



Non-Equilibrium Thermodynamics: Application to the Pre-Breaking Process in Solid Dielectrics

María Sol Ruiz Pollet, Luciano Enciso and Adrian Razzitte

EasyChair preprints are intended for rapid dissemination of research results and are integrated with the rest of EasyChair.

October 3, 2021

“TERMODINÁMICA DE NO-EQUILIBRIO: APLICACIÓN AL PROCESO DE PRE-RUPTURA EN DIELECTRICOS SÓLIDOS”

Ruiz, María Sol ^a; Enciso, Luciano ^{b,c}; Razzitte, Adrián ^a

a FIUBA Instituto de Química Aplicada a la Ingeniería

b FIUBA Depto. de Ing. Eléctrica FIUBA

c) EDENOR S.A.

mruiz@fi.uba.ar

Resumen

El presente trabajo constituye un intento de modelar el proceso de pre-ruptura dieléctrica, incluido el efecto de la presencia de humedad, que difunde a través de las ramas del árbol eléctrico y puede contribuir a su formación incipiente.

Nuestro análisis se centra en la producción de entropía dentro del marco de la termodinámica del no-equilibrio, teniendo en consideración los efectos simultáneos del campo eléctrico (actuando sobre el aislante) y de la difusión de humedad (dentro de los canales o ramas del árbol dieléctrico). Es decir, considerando el acoplamiento de transporte materia- carga eléctrica.

Debido a que la ruptura dieléctrica es un claro ejemplo de proceso de no-equilibrio, creemos que la originalidad de este trabajo radica en la combinación de un modelo estocástico, basado en el modelo de ruptura dieléctrica (DBM) para la descripción de contribuciones puramente eléctricas, junto con otros efectos como la difusión de materia dentro de los micro-canales o la presencia de humedad en el material aislante.

Abstract

The present paper constitutes an attempt to model the dielectric breakdown process including the effect of presence of moisture, that diffuses through the branches of the electric tree and may be contributes to its incipient formation.

Our analysis is focused on the production of entropy within the framework of non-equilibrium thermodynamics, taking into account the effects simultaneous of the electric field (acting on the insulator) and of the diffusion of moisture (within the channels or branches of dielectric tree). That is, considering the coupling electrical-matter transport.

Due to dielectric breakdown is a clear example of a non-equilibrium process, we believe that the originality of this work lies in the combination of a stochastic model, based on the dielectric breakdown model (DBM) for the description of purely electrical contributions, together with other effects such as the diffusion of matter within the micro-channels or the presence of humidity in the insulating material.

Palabras clave: Producción de Entropía, Termodinámica de No-Equilibrio, Pre-Ruptura Dieléctrica, Árbol Dieléctrico.

INTRODUCCIÓN

Un problema abierto en el campo de la tecnología de materiales eléctricos, específicamente los sistemas de aislamiento

eléctrico en transformadores de potencia, cables y aislantes en general, está asociado con el envejecimiento y degradación del dieléctrico para

terminar en el fenómeno de ruptura dieléctrica (DB) [1]-[3].

La humedad de los sistemas de aislamiento es una de las principales causas de fallas en los componentes de la red de distribución y transmisión de media y alta tensión. La acumulación de humedad en el material aislante aumenta significativamente la descarga parcial; y la intensidad del campo de ruptura se reduce considerablemente, lo cual provoca accidentes eléctricos.

Históricamente el fenómeno se ha explicado poniendo énfasis únicamente en la intensidad del campo eléctrico aplicado, dejando de lado (o analizando por separado) el efecto debido a la denominada ruptura térmica, o al aporte químico por el proceso de difusión de impurezas en el material dieléctrico. Este último efecto fue detectado por la mayoría de ingenieros y científicos que estudian las causas de la ruptura: la presencia de humedad en la interfaz medio conductor-aislante, comienza como un proceso de difusión en el material dieléctrico [4]-[9].

