

**МОДЕЛИРОВАНИЕ ПРОЦЕССА ОБРАБОТКИ ДАННЫХ
ИЗОТЕРМИЧЕСКОГО ДЕПОЛЯРИЗАЦИОННОГО
АНАЛИЗА С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ ФУНКЦИИ
КОЛЬРАУША-УИЛЬЯМСА-ВАТТА**

Аннотация. Исследованы механизмы аппроксимации для описания изменений деполяризационного тока в неоднородных материалах с использованием функции Кольрауша-Уильямса-Ватта. Показана возможность восстановления релаксационной зависимости тока в широком временном диапазоне на основе суперпозиции функций рассматриваемого вида.
Аннотация.

Ключевые слова: моделирование, аппроксимация, изотермический деполяризационный анализ, релаксационные зависимости, функция Кольрауша-Уильямса-Ватта.

Введение. Изотермический деполяризационный (ИТД) анализ традиционно применяется для исследований электронных процессов в диэлектриках [1-7]. Он основывается, как правило, на фиксации кинетики разрядных токов диэлектриков, возникающих после их поляризации постоянным напряжением, с последующим анализом ее спектра в диапазоне низких (инфранизких) частот [8, 9, 10].

В последнее время интенсифицировалось применение ИТД анализа для спектроскопии «медленных» электронных состояний в неоднородных полупроводниковых структурах с межкристаллитными потенциальными барьерами, в частности, варисторной металлоксидной керамике [11, 12]. Одним из ограничений его применения к исследованию и диагностике таких неоднородных материалов являются трудности фиксации релаксационных зависимостей тока ИТД в диапазоне больших времен. Это требует измерений в диапазоне малых (< 10-12 А) токов, подавления шумов с широким спектром.

Одним из перспективных подходов к преодолению указанных трудностей является использование аппроксимирующих функций,

описывающих изменение деполяризационного тока в широком временном диапазоне, в частности функции Кольрауша-Уильямса-Ватта (КУВ) [13,14].

В настоящей работе предложены и протестированы с использованием численных экспериментов базирующиеся на использовании функции КУВ алгоритмы:

- восстановления релаксационной зависимости тока изотермической деполяризации в широком временном диапазоне;
- определение параметров релаксационной зависимости с использованием суперпозиции функций рассматриваемого вида.

Влияние диапазона фиксации временной зависимости деполяризационного тока на его спектральную характеристику. Выражение для КУВ функции, используемой для описания релаксационных зависимостей деполяризационного тока, может быть представлено обобщенно в виде [13, 14]

$$j_{ID}(t) = j_0 \exp \left[- \left(\frac{t}{\tau} \right)^\beta \right], \quad (1)$$

где $j_0 = j_{ID}(0)$; – начальное значение тока деполяризации; τ - постоянная релаксации заряда; величина β - параметр, позволяющий отобразить распределение времен релаксации.

В эксперименте β принимает значения меньшие единицы. Для рассматриваемого здесь численного тестирования примем $\beta=0,5$.

Исходные данные представляют собой зависимости $j_{ID}^{(k)}$ от t_k , где $k=0,1,\dots,K$ (K – число дискретных точек зависимости). Вид зависимости, принятой за основу, показан на рис. 1, а.

Для нахождения спектральной характеристики [15, 16] $j_{ID}(t)$ использовалось интегральное синус преобразование

$$J_{ID}(\omega) = \frac{2}{\pi} \int_0^\infty \overline{j_{ID}}(t) \sin(\omega T) dt. \quad (2)$$

Непрерывная функция $\overline{j_{ID}}(t)$ выражалась через линейную интерполяцию дискретной зависимости $\log[j_{ID}^{(k)}(\log t_k)]$.

В то же время численное вычисление интеграла в (2) сопряжено с рядом трудностей. Во-первых, обеспечить требуемые пределы в эксперименте невозможно. Во-вторых, необходимость обеспечения весьма малых шагов интегрирования в области высоких частот (чтобы

на один период изменения функции $\sin(\omega t)$ приходилось несколько шагов по t) удлиняет вычислительный процесс в целом до практически неприемлемых временных затрат. Более подходящим для вычисления (2) представляется алгоритм, реализуемый следующей формулой (3).

