

УДК 541.64:539.199:537.3

ПОДВИЖНОСТЬ ИЗБЫТОЧНЫХ НОСИТЕЛЕЙ ЗАРЯДА В ПОЛИЭТИЛЕНЕ НИЗКОЙ ПЛОТНОСТИ¹

© 2004 г. А. П. Тютнев*, В. С. Саенко*, Е. Д. Пожидаев*, В. А. Колесников**

*Московский государственный институт электроники и математики
109028 Москва, Трехсвятительский пер., 3/12

** Институт электрохимии им. А.Н. Фрумкина Российской академии наук
119991 Москва, Ленинский пр., 31

Поступила в редакцию 07.07.2003 г.
Принята в печать 28.01.2004 г.

Проведены сравнительные испытания промышленного ПЭНП (пленка толщиной 20 мкм) методами нестационарной радиационной электропроводности и времени пролета при повышенных температурах (базовое значение 353 К). Показано, что транспорт носителей заряда в испытанном полимере является биполярным при практическом равенстве параметров переноса дырок и электронов. Появление плато на кривой дырочного переходного тока во времяпролетном эксперименте не обусловлено установлением в полимере квазиравновесного режима транспорта дырок, а предположительно связано с нормальным (гауссовым) транспортом небольшой группы положительно заряженных частиц. Точную природу этих частиц установить не удалось. Перенос электронов и дырок остается по-прежнему неравновесным (дисперсионным) во всем диапазоне времен наблюдения (по крайней мере, до нескольких секунд). Пролет дырок и электронов надежно регистрируется при временах порядка 200 мс и происходит в полном соответствии с законами дисперсионного транспорта (напряженность электрического поля 5×10^7 В/м). На этапе пролета дисперсионный параметр дырок (0.5–0.6) несколько больше, чем электронов (0.3–0.4).

ВВЕДЕНИЕ

Полиэтилен является одним из лучших технических диэлектриков. При комнатной температуре аморфная фаза полимера находится в высокоэластическом состоянии. Спектр молекулярных движений в ПЭ хорошо изучен [1, 2].

Несмотря на большой объем исследований, посвященных изучению транспорта радиационно-генерированных носителей заряда (электронов и дырок) в этом полимере, до сих пор остаются вопросы, требующие своего разрешения. Так, по-прежнему неясно, является ли транспорт носителей заряда в ПЭ действительно биполярным, поскольку в большинстве остальных полимеров с отрицательным сродством к электрону, таких как ПС, поливинилкарбазол и, конечно же, ПТФЭ, подвижность дырок на несколько порядков выше, чем электронов [3]. Далее, природа плато, на-

блюдаемого на времяпролетных кривых дырочного типа при повышенных температурах (а в ПЭ марки Alkathen и при комнатной [4]), до сих пор остается дискуссионной.

Настоящая работа посвящена всестороннему изучению подвижности носителей заряда в ПЭНП в области повышенных температур, в том числе установлению природы плато на времяпролетных кривых дырочного типа.

МЕТОДИКА ИСПЫТАНИЙ

Для проведения испытаний использована электронно-лучевая установка ЭЛА-50, позволяющая получать одиночные импульсы ускоренных электронов, включая режим непрерывного облучения. Параметры установки: длительность прямоугольных импульсов излучения 10 мкс–1 мс при длительности фронтов 2 мкс; ток в пучке до 3.0 мА; энергия ускоренных электронов ~3–50 кэВ. Остаточное давление в рабочей камере установки, в которой располагается измерительная ячейка с системой терmostатирования, порядка 10^{-2} Па.

¹ Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (код проекта 01-03-32124).

E-mail: fit@miem.edu.ru (Тютнев Андрей Павлович).