El agua produce daños a los materiales aislantes como la celulosa y el XLPE porque acelera el proceso de envejecimiento, reduce la rigidez dieléctrica y disminuye la tensión de inicio de descarga parcial en transformadores y cables de alta y media tensión (entre otros), ambos componentes principales en las redes de sistemas eléctricos [10]-[12]. Conocer el comportamiento de la humedad dentro de un transformador es importante para optimizar los procesos de fabricación y los programas de mantenimiento [5]. Un componente particular de los transformadores de potencia son los *bushings* (casquillos o pasa tapas) de alta tensión. Estos contribuyen significativamente a fallas mayores del transformador [13] y también son propensos a fallas debido al alto contenido de humedad. Los *bushings* pueden clasificarse generalmente por tipo de condensador y no condensador. Los *bushings* de tipo condensador proporcionan una mayor rigidez dieléctrica y un gradiente de voltaje uniforme. Un tipo de estos *bushings* consiste básicamente en un aislante de papel impregnado en aceite [6]. Esta clase de aisladores inspira este trabajo.

DESARROLLO

El proceso de pre-ruptura y ruptura dieléctrica en sólidos a escala microscópica ha dado lugar a numerosos intentos de descripción teórica por parte de varios investigadores de prestigio durante muchos años [14], [15]. En el modelo desarrollado en el presente trabajo, consideramos el inicio del árbol eléctrico debido a una cierta concentración de humedad en la interfaz conductor-material aislante. Esto da lugar a una perturbación local del campo eléctrico, que genera una descarga inicial y el inicio del árbol, pero luego consideramos que en los pequeños micro-canales se inicia un proceso de difusión que transporta iones y estos a la vez generan nuevas ramas del árbol eléctrico. Entonces, ambos efectos presentan cierto grado de acoplamiento en nuestro modelo. Se intentará explicar el fenómeno, utilizando un modelo termodinámico de no equilibrio y no microscópico, del proceso de pre-ruptura dieléctrica.

El proceso de pre-ruptura precede a la destrucción del dieléctrico. A medida que envejece el material dieléctrico, también se forman pequeños micro-canales, que se llenan de moléculas de agua. Cuando aumenta la intensidad del campo eléctrico, existe un canal donde el número de moléculas con probabilidad de ionizarse es mayor. Este camino será el primero en llegar al contra-electrodo y será el responsable de la ruptura dieléctrica.

En un análisis riguroso del proceso de pre-ruptura debemos tener en cuenta todas las posibles causas: campo eléctrico, efecto térmico y transporte de materia. En el formalismo de la termodinámica lineal de no equilibrio [16]-[19], las ecuaciones fenomenológicas que describirían los flujos y fuerzas acopladas que caracterizan a este complejo fenómeno tendrían esta forma:

$$J_q = L_{qq} \nabla(1/T) + L_{q\mu} (-1/T \nabla\mu) + L_{q\Phi} (-1/T \nabla\Phi) \quad (1)$$

$$J_\mu = L_{\mu q} \nabla(1/T) + L_{\mu\mu} (-1/T \nabla\mu) + L_{\mu\Phi} (-1/T \nabla\Phi) \quad (2)$$

$$J_\Phi = L_{\Phi q} \nabla(1/T) + L_{\Phi\mu} (-1/T \nabla\mu) + L_{\Phi\Phi} (-1/T \nabla\Phi) \quad (3)$$

donde J_q , J_μ y J_Φ son los flujos de calor, materia y carga eléctrica, respectivamente. Esas formas obedecen a $J_i = \sum_k L_{ki} X_k$. Las fuerzas X_i de transporte conjugadas a los flujos son la fuerza térmica: $\nabla(1/T)$, la fuerza química: $(-1/T) \nabla\mu$ y la

fuerza eléctrica: $(-1/T) \nabla \Phi$. Los coeficientes L son los coeficientes fenomenológicos, L_{ij} son los coeficientes de acoplamiento, $L_{ij} = L_{ji}$ según el teorema de Onsager. Los coeficientes diagonales se describen mediante λ (conductividad térmica del material), D (coeficiente de difusión del material) y κ (la conductividad eléctrica) siguiendo las leyes clásicas de Fourier, Fick y Ohm respectivamente.

En sistemas reales, el transporte de materia se debe a la difusión de agua en pequeñas cantidades (humedad) dentro del aislante, que acelera el fenómeno de ruptura. La migración de humedad dentro del aislante celulosico es un proceso complejo que involucra transferencia de calor y difusión de masa. Sin embargo, como la constante de tiempo de transferencia de calor es mucho menor que la constante de tiempo de difusión, la migración de humedad puede modelarse como un proceso de difusión, utilizando la segunda ley de Fick [5], [6].