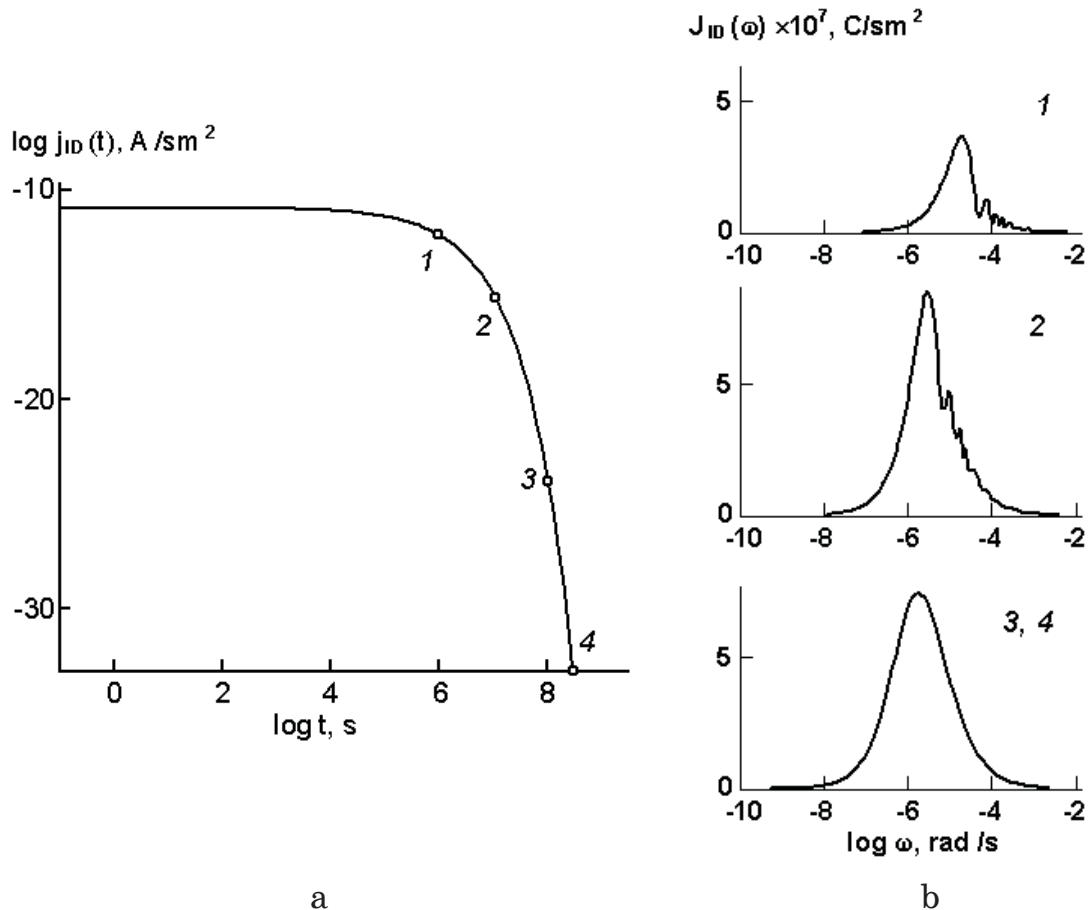


Рисунок 1 - Временные $j_{ID}(t)$ и спектральные $J_{ID}(\omega)$ зависимости тока ИТД, при $\tau = 1.2 \cdot 10^6$ s, $j(0) = 1.35 \cdot 10^{-12}$ A/sm²; $\beta = 0,5$ для временных диапазонов фиксации тока, с: 1 – (10⁻¹...10⁶); 2 – (10⁻¹...10⁷); 3 – (10⁻¹...10⁸); 4 – (10⁻¹...10^{8,5})

$$J(\omega) = \begin{cases} \frac{2}{\pi} \sum_{i=0}^{n-1} \int_{t_0 + \frac{2\pi i}{\omega}}^{t_0 + \frac{2\pi(i+1)}{\omega}} \overline{j_{ID}(t)} \sin(\omega t) dt + \frac{2}{\pi} \sum_{i=0}^{n-1} \int_{t_0 + \frac{2\pi n}{\omega}}^{t_K} \overline{j_{ID}(t)} \sin(\omega t) dt, & \frac{2\pi}{\omega} < (t_K - t_0); \\ \frac{2}{\pi} \sum_{i=0}^{n-1} \int_{t_0}^{t_K} \overline{j_{ID}(t)} \sin(\omega t) dt, & \frac{2\pi}{\omega} \geq (t_K - t_0) \end{cases} ; (3)$$

где $n = \text{trunc}\left(\frac{t_k - t_0}{2\pi/\omega}\right)$; t_0 и t_k - диапазон времени, где фиксировались значения деполяризационного тока. Интегралы в (3) вычисляются стандартными функциями пакета Mathcad [17,18].