Переходный ток в образце полимера под напряжением (до ± 1.2 кВ) как в процессе импульсного облучения, так и после его окончания измеряли в токовом режиме, когда постоянная времени измерения RC была много меньше характерного времени наблюдения. Дозиметрию пучка проводили с помощью цилиндра Фарадея. Диаметр коллиматора непосредственно на входе в измерительную ячейку составлял 8.5 или 12 мм.

Для регистрации измеряемого сигнала использовали современное универсальное устройство для ввода, вывода и обработки аналоговой и цифровой информации на персональном компьютере [5], позволяющее регистрировать за один импульс излучения участок кривой переходного тока, охватывающий до четырех порядков по времени. Типичный объем файла, фиксирующего кривую переходного тока в интервале времен 10 мкс–1 с, составляет 150 кБ.

Основная задача при планировании и постановке эксперимента заключается в максимально возможном исключении рекомбинационных, дозовых и поляризационных эффектов, сопровождающих прохождение генерированных зарядов через образец полимера. Проведение испытаний в режиме малого сигнала при минимально возможном количестве импульсов и достаточная длительность паузы между двумя последовательными импульсами излучения позволяют свести возможные систематические ошибки к минимуму.

Принята следующая последовательность проведения испытаний. Из общего числа испытанных образцов (30 штук) 25 образцов прошли предварительные испытания для установления общих закономерностей электронного транспорта в исследуемом полимере с проведением их отжига и контроля текущего состояния. И только на пяти оставшихся образцах выполнены контрольные испытания с общим набором дозы не более 20 Гр, не повлиявший на свойства полимера.

Общая процедура проведения испытаний состояла в следующем. Сначала выполнялись измерения по методу времени пролета, затем то же, но при однородном облучении, и только затем фиксировали его нестационарную радиационную электропроводность. В каждом случае использовали два импульса излучения: первый – для снятия кривой спада тока в интервале времен 1 мс–1 с (в дальней области, наиболее чувствительной к би-

молекулярной рекомбинации и дозным эффектам), а второй – в интервале 10 мкс–10 мс. Интервал перекрытия кривых использовали для сшивания двух участков в единую кривую. Впоследствии эти данные служили эталоном сравнения для определения степени старения образца и его состояния после отжига (на этапе предварительных испытаний).

Для проведения испытаний выбрана промышленная пленка ПЭНП толщиной 20 мкм, которая является объектом наших исследований на протяжении последних 20 лет. Диаметр образцов 40 мм. Электроды диаметром 32 или 26 мм наносили термическим распылением алюминия в вакууме. Испытания выполняли при температурах до 363 К. В качестве стандартных условий приняты температура 353 К и напряженность электрического поля $F_0 = 5 \times 10^7$ В/м. В таких условиях электропроводность ПЭНП составила 5×10^{-12} Ом⁻¹ м⁻¹ (максвелловское время релаксации 4 с), поэтому область регистрации времепролетных кривых не должна превышать несколько секунд.

ОБЩИЕ ПОЛОЖЕНИЯ

Ранее показано [4], что достаточно удовлетворительное описание радиационной электропроводности и транспорта основных носителей заряда (дырок) ПЭНП достигается при использовании обобщенной модели Роуза–Фаулера–Вайсберга [6, 7]. Экстраполируя от комнатной температуры значения частотного фактора $v_0 = 3 \times 10^4$ с⁻¹ (энергия активации 0.55 эВ), среднего дрейфового смещения квазисвободных дырок (основных носителей заряда) до захвата $\mu_0 \tau_0 = 3 \times 10^{-16}$ м²/В ($\sim 1/T$) и дисперсионного параметра $\alpha = 0.5$ ($\alpha \propto T$), находим, что при 353 К ожидаемые значения параметров модели составят: $\alpha = 0.6$, $v_0 = 1.2 \times 10^6$ с⁻¹, $\mu_0 \tau_0 = 2.5 \times 10^{-16}$ м²/В.