En el marco de la hipótesis del equilibrio local, consideramos que la temperatura del sistema es constante durante el proceso de pre-ruptura.

Luego, consideramos sólo la pre-ruptura dieléctrica en términos de la fuerza eléctrica $(-1/T \nabla \Phi)$ y la fuerza química $(-1/T \nabla \mu)$ en un sistema sin transporte de calor $J_q = 0$. Finalmente, las ecuaciones DB se reducen a:

$$J_\mu = L_{\mu\mu}(-1/T \nabla \mu) + L_{\mu\Phi}(-1/T \nabla \Phi) \quad (4)$$

$$J_\Phi = L_{\Phi\mu}(-1/T \nabla \mu) + L_{\Phi\Phi}(-1/T \nabla \Phi) \quad (5)$$

Es importante notar que si $J_\mu = 0$ y consideramos sólo el flujo J_Φ debido al campo eléctrico, el resultado es $J_\Phi = (E/T)(L_{\Phi\Phi} - L_{\Phi\mu}^2/L_{\mu\mu})$ donde se observa un efecto de acoplamiento sobre el flujo de corriente.

En el marco de la termodinámica de no equilibrio, la producción de entropía σ es una forma bilineal de flujos conjugados y fuerzas conjugadas:

$$\sigma = \sum_i J_i X_i \geq 0 \quad (6)$$

Para sistemas isotérmicos y valores bajos del campo eléctrico E , la densidad de corriente J

viene dada por la ecuación de la ley de Ohm, entonces $J = \kappa E = \kappa T (E/T)$; eso significa:

$$L_{\Phi\Phi} = \kappa T \quad (7)$$

Por aproximación a la ley de Fick, el coeficiente de difusión $D = L_{\mu\mu} / T$; eso significa:

$$L_{\mu\mu} = TD \quad (8)$$

Para que el sistema obedezca la Segunda Ley:

$$L_{\mu\mu} L_{\Phi\Phi} \geq L_{\mu\Phi}^2 \quad (9)$$

Si conocemos la conductividad del material aislante y el coeficiente de difusión de la especie que se difunde dentro de él para ciertos valores de campo, en el modelo podemos estimar la producción de entropía mediante la ecuación (6).

Para evaluar la formación de caminos que se generan en el proceso de envejecimiento y pre-ruptura, utilizaremos el conocido modelo de ruptura dieléctrica (DBM, por sus siglas en inglés *Dielectric Breakdown Model*), aprovechando la analogía existente entre la estructura de árboles eléctricos y la estructura predicha por el modelo. El modelo DBM en este trabajo es una herramienta útil que nos permite contar el número de ramas que componen el árbol eléctrico. Además, el modelo DBM calcula el campo local dentro del dieléctrico, que es consistente con la teoría lineal de la termodinámica de no equilibrio [20], [21].

El modelo utilizado es un retículo bidimensional (Figura 1), en el que los lados opuestos representan los dos electrodos. La ruptura comienza en un punto de un campo local alto y esto generalmente se atribuye a inclusiones conductoras eléctricas [2]. Las inclusiones conductoras están representadas por impurezas en la interfaz electrodo-dieléctrico, o como se ha mencionado, atribuidas a la presencia de humedad en la interfaz conductor-dieléctrico.

Las ecuaciones del modelo detalladas en [22] son:

$$\nabla^2 \Phi = 0 \quad (10)$$

$$\Phi_{i,k} = (\Phi_{i+1,k} + \Phi_{i-1,k} + \Phi_{i,k-1} + \Phi_{i,k+1})/4 \quad (11)$$

$$P_{i,k \rightarrow i',k'} = \Phi_{i',k'}^\eta / \sum_j \Phi_{j,i}^\eta \quad (12)$$