На рис. 1, б представлены полученные таким образом спектральные характеристики тока ИТД при фиксации его значений в разных диапазонах времени.

Как видно, потеря длинновременного участка релаксационной зависимости может привести к существенным искажениям спектральной характеристики деполяризационного тока. Это проявляется в уменьшении и сдвиге в сторону более высоких частот максимума $JID(\omega)$, а также в появлении за ним серии повторных меньших по амплитуде пиков.

В условиях физического эксперимента фиксация релаксационной зависимости деполяризационного тока в диапазоне больших времен осложнена вследствие его малости. Как показано выше, спектральная характеристика позволяет определить степень завершенности релаксационной зависимости и достаточности полученных данных для дальнейшего анализа.

Коррекция релаксационной зависимости деполяризационного тока. Одним из возможных подходов, позволяющих дополнить имеющуюся дискретную (экспериментальную) релаксационную зависимость деполяризационного тока является экстраполяция в область больших времен с помощью аппроксимирующей функции КУВ. Для этого необходимо произвести ее идентификацию, т.е. определить параметры функции (1) – j_0 , β и τ по имеющимся дискретным данным (рис.1). Поскольку непосредственное решение задачи аппроксимации нелинейной функции с высокой точностью, сводящееся как правило к решению системы нелинейных уравнений или решению задачи численной минимизации целевой функции достаточно продолжительно и не всегда обеспечивает требуемую точность в настоящей работе использован следующий комбинированный алгоритм.

Для нахождения величины неизвестного коэффициента β дискретная зависимость представляется в координатах $t \times [d(\log j_{ID}^{(k)})/dt]$ и $\log(j_{ID}^{(k)})$, $k = 0, 1, \dots, K$ (K – число ее точек).

В этих координатах зависимость (1) имеет вид прямой (рис. 2):

$$t \frac{d \log j_{ID}(t)}{dt} = \beta \log j_{ID}(t) + const, \quad (4)$$

где $const = -\beta \log j_0$. Выражение (4) получено дифференцированием логарифма выражения (1) и учетом того, что $(t/\tau)^\beta \log e = -\log[j_{ID}(t)/j_0]$.

Как видно параметр β является тангенсом угла наклона прямой (4) - $\beta = \Delta\{t \times [d(\log j_{ID})/dt]\} / \Delta \log(j_{ID})$. Учитывая вероятность разброса экспериментальных точек для повышения точности вычисления величины β предпочтительно использовать их линейную аппроксимацию вида $y(x) = b_0 + b_1 x$ с использованием метода наименьших квадратов [17]. Полученные результаты показаны на рис. 2.

Тогда

$$\beta = b_1 = \left[(K+1) \cdot \sum_{k=0}^K x_k y_k - \sum_{k=0}^K x_k \cdot \sum_{k=0}^K y_k \right] / \left[(K+1) \cdot \sum_{k=0}^K x_k^2 - \left(\sum_{k=0}^K x_k \right)^2 \right], \quad (5)$$

где $x_k = \log(j_{ID}^{(k)})$; $y_k = t_k \times [d(\log j_{ID}^{(k)})/dt]$.

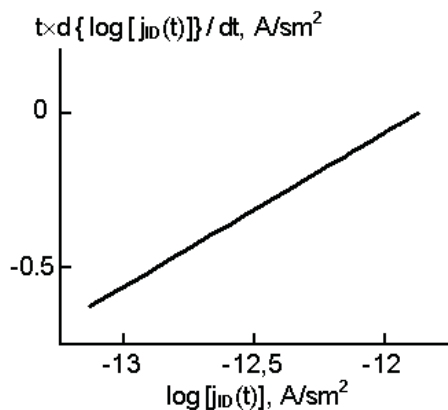


Рисунок 2 - Аппроксимирующая функция КУВ в форме (4). Временной диапазон фиксации тока от 10⁻¹ до 10⁷ с.