Согласно работе [4] в стандартных условиях испытаний характерное время геминальной рекомбинации $t_{sd} = 0.86$ мс, время бимолекулярной рекомбинации $t_r \approx 0.1$ с для дозы за импульс 1 Гр (радиационно-химический выход свободных зарядов $G_f = 2.6$ на 100 эВ поглощенной энергии) и, наконец, время пролета \hat{t}_{dr} при однородном облучении образца толщиной $h = 20$ мкм равно ~ 27 мс (рассматривается дырочный транспорт).

Естественно, что указанный подход исключает из рассмотрения транспорт электронов, а в во-

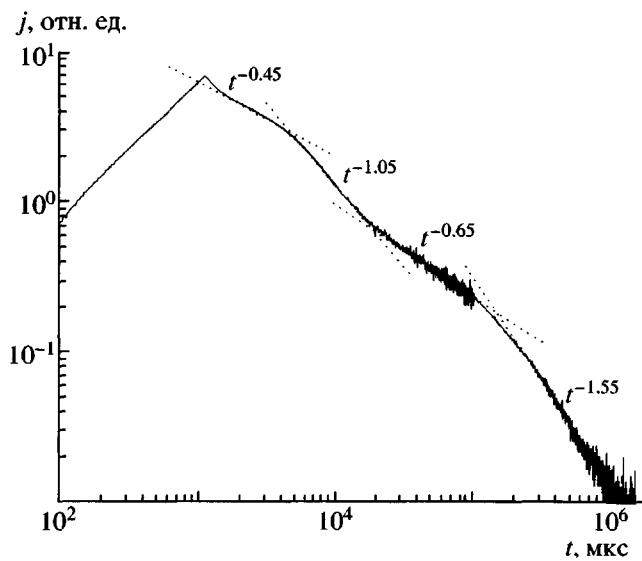


Рис. 1. Кривая переходного тока нестационарной радиационной электропроводности, измеренная в режиме малого сигнала за два импульса излучения длительностью 1 мс с дозой 0.7 Гр в первом (при $t < 0.1$ с) и 7 Гр во втором (в интервале времени 0.1–1 с) импульсе. Сшивка участков кривой произведена в области времен от 10 до 100 мс. Эффекты бимолекулярной рекомбинации отсутствуют во всем временном интервале измерений.

просе о природе плато этот подход базируется на учете приповерхностных слоев с резко отличными от объема свойствами переноса [4, 8]. Если вопрос о подвижности электронов решается просто проведением дополнительных времяпролетных измерений, то для решения второй проблемы пришлось усовершенствовать методологию проведения испытаний. Предстояло выяснить, является ли плато следствием пролета образца некоторой немногочисленной группой положительно заряженных частиц (“ионная” гипотеза), отличных от дырок (этот факт достаточно надежно установлен в работе [4]), или же его формирование действительно обусловлено влиянием приповерхностных ловушек, а, возможно, и особенностями их энергетического распределения уже в объеме полимера.

В ходе реализации этой программы было выполнено большое число измерений, выявивших довольно существенный разброс времяпролетных характеристик от образца к образцу. При изложении экспериментальных результатов основное внимание будет уделено хорошо воспроизведенным и наиболее типичным результатам.

