 F Chapeau, C. Alquie, J. Lewiner, H. Aculair, Y. Pelet and R. Jocteur, "The Pressure Wave Propagation Method for the Analysis of Insulating Materials: Application to LDPE Used in HV Cables", IEEE Trans. on Electr. Insul., Vol. EI-21, No. 3, pp. 405-410, 1986.
- 21 W. Eisenmenger and M. Haardat, "Observation of Charge Compensated Polarization Zones in Poly(vinylidene fluoride) (PVDF) Films by Piezoelectric Acoustic Step-Wave Response", Solid State Communications, Vol. 41, No. 12, pp. 917-920, 1982.
- 22 R. Gerhard-Multhaupt, G. M. Sessler, J. E. West K. Holdik, M. Haardat and W. Eisenmenger, "Investigation of Piezoelectricity Distributions in Poly(vinylidene fluoride) by Means of Quartz- or Laser-Generated Pressure Pulses", J. of Appl. Phys., Vol. 55, pp. 2769-2775., 1984
- 23 A. Tanaka, M. Maeda and T. Takada, "Observation of Charge Behavior in Organic Photoconductor Using Pressure-Wave Propagation Method", IEEE Trans. on Electr. Insul., Vol. 27, No. 3, pp. 440-444, 1992.
- 24 G. M. SESSLER, J. E. WEST R. GERHARD-MULTHAUPT and H. VON SEGGERN, Nondestructive Laser Method for Measuring Charge Profiles in Irradiated Polymer Films, IEEE Trans. Nucl. Sci., Vol. No-29, pp. 1644-1649, 1982.
- 25 C. ALQUIE, G. DREYFUS and J. LEWINER, Stress Wave Probing of Electric Field Distributions in Dielectrics, Phys. Rev. Lett., Vol. 47, pp. 1483-1487, 1981.
- 26 T. Mizutani, Space Charge Measurement Techniques and Space Charge in Polyethylene, IEEE Trans. On Dielec. and Elec. Ins. Vol. 1, N.5, pp. 923-933, October, 1994.
- 27 Y. Li, and T. Takada, "Experimental Observation of Charge Transport and Injection in XLPE at Polarity Reversal", J. Phys. D: Appl. Phys., Vol. 25, pp. 704-716, 1992.
- 28 Y. Li and T. Takada, "Influence of Polarity Reversal of dc Voltages on the Spatial Charge Distribution", IEEE CEIDP Knoxville USA. pp. 132-138, 1991

-
- 29 The Institution of Electrical Engineers - London, "The Possible Biological Effects of Low-Frequency Electromagnetic Fields", IEEE Electrical Insulation Magazine, Vol.11, No. 1, pp. 27 – 31, January/February, 1995.
- 30 Y. Ohki and S. Yusufuku, "Sumitomo Constructs Vulcanizing Line and Testing Hall", IEEE Electrical Insulation Magazine, Vol. 12, No. 5, Sep./Oct. pp. 67 –68, 1996
- 31 Y. Li, M. Yasuda and Tatsuo Takada, "Pulsed Electroacoustic Method for Measurement of Charge Accumulation in Solid Dielectrics", IEEE Trans. On Dielec. Elect. Ins. Vol. 1, N0. 2, pp.188-195, 1994
- 32 C. Cooke, "Charge Accumulation and Dynamics by Pulsed Acoustic Wave Methods", 3rd International Conference on Electric Charge in Solid Insulators, pp.175-184, Paris – França, Junho/Julho, 1998.
- 33 Takeshi Yoshida Projeto de Circuito de Alta Freqüência CQ 1997 (In Japanese).
- 34 H.J. Wintle, "Kramers-Kronig Analysis of Polymer Acoustic Data", J.Appl. Phys. Vol.85, No. 1, pp. 44-48, 1999.
- 35 W. A. Fraser, "UNIPOL®SSC Metallocene Technology for Enhanced Polyethylene", Proceedings of Metallocenes 96, pp.62 –86, Düsseldorf, Alemanha, 1996.
- 36 M. Takahashi, "Metallocene Catalyzed High Performance Polyethylene", Toyoda Technical Report , Vol.36, No. 1, pp. 10-15, 1994 (In Japanese).
- 37 N. Hozumi, T. Takeda, H. Suzuki, T. Okamoto, "Space Charge Behavior in Polyethylene Under DC Field Electric Fields", T. IEE Japan, Vol. 117-A, No. 4, pp. 355- 364, 1997. (In Japanese).
- 38 M. Hikita, S. Tajima, I. Kanno, I. Ishino, G. Sawa, M. Ieda, "High Field Conduction and Electrical Breakdown of Polyethylene at High Temperatures", Japanese Journal of Applied Physics, Vol. 24, No. 8, August, pp. 988 – 996, 1985.

-
- 39 M. Ieda, M. Nagao e M. Hikita, "High Field Conduction and Breakdown in Insulating Polymers – Present Situation and Future Prospects", IEEE – DEIS, Vol. 1, No. 5, October, pp. 934 – 945, 1994.
- 40 Wolfgang Sachse and Yih-Hsing Pao, "On the determination of phase and group velocities of dispersive waves in solids", J. Appl. Phys. 49(13), august, pp. 4320-4227, 1978.
- 41 L.E. Kinsler, A. R. Frey, A. B. Coppers and J. V. Sanders, "Fundamentals of Acoustics", New York, John Wiley & Sons. Third edition, 1982.
- 42 M. O'Donnell, E. T. Jaynes, and J.G. Miller, "Kramers-Kronig relationship between ultrasonic attenuation and phase velocity", J. Acoust. Soc. Am. 69(3), March, pp. 696-701, 1981.