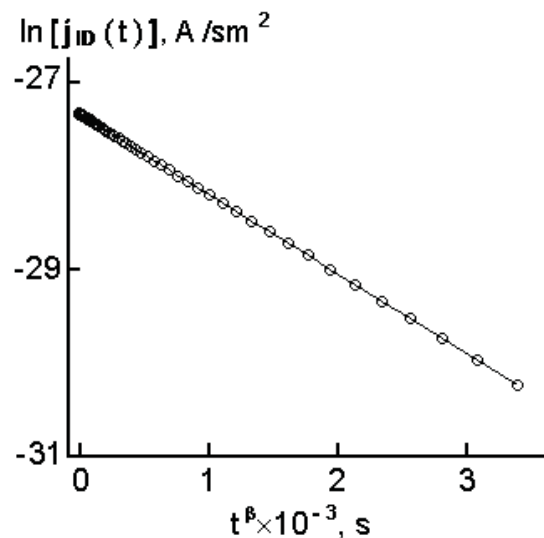


Рисунок 3 - Аппроксимирующая функция КУВ в форме (6). Временной диапазон фиксации тока от 10⁻¹ до 10⁷ с. Точками показаны исходные данные, сплошной линией - аппроксимирующая функция.

Для нахождения остальных неизвестных параметров следует представить исходные дискретные данные в координатах $\ln(j_{ID}^{(k)})$ и

$(t_k)^\beta$, $k = 0, 1, \dots, K$ (K – число точек). Соответственно (1) и рис. 3 в этом случае искомая зависимость также представляется прямой линией

$$\ln[j_{ID}(t)] = \ln[j_0] - (t/\tau)^\beta \quad (6)$$

Оставшиеся неизвестные параметры определяются по формулам

$$\tau = [-\Delta \ln(j_{ID}) / \Delta(t^\beta)]^{-1/\beta}; \quad j_0 = \exp\{\ln[j_{ID}(t)] + (t/\tau)^\beta\}. \quad (7)$$

С учетом линейной аппроксимации аналогичной используемой выше

$$\ln[j_{ID}(t)] + (t/\tau)^\beta = b_0; \quad \Delta \ln(j_{ID}) / \Delta(t^\beta) = b_1; \quad x_k = t_k^\beta; \quad y_k = \ln(j_{ID}^{(k)});$$

$$b_0 = \left(\sum_{k=0}^K y_k \cdot \sum_{k=0}^K x_k^2 - \sum_{k=0}^K x_k \cdot \sum_{k=0}^K x_k y_k \right) / \left[(K+1) \cdot \sum_{k=0}^K x_k^2 - \left(\sum_{k=0}^K x_k \right)^2 \right]$$

На рис. 4 представлены результаты восстановления тестовой релаксационной зависимости деполяризационного тока, заданной в диапазоне 10⁻¹ до 10⁷ с (кривая до точки 2 на рис.1а)

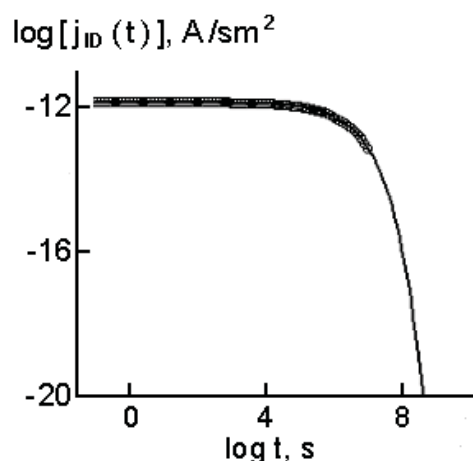


Рисунок 4 - Исходная (жирная линия) и восстановленная с помощью функции КУВ (тонкая линия) кинетические зависимости деполяризационного тока

Полученные путем предлагаемых расчетов и исходные параметры релаксационной функции удовлетворительно совпадают. Относительная погрешность не превышает 0,5%. Следует отметить, что интегрирование зависимости $j_{ID}(t)$ приводит к следующему явному выражению для величины заряда, участвующего в процессе деполяризации

$$Q_S = \int_0^{\infty} j_{ID}(t) dt = j_0 \frac{\tau}{\beta} \Gamma\left(\frac{1}{\beta}\right), \quad (8)$$

где $\Gamma(x)$ - гамма - функция [19].