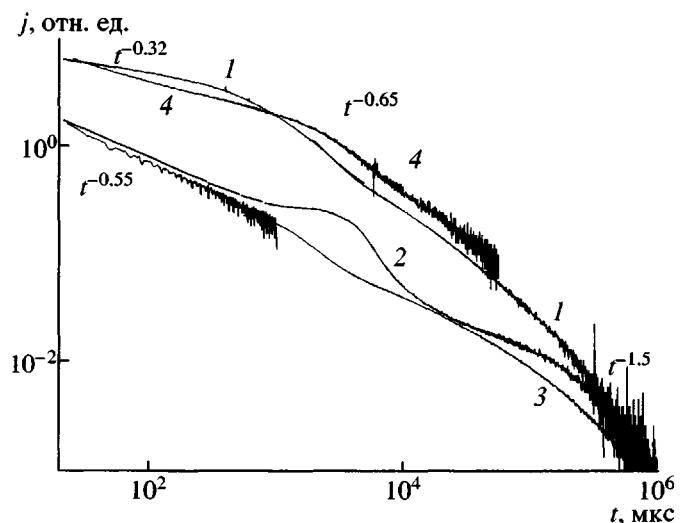


Рис. 2. Кривые переходного тока, полученные методом нестационарной радиационной электропроводности (1, 4) и времени пролета (2 – для дырок, 3 – для электронов) для двух (1–3) и одного (4) импульсов излучения длительностью 20 мкс. Плотность тока пучка быстрых электронов 30 мкА/см^2 во всех случаях. Для электронов с энергией 50 кэВ это соответствует дозе за импульс 7 Гр. Кривая 4 относится к температуре 363 К. Моменты сшивки на кривых 1–3 составляют соответственно 4.7, 3.4 и 0.95 мс.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

В интервале исследованных температур как нестационарная радиационная электропроводность в ПЭВД, так и времяпролетные кривые при их регистрации в области времен наблюдения до 1 с оказались практически нечувствительными к дозе предварительного облучения до 500 Гр, что значительно упростило проведение испытаний.

На рис. 1 и 2 представлены основные экспериментальные результаты, полученные в стандартных условиях по обеим методикам измерений. Видно, что все кривые имеют сложную форму и для своего объяснения требуют детального рассмотрения.

Прежде всего отметим, что в основных своих чертах эти кривые согласуются с выводами изложенной выше теории. Так, расчетное значение приведенной радиационной электропроводности K , в конце импульса излучения длительностью 1 мс ($2.3 \times 10^{-13} \text{ Ф/м Гр}$) оказалось близким к измеренному $3 \times 10^{-13} \text{ Ф/м Гр}$ ($\pm 30\%$), а предсказываемый теорией пролет носителей заряда при $t > 0.2$ с действительно наблюдается, о чем свидетельст-

вует спад переходного тока по закону $t^{-1.5}$ в этой области времен (рис. 1). И, наконец, характер спада тока нестационарной радиационной электропроводности по степенному закону $t^{-0.32}$ в области коротких времен (от 20 до 700 мкс) после прохождения импульса электронов длительностью 20 мкс (рис. 2) опять же хорошо согласуется с теоретическим прогнозом. Точный ход кривой переходного тока сразу после прохождения импульса излучения не анализировали в связи с ограничениями по времени разрешения измерительной системы (не менее 5 мкс).

Мгновенная компонента радиационной электропроводности по-прежнему сохранила значение $0.6 \times 10^{-14} \text{ Ф/м Гр}$ ($\pm 30\%$), регистрируемое при пониженных (243 К) и комнатной температурах.

При временах наблюдения до 0.1 с измерения нестационарной радиационной электропроводности проводили в режиме малого сигнала, и только для детального исследования ее хода во временном интервале 0.3–5 с использовали режим большого сигнала. Именно переход к режиму большого сигнала позволил зарегистрировать рекордный по протяженности спад переходного тока в указанном интервале времен более чем в 100 раз по закону $t^{-1.55}$ (рис. 1). Этот результат показывает, что снижение тока из-за выноса дырок на электроды не лимитируется присутствием электронов (неосновных носителей заряда), подтверждая тем самым достаточно эффективный выход и электронов на электроды.

Времяпролетные измерения действительно показали, что в области времен от 10 мс и больше, когда вклад в ток дают носители заряда только одного знака (в зависимости от полярности приложенного напряжения), регистрируемые сигналы практически совпадают, и только с началом пролета они несколько расходятся (рис. 2). Закон спада дырочного тока $t^{-1.5}$ несколько круче электронного ($t^{-1.35}$). Эти наблюдения свидетельствуют в пользу биполярного транспорта в ПЭНП с приблизительно равными параметрами переноса дырок и электронов.