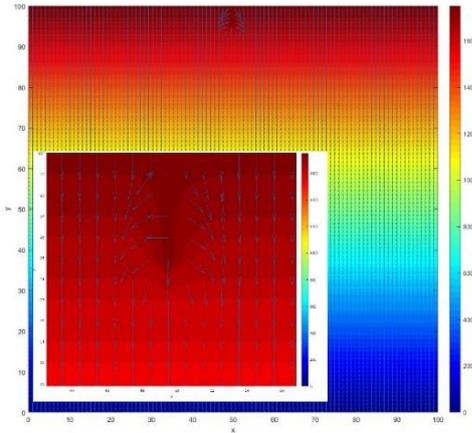


Figura 1: Simulación del proceso de ruptura en 2D. La ampliación corresponde a la zona de inicio de descarga

Al aplicar el modelo según las ecuaciones (10), (11) y (12), se obtienen varios resultados relacionados con la estructura fractal del árbol eléctrico [21], [22], [23].

Si se realiza la composición de las gráficas derivadas del modelo DBM, utilizando η como parámetro, se obtiene la relación entre el número de ramas (Br) y la intensidad del campo eléctrico (E). Es fácil ver (Figura 2) que el número de ramas disminuye a medida que aumenta la intensidad del campo eléctrico aplicado.

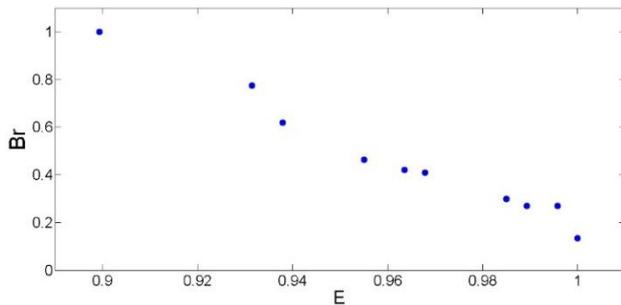


Figura 2: Número de ramas en función del campo eléctrico.

En este trabajo, para considerar el efecto de la concentración de humedad sobre la producción de entropía, asumimos que todas las ramas (Nb) creadas contienen agua, que se difunde impulsada por una fuerza relacionada con la ley de Fick. Las ramas (Nb) son el camino de difusión aleatoria de la materia que se transporta dentro de ellas, en nuestro caso particular: la difusión del agua.

Entonces, la aproximación $-1/T \nabla \mu \approx -1/T Nb$ se toma como válida. Donde: $Nb = C Br$, siendo C un factor que incluye el número de portadores de carga dentro de los canales (en el DBM, modelo sin presencia de humedad: $C = 1$ y $Nb = Br$).

Aquí debemos señalar que el modelo DBM sirve como herramienta auxiliar para cuantificar el número de ramas generadas, ya que esta estructura fractal es consistente con la forma de una descarga real.

En otras palabras, analizamos el efecto de acoplamiento: campo aplicado - humedad. Buscamos encontrar cómo este acoplamiento influye en la producción de entropía, calculada por la ecuación (15).

RESULTADOS

Combinando los valores del campo (para cada valor de número de las ramas Nb), podemos construir las ecuaciones del modelo a simular, modificando las ecuaciones (4) y (5) con las ecuaciones (7) y (8):

$$J_{\mu} = T\mathcal{D}\left(\frac{1}{T} Nb\right) + L_{\mu\Phi}\left(\frac{E}{T}\right) \quad (13)$$

$$J_{\Phi} = L_{\Phi\mu}\left(\frac{1}{T} Nb\right) + T\kappa\left(\frac{E}{T}\right) \quad (14)$$

En las ecuaciones (13) y (14), el cambio de signo en Nb se debe a que consideramos una concentración de materia aproximadamente igual al número de ramas que aumenta y es un número positivo.

Combinando las ecuaciones (6) con (13) y (14), obtenemos la expresión para la producción de entropía del sistema:

$$\sigma = T\mathcal{D}\left(\frac{1}{T} Nb\right)^2 + T\kappa\left(\frac{E}{T}\right)^2 + 2L_{\mu\Phi}\left(\frac{E}{T}\right)\left(\frac{1}{T} Nb\right) \quad (15)$$

La Figura 3 muestra las gráficas normalizadas de los resultados obtenidos correspondientes a σ en función de la intensidad del campo eléctrico E , para el modelo en el que no se tiene en cuenta el efecto de acoplamiento (Figura 3-a) y para el modelo en el que el acoplamiento se tiene en cuenta (Figura 3-b).