Особенности обработки данных кинетики релаксационных токов с отличающимися временами релаксации. Следует отметить, что

выражение вида (1) аппроксимирует релаксационную зависимость тока изотермической деполяризации в случае достаточно компактного распределения времен относительно наиболее вероятного τ , что характеризуется введением параметра β . В случае наличия нескольких (m) слабо пересекающихся областей с отличающимися параметрами τ_i , выражение (1) приобретает следующий вид

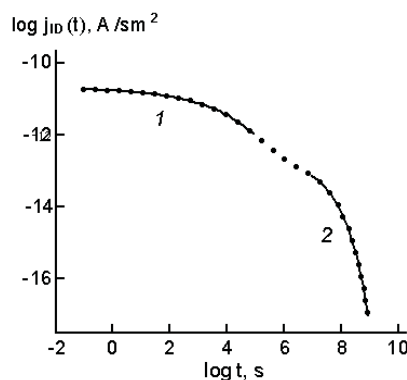
$$j_{ID}(t) = \sum_{i=1}^m j_i \exp \left[- \left(\frac{t}{\tau_i} \right)^\beta \right], \quad (9)$$

Применение методики описанной выше может обеспечить оценку всех параметров функции КУВ для нескольких областей.

На рис. 5, а представлена исходная дискретная (тестовая) зависимость, полученная в соответствии с (8) для $m=2$ и параметров, приведенных в табл. 1. На рисунке также представлены результаты тестирования предложенного алгоритма, получаемые на различных шагах: определения спектральной зависимости тока (рис.5, б), параметров β_i (рис. 5, с), τ_i и j_i (рис. 5, d и f). Как видно спектральная зависимость тока ИТД (рис. 5, б) более широкая, чем для случая одного времени релаксации. Наличие повторяющихся и убывающих по амплитуде пиков после максимума свидетельствует о том, что кинетика тока ИТД описывается зависимостями с параметрами $\beta < 1$.

В зависимости $t \times [d(\log j_{ID}^{(k)})/dt]$ от $\log(j_{ID}^{(k)})$, $k=0,1,\dots,K$ (рис. 5, с) проявляются два линейных участка, что позволяет оценить значения параметров β_1 и β_2 ; представить исходную дискретную зависимость рис. 5, а в координатах

$\ln(j_{ID}^{(k)})$ и $(t_k)^\beta$, $k=0,1,\dots,K$ и найти оценки остальных параметров аппроксимации (9) - τ_i и j_i (рис. 5, d и f).