Для понимания более тонких особенностей кривых переходного тока необходимо разобраться в вопросе о природе плато, – наиболее характерного свойства дырочных времяпролетных кривых (рис. 3). В основных своих чертах (резкий выброс тока, предшествующий образованию пла-

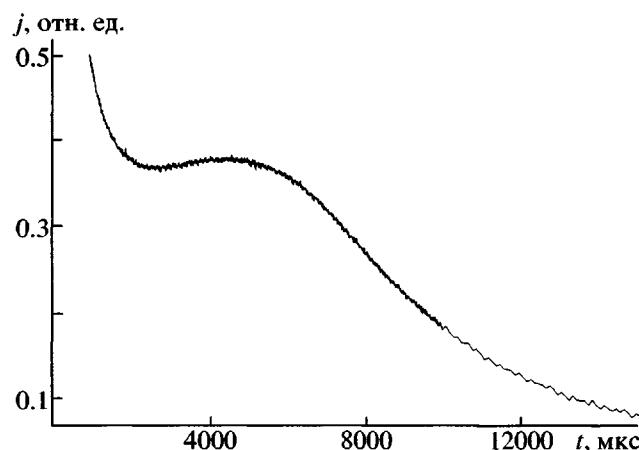


Рис. 3. Общий вид дырочной времяпролетной кривой, представленной в линейном масштабе $j-t$. Температура 353 К, напряженность электрического поля $2.5 \times 10^7 \text{ В/м}$.

то, достаточно крутой спад тока после его окончания и медленная релаксация остаточного тока) форма этих кривых, согласно широко распространенной модели гауссова беспорядка Bässler [9–11], может быть истолкована в качестве доказательства установления квазиравновесного транспорта основных носителей заряда. В нашем случае это определенно не так.

Отметим также, что нарастание тока к концу плато не имеет никакого отношения к эффекту Мэни–Ракави, поскольку времяпролетная кривая зарегистрирована в режиме малого сигнала. При представлении кривых переходного тока в логарифмических координатах (рис. 2) становится очевидным, что исключительное внимание, уделяемое в литературе участку временипролетной кривой в районе плато, является гиперболизацией ситуации. В этой связи отметим следующее.

Усовершенствование методики эксперимента позволило вплотную поставить вопрос о природе плато на дырочной времяпролетной кривой, получившей крайне противоречивое объяснение в наших предыдущих работах [4, 12].

Для выяснения этого вопроса большое значение имеют данные сравнительных времяпролетных эффектов, измеренных по обеим методикам, в области времен плато при существенно различающихся напряженностях электрического поля. Корректная интерпретация полученных данных осложняется наличием перехода на кривой спада

