

**ЗАВИСИМОСТЬ РАДИАЦИОННОЙ ЭЛЕКТРОПРОВОДНОСТИ
ОТ НАПРЯЖЕННОСТИ ВНЕШНЕГО ЭЛЕКТРИЧЕСКОГО ПОЛЯ
В ПОЛИМЕРНЫХ ДИЭЛЕКТРИКАХ**

B. P. Сичкарь, A. P. Тютнев, C. Э. Вайсберг

Известно, что радиационная электропроводность (электропроводность, наведенная ионизирующим излучением) полимеров хорошо описывается моделью Роуза — Фаулера, использующей электронно-дырочный механизм переноса с захватом носителей тока многочисленными ловушками, непрерывно распределенными по энергии в запрещенной зоне диэлектрика [1]. Эта модель дает следующее выражение для радиационной электропроводности σ_p

$$\sigma_p = q\mu \left(\frac{GI}{K_p N} \right)^{\Delta} N_c^{1-\Delta}, \quad (1)$$

где q — заряд носителя, μ — подвижность, G — выход свободных носителей на единицу поглощенной дозы излучения, I — мощность дозы, K_p — константа рекомбинации, N — кажущаяся концентрация ловушек всех глубин, $N_c = 2,5 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$ — эффективная плотность состояний в зоне проводимости диэлектрика вблизи ее дна, Δ — параметр, зависящий от характера распределения ловушек по глубине и от температуры ($0,5 < \Delta < 1$).

В связи с этой моделью возникает вопрос о зависимости электропроводности полимерных диэлектриков от напряженности электрического поля E . Выражение (1) не содержит такую зависимость в явном виде. Однако по крайней мере две величины G и N , входящие в выражение, могут зависеть от E . Действительно, электрическое поле, если оно по энергии воздействия на носитель тока становится соизмеримым с глубиной ловушек, должно увеличивать выход носителей из ловушек, что эквивалентно уменьшению кажущейся концентрации ловушек. По Пулю — Френкелю [2], такой эффект выражается зависимостью электропроводности от напряженности электрического поля

$$\sigma \approx \exp(bE) \quad (2)$$

или

$$\sigma \approx \exp \sqrt{\frac{q^3 E}{\pi \epsilon}} \frac{1}{kT},$$

где ϵ — высокочастотная диэлектрическая проницаемость, k — константа Больцмана.

С другой стороны, по теории Онзагера [3] должна существовать зависимость выхода радиационно генерируемых свободных носителей тока G от напряженности электрического поля за счет уменьшения вероятности рекомбинации изолированных пар противоположных зарядов во внешнем электрическом поле. При этом

$$G = G_0 (1 + \alpha E), \quad (3)$$

где G_0 — радиационный выход свободных носителей при отсутствии электрического поля; $\alpha = q^3 / 2\epsilon_{cr} k^2 T^2$.

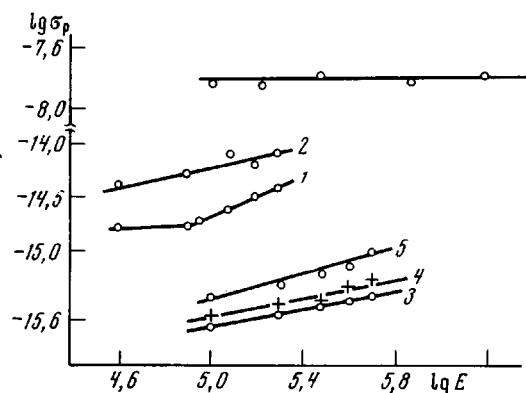
Для выяснения причины возможной зависимости σ_p от E нами исследована радиационная электропроводность при различных напряженностях электрического поля для ряда полимеров: ПЭ низкой и высокой плотности (ПЭНП и ПЭВП), ПС, ПТФЭ и ПЭТФ. В ряде случаев варьировали температуру. Для ПЭНП и ПЭТФ измерения были проведены также и при одиночном импульсном воздействии радиации высокой мощности дозы (электроны $1,4 \text{ МэВ}$, длительность импульса $0,5 \text{ мк.сек}$, мощность дозы $\sim 10^{10} \text{ рад/сек}$). Все измерения проведены в вакууме $\sim 3 \cdot 10^{-2} \text{ тор}$ с учетом тока комптоновских электронов. Погрешность измерения не превышала $\pm 15\%$.

Таблица 1

Значения коэффициента $\beta(\sigma_p \sim E^\beta)$ и $\Delta(\sigma_p \sim E^\Delta)$ для некоторых полимерных материалов

Материал	T, °C	Коэффициент β	$E \cdot 10^{-5}$, е/см	Δ
ПЭВП	24	0,70±0,04	0,68-4,5	0,81±0,02
ПТФЭ	24	0,52±0,05	0,68-4,5	—
ПЭТФ	24	0,75±0,03	0,68-4,5	0,60±0,02
ПЭНП	24	0,83±0,03	0,098-3,0	—
	61	0,43±0,05	—	0,67±0,03
ПС	24	0,37±0,05	1-5	—
	63	0,37±0,05	1-5	—

Полученные результаты приведены на рисунке и в табл. 1, где приведены также значения коэффициента Δ (уравнение (1)) при разных напряженностях внешнего электрического поля. Из рисунка видно, что при непрерывном воздействии радиации имеет место существенная зависимость σ_p от E , тогда как при импульсном воздействии такая зависимость в том же интервале E отсутствует. Если причиной зависимости σ_p от E был бы эффект Пуля — Френкеля, то зависимость должна была бы существовать и в радиационном импульсе (и даже еще сильная, так как