En la Figura 3, se puede ver que la producción de entropía en el modelo con acoplamiento es significativamente mayor que en el modelo sin acoplamiento. Esto muestra que la presencia de humedad en la región interfacial modifica sustancialmente las características de un material dieléctrico sólido en el proceso de pre-ruptura. Además, como se esperaba de las ecuaciones lineales propuestas, la producción de entropía aumenta con el campo eléctrico.

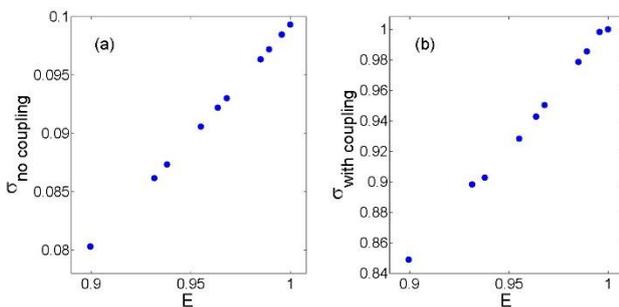


Figura 3: Producción de entropía σ en función de la intensidad del campo Eléctrico: (a) sin acoplamiento y (b) con acoplamiento.

Si tenemos en cuenta el efecto del acoplamiento a través del coeficiente $L\mu\phi$, la entropía producida en el sistema evoluciona como se puede ver en la Figura 4. Como se esperaba al aumentar el coeficiente de acoplamiento, $L\mu\phi$ la entropía generada σ es mayor para una E dada.

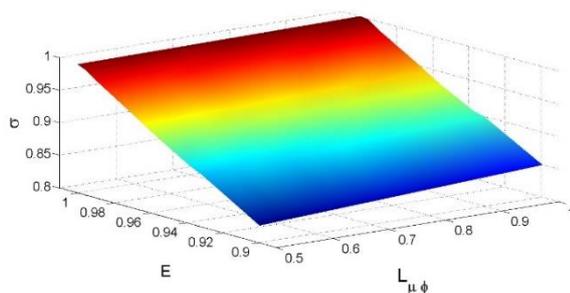


Figura 4: Producción de entropía σ en función del campo Eléctrico y del coeficiente de acoplamiento $L\mu\phi$.

CONCLUSIONES

El presente trabajo constituye un primer intento por establecer un puente entre los fenómenos estudiados separadamente la presencia de humedad y el efecto del campo eléctrico, pero sin

duda relacionados; cuyo objetivo es el estudio de los procesos de envejecimiento, pre-ruptura y degradación de dieléctricos sólidos. En nuestro modelo, este puente se ha construido utilizando el formalismo de la termodinámica de no equilibrio.

Como vínculo del acoplamiento de efectos resulta la producción de entropía o función de disipación, cuyo crecimiento es evidente a medida que aumentan los coeficientes de acoplamiento L_{ij} y el campo eléctrico.

Podemos concluir que la Termodinámica de No-Equilibrio ofrece una excelente explicación desde el punto de vista fenomenológico de los efectos simultáneos que dan lugar a la pre-ruptura dieléctrica, y permite la construcción de modelos para intentar predecir el comportamiento y vida media de los sistemas bajo estudio.

Los resultados físicos del modelo DBM puramente eléctrico, se relacionaron con las características de un sistema real. Se ha incluido el efecto de la humedad en el material aislante, considerando que la materia se difunde dentro de las ramas del árbol eléctrico, según la Ley de Fick.

AGRADECIMIENTOS

Los autores agradecen a la Universidad de Buenos Aires por la beca al Proyecto: "Aplicaciones de la Termodinámica de Desequilibrio al desarrollo de modelos de interés en Ingeniería Química e Ingeniería de Materiales".