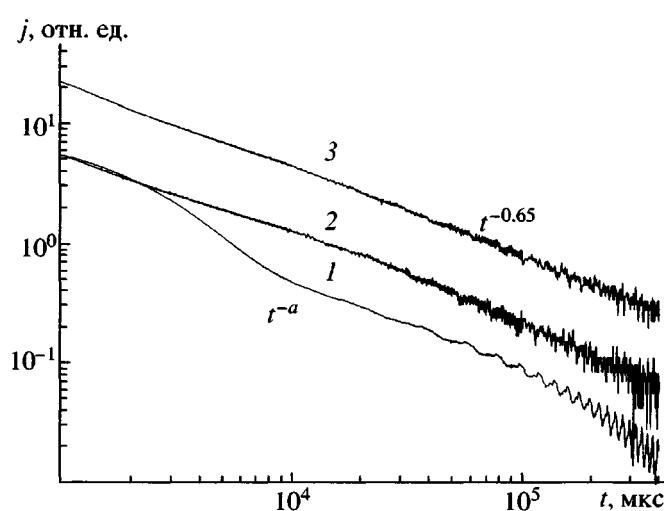


Рис. 4. Кривые переходного тока нестационарной радиационной электропроводности, измеренные при напряженности электрического поля 5×10^7 (1) и 1.25×10^7 В/м (2, 3). Доза за импульс 3 (1, 2) и 10.5 Гр (3), длительность импульсов 20 мкс. Кривые 2 и 3 приведены в масштабе, а кривые 1 и 2 сняты при $t = 1$ мс, для чего кривая 1 уменьшена в 9.2 раза. Все кривые сняты за один импульс каждого. Участок быстрого спада тока (t^{-a} при $a = 0.8-1.3$ для разных образцов) от 3 до 10 мс на кривой 1 отражает выход ионов, равномерно генерированных в объеме образца, на электроды в сильном электрическом поле (на кривых 2 и 3 он отсутствует).

тока нестационарной радиационной электропроводности в районе 1 мс (кривые 1 и 4 на рис. 2), на что указано еще в работе [4].

Дело в том, что спад переходного тока нестационарной радиационной электропроводности, начиная с 0.7 мс, отклоняется от закона $t^{-0.32}$ и быстро переходит на временную зависимость $t^{-0.65}$ (кривые 1, 4 на рис. 2 и 2, 3 на рис. 4). Переход не обусловлен рекомбинацией (увеличение дозы за импульс в 3.5 раза совершенно не затрагивает хода кривой даже при 100 мс, как видно из сравнения кривых 1 и 2 на рис. 4). Не связан он и с пролетными явлениями, поскольку при $F_0 = 1.25 \times 10^7$ В/м длительность плато превышает 20 мс. Таким образом, отмеченный выше переход является внутренним свойством самого полимера. Он обусловлен особенностями энергетического распределения ловушек, подобно тому, как это имеет место в ПЭТФ [13]. Протяженность участка спада по закону $t^{-0.65}$ установить так и не удалось.

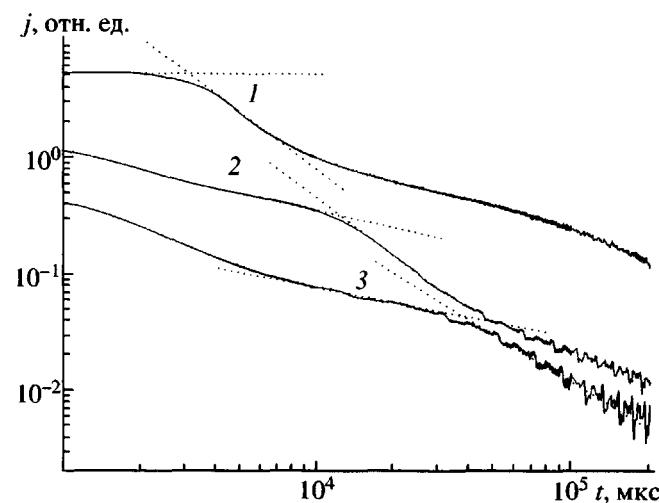


Рис. 5. Времяпролетные кривые для дырок, измеренные при 353 К и напряженности поля 5×10^7 (1), 2.5×10^7 (2) и 1.25×10^7 В/м (3) за один импульс каждая. Пунктирные прямые иллюстрируют процедуру определения времени пролета.

Здесь очень существенным становится разброс данных, столь типичный для времяпролетных эффектов. В сильном электрическом поле наблюдается участок быстрого спада тока t^{-a} при значениях a , изменяющихся в пределах 0.8–1.3 для разных образцов (рис. 4). С понижением поля эффект пропадает. В предыдущей работе этот тонкий эффект ускользнул от нашего внимания [4]. Отмеченный результат является сильным доводом в пользу “ионной” гипотезы. Действительно, указанный эффект может быть связан только с пролетом положительно заряженными частицами (ионами) образца полимера при их начальной генерации однородно по его объему.