а

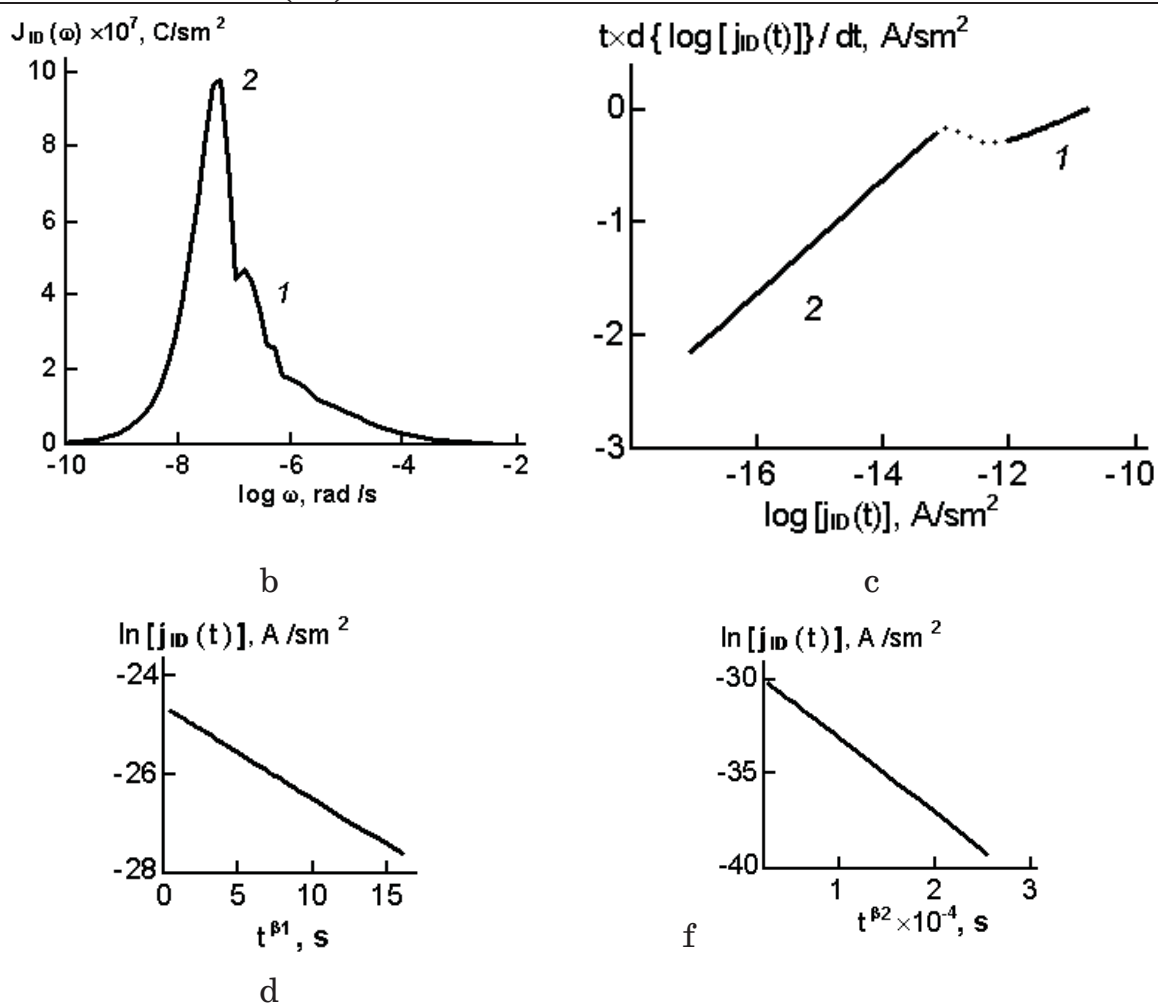


Рисунок 5- Исходные временные (а) и спектральные (б) зависимости тока ИТД с двумя релаксационными областями и результаты применения к ним алгоритма определения параметров функции КУВ (с, d, f) в соответствии с (4) - (7)

Таблица 1

Сравнение расчетных параметров с истинными

Параметр	Расчетное значение	Истинное значение	Относительная погрешность, %
β_1	0.242	0.25	3
τ_1, s	$1.07 \cdot 10^3$	103	7
$j_1, A/sm^2$	$2.03 \cdot 10^{-11}$	$2 \cdot 10^{-11}$	1,5
β_2	0.49	0,5	2
τ_2, s	$8.97 \cdot 10^6$	107	10
$j_2, A/sm^2$	$2.14 \cdot 10^{-13}$	$2 \cdot 10^{-13}$	7

Полученные оценки можно рассматривать в качестве начального приближения. Для получения более точных их значений следует использовать метод наименьших квадратов [17], где они могут быть получены минимизации функции вида.

$$\Phi[\beta_1, \dots, \beta_m; \tau_1, \dots, \tau_m; j_1, \dots, j_m] = \sum_{k=0}^n \left\{ j_{ID}^{(k)} - \sum_{i=1}^m j_i \exp[-(t_k/\tau_i)^{\beta_i}] \right\}^2 = \min. \quad (10)$$

Определенные согласно (10) значения параметров β_i , τ_i и j_i ($i=1$ и 2 , соответственно) удовлетворительно согласуются с принятыми при генерации тестируемой зависимости (табл. 1).

Выводы.

1. Исследованы спектральные характеристики токов изотермической деполяризации. Установлено, что при отсутствии фиксации завершающего длинновременного участка релаксации тока спектральная его характеристика искажается по абсолютным параметрам (высота и частота пика) и по форме (появляется серия небольших пиков, следующих за главным).

2. Предложен алгоритм коррекции релаксационной зависимости тока ИТД, основанный на экстраполяции в область больших времен с использованием функции Кольрауша-Уильямса-Ватта.

3. Показано, что предлагаемый метод пригоден и для определения параметров релаксационных зависимостей, которые аппроксимируются суперпозицией двух функций рассматриваемого вида.