Зависимость радиационной электропроводности σ_p от напряженности внешнего электрического поля E в логарифмическом масштабе для материалов:

1, 2 — ПЭНП при 24 и 61°С соответственно, 3, 4 — ПС при 24 и 63°С соответственно, 5 — ПТФЭ при 24°С, $I=10^{10}$ рад/сек, 6 — ПЭТФ при 24°С, $I=10^{10}$ рад/сек ($I=25$ рад/сек) (^{60}Co ; 6 — в случае действия непрерывного γ -облучения ^{60}Co ; 6 — в случае действия импульсного ($t_{имп}=0,5$ мк-сек) электронного ($E_e=1,4$ МэВ) облучения)

при кратковременном воздействии облучения основную роль будут играть мелкие ловушки). В случае же онзагеровского механизма увеличение выхода свободных носителей тока при действии внешнего электрического поля в импульсе радиации может не наблюдаться, так как при кратковременном импульсе основная компонента (мгновенная) электропроводности [4] может быть обусловлена носителями, образовавшимися пе в изолированных парах (сферические шпоры), а в короткоживущих трещинах [5, 6] с большой плотностью ионизации, в которых выход свободных носителей близок из-за перекрывания сфер кулоновского притяжения соседних ионов к максимальному, т. е. к выходу начальной ионизации [7].

Количественная проверка экспериментальной зависимости σ_p от E также свидетельствует в пользу механизма Онзагера, так как оценка зна-

Таблица 2

Численные значения некоторых параметров (Мощность дозы 25 рад/сек)

Материал	$T, ^\circ\text{K}$	$\mu / (K_p N)^\Delta$	G_0	$\alpha_{\text{эксп}} \cdot 10^{-4}$	$\alpha_{\text{теор}} \cdot 10^{-4}$
ПЭИП ($\epsilon_{\text{ср}}=2,35$)	299	$1,6 \cdot 10^{-11}$	0,18	0,36	0,485
	334		0,23	0,24	0,374
ПС ($\epsilon_{\text{ср}}=2,56$)	299	$6,7 \cdot 10^{-11}$	0,09	0,13	0,43
	336		0,09	0,08	0,330
ПЭТФ ($\epsilon_{\text{ср}}=3,0$)	299	$2,2 \cdot 10^{-12}$	0,05	0,31	0,37

чения коэффициента $\sqrt{q^3/\pi e} \cdot 1/kT$ (по Френкелю), характеризующего наклон линии $\lg \sigma_p = f(\lg E)$, дает примерно на порядок большие значения, чем следует из эксперимента. С другой стороны, степенной характер зависимости σ_p от E , полученный экспериментально (рисунок), согласуется с механизмом Онзагера, при этом коэффициент β , характеризующий наклон прямых линий в координатах $\lg \sigma_p = f(\lg E)$, должен выражаться как

$$\beta = \frac{\Delta}{E_2} \lg \frac{1+\alpha E_2}{1+\alpha E_1} - \lg \frac{E_2}{E_1} \quad (4)$$

Оценка коэффициента α по Онзагеру $\alpha = q^3/2\epsilon_{\text{ср}}k^2T^2$ дает значение коэффициента (уравнение (4)), хорошо совпадающее с экспериментально полученными (табл. 1).

В табл. 2 приведены значения выхода свободных носителей G_0 , вычисленные из уравнения (1) при определенных значениях параметра $\mu / (K_p N)^\Delta$, которые получены на основании оценок, имеющихся в литературе [4, 8] для $K_p = 10^{-7} - 10^{-8} \text{ см}^3/\text{сек}$ и $N = 10^{18} - 10^{20} \text{ см}^{-3}$ [$(\mu = K_p \epsilon / 4\pi q)$ в некоторых полимерных материалах]. В табл. 2 также приведены значения коэффициента $\alpha_{\text{эксп}}$, вычисленные из уравнения (4), и коэффициента $\alpha_{\text{теор}}$ (по Онзагеру). Видно, что полученные для исследованных полимерных материалов значения выхода G_0 хорошо согласуются с литературными. Значения коэффициентов $\alpha_{\text{теор}}$ и $\alpha_{\text{эксп}}$, а также их относительные изменения при увеличении температуры на 38°C близки.

Научно-исследовательский физико-химический институт им. Л. Я. Карпова

Поступила в редакцию
27 XII 1974

ЛИТЕРАТУРА

1. J. F. Fowler, Proc. Roy. Soc., A236, 464, 1956.
2. R. M. Hill, Phil. Mag., 23, 59, 1971.
3. L. Onsager, Phys. Rev., 54, 554, 1938.
4. E. H. Martin, J. Hirsch, J. Appl. Phys., 43, 1001, 1972.
5. A. Mozumder, J. L. Maqee, Radiation Res., 28, 203, 1966.
6. D. E. Lea, Actions of radiations on living cells, Cambridge, 1955.
7. А. М. Райцымлинг, В. М. Моралев, Ю. Д. Цветков, Химия высоких энергий, 7, 125, 1973; C. D. Jonah, E. J. Hart, M. S. Matheson, J. Phys. Chem., 77, 1838, 1973.
8. Радиационная химия полимеров, «Наука», 1973, стр. 376.