Подвижность ионов $\tilde{\mu}$ может быть принята постоянной. Она определяется стандартным образом через длительность плато и обладает следующими свойствами.

Зависимость подвижности $\tilde{\mu}$ от напряженности поля (рис. 5) умеренно не линейна и при уменьшении напряженности поля в 4 раза она снижается в 3.3 раза. В то же время переходной ток на плато падает почти в 110 раз. Отметим также, что в области умеренно слабых полей ($< 2.5 \times 10^7$ В/м) плато заменяется на плечо, все менее и менее различимое на фоне кривой переходного тока (процедура определения времени пролета в данном случае показана на рис. 5).

Энергия активации подвижности $\tilde{\mu}$ достаточно велика, составляя приблизительно 0.9 ± 0.1 эВ (рис. 6). Взятые в совокупности факты, естественно, свидетельствуют против отождествления этих частиц с обычными дырками.

Радиационно-индукционный вариант метода времени пролета [4, 14] имеет одно существенное преимущество по сравнению с его классическим вариантом, использующим фотовозбуждение [14]. Поскольку концентрация радиационно-генерированных зарядов в слое облучения или объеме полимера может быть определена по теории Онзагера, оказывается возможным оценить относительную концентрацию положительных частиц, дрейфующих в объеме с постоянной подвижностью.

Подвижность ионов $\tilde{\mu}$, согласно данным времязадержек измерений составляет $\sim 1.3 \times 10^{-10} \text{ м}^2/\text{В с}$. Зная флюенс электронов пучка и их энергию (типичные значения $2 \times 10^{-5} \text{ Кл}/\text{м}^2$ и 6 кэВ соответственно), можно рассчитать поверхностную плотность генерированных свободных дырок, принимая $G_f = 1.0$ (достаточно консервативная оценка). Далее, поверхностная плотность дрейфующих ионов легко определяется по значению времязадержки пролетного тока на плато. Сравнение этих величин показывает, что количество ионов по крайней мере в 10 раз меньше общего числа генерированных за импульс дырок. С понижением поля или температуры относительная доля ионов еще более уменьшается. Как будет показано ниже, близкие оценки получены и для случая однородного облучения.

Коснемся теперь вопросов, имеющих самое прямое отношение к возможному влиянию приповерхностных ловушек на результаты времязадержек экспериментов.

При самых коротких временах наблюдения после окончания облучения (десятки микросекунд) кривая переходного тока нестационарной радиационной электропроводности хорошо описывается степенной зависимостью $t^{-0.32}$, соответствующей $\alpha = 0.68$. Спад времязадержек кривых заметно круче (рис. 2). Особенно показательны данные для положительной полярности напряжения, когда дырки вытягиваются в объем: в этом случае спад кривой ($t^{-0.55}$) никак не обусловлен выносом положительных носителей заряда

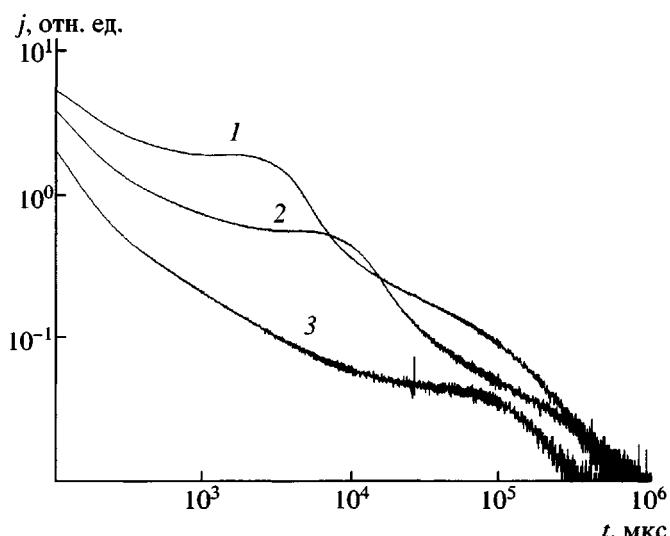


Рис. 6. Времяпролетные кривые для дырок, снятые в электрическом поле $6 \times 10^7 \text{ В/м}$ при 353 (1), 333 (2) и 313 К (3) за один импульс каждого.