ЛИТЕРАТУРА

1. Neagu, E.R., Neagu R. M. A new method for analysis of isothermal discharging current. // *Thin Solid Films*. – 2000. – V. 358. – P. 283-291.
2. Lei Qingquan, Tian Fuqiang, Yang Chund, He Lijuan and Wang Yic Modified isothermal discharge current theory and its application in the determination of trap level distribution in polyimide films // *J. Electrostatics*. – 2010. – V. 68, Issue 3, P. 243-248.
3. Menegotto J., Demont P., Lacabanne C. Secondary dielectric -relaxation in amorphous poly(ethylene terephthalate): combined thermally stimulated and isothermal depolarization current investigations // *Polymer*. - 2001. - V. 42, N. 9. - P. 4375-4383.
4. Eugen R., Neagu, and Rodica M. Neagu. On the nature of the origin of the iso-thermal and non-isothermal current released from dielectric materials // *Thin Solid Films*. - Volume 384, Issue 1, 1 March 2001, Pages 15-22.

5. Fedosov S.N., Revenyuk T.A., Sergeeva A. E.. Isothermal charging and discharging currents in doped polystyrene // *Photoelectronics*– 2006. - V.15 – P. 15-21.
6. Шаламов, И. В., Ухарцева, И. Ю., Цветкова, Е. А., Гольдаде, В. А. Исследование электрофизических свойств жидкодисперсных систем методом изотермической деполяризации // *Материаловедение*. - 2003. - № 3. - С. 28-31.
7. Baird M.E. Determination of Dielectric Behavior at Low Frequencies from Measurements of Anomalous Charging and Discharging Currents // *Rev. Modern. Phys.* - 1988. – Vol. 40, No. 1 – P. 219-227.
8. Дегтярев А.В., Тонкошкур Ю.А. Диэлектрическая спектроскопия неоднородных структур в диапазоне инфранизких частот // *Вісник Дніпропетровського університету. Серія Фізика. Радіоелектроніка*. 2009. – №2. -Вип.. 16. - С. 137-142.
9. Тонкошкур А.С., Гомилко И.В. Ляшков А.Ю. Особенности изотермической деполяризации в оксидно-цинковой варисторной керамике // *Неорганические материалы*. - 1998. - Т. 34, №9. - С. 1123-1127.
10. Tsonos C., Kanapitsas A., Neagu E., Stavrakas I., Anastasiades C., Triantis D., Pissis P. Dielectric response of ZnO-based varistor // *6th International Discussion Meeting on Relaxations in Complex Systems*. - Rome, Italy. - 2009. List of Abstracts. – P. 175.
11. Тонкошкур А.С., Скляр С.Ф., Афонько Е.Ф., Влияние «встроенного» заряда на диэлектрические явления в неоднородных структурах матричного типа // *Изв. вузов СССР. Физика*. 1988. – № 8. – С. 108 – 110.
12. G. Williams and D. C. Watts . Non-symmetrical dielectric relaxation behaviour arising from a simple empirical decay function // *Trans. Faraday Soc.*, 1970, 66, 80-85.
13. George H. Weiss, Menachem Dishon, Andrea M. Long, John T. Bendler, Alan A. Jones, Paul T. Inglefield, Athinodoros Bandis. Improved computational methods for the calculation of Kohlrausch-Williams/Watts (KWW) decay functions // *Polymer*.- Volume 35, Issue 9, 1994, P. 1880-1883.
14. Stephan A. Baeurle, Atsushi Hotta and Andrei A. Gusev. A new semi-phenomenological approach to predict the stress relaxation behavior of thermoplastic elastomers.// *Polymer*.- Volume 46, Issue 12, 26 May 2005, Pages 4344-4354.
15. M.Dishon, G.H.Weiss and J.T.Bendler, Stable Law. Densities and Linear Relaxation Phenomena // *J. Res.N.B.S.* – 1985. – V.90, No. 1. – P.27 – 40.
16. Калиткин Н.Н. Численные методы. – М.: Наука, 1978. – 512 с
17. Дьяконов В. П. Mathcad 2001: учебный курс.–СПб.: Питер, 2001.–624 с.
18. Г.Корн, Т. Корн. Справочник по математике. Для научных работников и инженеров. М.:Наука, 1974. – 832 с.