REFERENCIAS

- [1] L. A. Dissado, "The theory of everything in the electrical breakdown of polymeric dielectrics,"IEEE 2nd International Conference on Di-electrics (ICD), 2018.
- [2] —, "Understanding electrical trees in solids: From experiments totheory,"IEEE Trans: Dielectr. Electr. Insul., vol. 9, pp. 483–497, 2002.
- [3] K. S. Bromley, L. A. Dissado, and J. C. Fothergill, "Local field calculations for electrical trees in point-plane geometry,"IEEE AnnualReport Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena,Minneapolis, MN, USA, vol. 1, p. 304307, 1997.
- [4] A. Eccles, L. A. Dissado, J. C. Fothergill, and J. A. Houlgreave, "Watertree inception

- experimental support for a mechanical/chemical/electrical theory,"Sixth International Conference on Dielectric Materials, Measurements and Applications, Manchester, UK, pp. 294–297, 1992.
- [5] D. García, B. García, and J. Burgos, "Determination of moisture diffusion coefficient for oil-impregnated kraft-paper insulation," *Electrical Power and Energy Systems*, vol. 53, p. 279–286, 2013.
- [6] Z. Daning, L. Guanwei, L. Yang, M. Haibao, and Z. Guanjun, "Effect of radial moisture distribution on frequency domain dielectric response of oil-polymer insulation bushing," *Polymers* 2020 MDPI, vol. 12.
- [7] S. Iwata, "Influence of humidity treatment on electrical tree propagation in epoxy resin," *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 23, no. 5, pp. 2556–2561, October 2016.
- [8] J. C. Fothergill, "A critical review of water treeing mechanisms," *IEE Colloquium on Recent Advances in the Understanding of Water Trees*, London - UK, 1993.
- [9] A. Abdelmalik and et al, "Charge transport in thermally aged paper impregnated with natural ester oil," *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 21, no. 5, October 2014.
- [10] Cigre, "Moisture measurement and assessment in transformer insulation-evaluation of chemical methods and moisture capacitive sensors," *WGD1.52*, Paris, France - ISBN: 978-2-85873-443-6 - August 2018.
- [11] K. Zhou, K. Li, Y. He, and G. Zhu, "A new insight into the influence of mechanical orientation on water tree propagation in abnormal water tree shapes," *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 24, no. 6, pp. 3878–3886, 2017.
- [12] M. F. Rahman, B. N. Rao, and P. M. Nirgude, "Influence of moisture on partial discharge characteristics of oil impregnated pressboard under non-uniform field," *Proc. IEEE Int. Sympos. High Voltage Eng.*, pp. 1–6, 2017.
- [13] Cigre, "Transformer reliability survey," *WG A2.37*, Paris, France - ISBN: 978-2-85873-346-0 - December 2015.
- [14] J. O'Dwyer, "The Theory of Electrical Conduction and Breakdown in Solid Dielectrics. Clarendon Press: Oxford UK," 1973.
- [15] L. A. Dissado and J. Fothergill, "Electrical degradation and breakdown in polymers," *IEE Materials Devices* (Materials, Circuits and Devices), May 1992.
- [16] S. De Groot and P. Mazur, *Non-Equilibrium Thermodynamics*, Dover Publications, Inc, New York 1984.
- [17] I. Prigogine, *Introduction to Thermodynamics of Irreversible Processes*, Interscience Publisher, New York, third edition, 1967.
- [18] I. Prigogine and D. Kondepudi, "Modern Thermodynamics. From Heat Engines to Dissipative Structures" John Wiley & Sons, 1998.
- [19] S. Kjelstrup, D. Bedeaux, E. Johannessen, J. Gross *Non Equilibrium Thermodynamics for Engineers* World Scientific Publishing Co. Second Edition, 2017.
- [20] L. Niemeyer, L. Pietronero, and H. J. Wiesmann, "Fractal dimension of dielectric breakdown," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 52, 1984.
- [21] K. Kudo, "Fractal analysis of electrical trees," *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, vol. 5, no. 5, pp. 713–727, Oct. 1998.
- [22] L. Enciso, M. Gun, M. S. Ruiz, and A. C. Razzitte, "Entropy in multi-fractal non – equilibrium structures of dielectric breakdown," *Journal of Statistical Mechanics Theory and Experiment*, vol. 9, (094011) Sept 2019.
- [23] H. J. Wiesmann and H. R. Zeller, "A fractal model of dielectric breakdown and pre-breakdown in solid dielectrics." *Conference on Elect Insulation and Dielectric Phenomena - Annual Report*, pp. 385–390, 1986.