(прежде всего ионов) на облучаемый электрод и должен быть связан с влиянием приповерхностных ловушек, так как при объемном характере генерации такое влияние почти нацело исключается. При обратной полярности напряжения данный эффект может быть дополнительно усилен вследствие быстрого выноса ионов на облучаемый электрод. Отсутствие такого влияния в области времен ($t \leq 100 \text{ мкс}$), соответствующих пролету ионами тонкого слоя генерации (0.7 мкм), может быть использовано в качестве дополнительного аргумента в пользу ионной гипотезы.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Рассмотрим теперь прямые следствия гипотезы, постулирующей образование ионов при облучении ПЭНП. В стандартных условиях испытаний подвижность ионов $\tilde{\mu}$ определена с хорошей точностью. Примем также, что в соответствии с полученными экспериментальными результатами значения подвижности дырок и электронов просто равны. Если наше понимание переноса носителей заряда в изучаемом полимере правильно, то теперь мы должны объяснить сложный вид кривых переходного тока, зарегистрированных в эксперименте.

Таким образом, после импульсного воздействия излучения в полимере образуется определен-

ное количество свободных электронов и дырок, дрейфующих в приложенном электрическом поле в режиме сильно неравновесного транспорта, а также незначительная доля (для определенности, 1/10) ионов, движущихся с постоянной подвижностью. Энергетическое распределение ловушек, идентичное для электронов и дырок, не является строго экспоненциальным. Оно обеспечивает снижение эффективной подвижности по закону $t^{-0.32}$ для $t < 700$ мкс, переходящее в зависимость типа $t^{-0.7}$ при больших временах. Отыскание действительного вида энергетического распределения представляет собой достаточно сложную задачу и здесь не будет предпринято (в работе [13] эта задача решена на примере ПЭТФ).

Проделаем несложную оценку. В момент времени 4 мс ток дырок составляет $\sim 1/6$ часть от тока ионов (рис. 6, кривая 1) при концентрации дырок в 10 раз большей, чем самих ионов. Значит, в этот момент времени эффективная подвижность дырок в 60 раз меньше $\bar{\mu}$ и составляет приблизительно только $2 \times 10^{-12} \text{ м}^2/\text{В с}$. Экстраполируя к $t = 10$ мкс, найдем эффективную подвижность дырок $0.5 \times 10^{-10} \text{ м}^2/\text{В с}$, которая лишь в несколько раз меньше ионной. Поэтому не приходится ожидать заметного возмущения в ходе электронной времепролетной кривой в районе 50–200 мкс, связанного с пролетом ионами слоя генерации толщиной всего 0.7 мкм. Как уже отмечалось выше, этот эффект и не наблюдается экспериментально (рис. 2).

Аналогичный эффект для нестационарной радиационной электропроводности должен проявиться в области времен 1–10 мс. К этому моменту времени эффективная подвижность дырок, генерированных в объеме образца, заметно снижается от 8 до 10 раз, как это следует из кривых 1 и 2 на рис. 2. Благодаря этому дополнительное снижение тока к 10 мс в сильном электрическом поле, обусловленное выносом ионов из образца, уже может быть экспериментально обнаружено.

С этих позиций получает объяснение и совершенно необычная форма кривой нестационарной радиационной электропроводности, измеренная в режиме малого сигнала (рис. 1). Начальный спад тока после прохождения импульса соответствует режиму дисперсионного транспорта с $\alpha = 0.68$. Некоторое отличие реально наблюдаемого закона спада $t^{-0.45}$ от теоретического связано с конеч-

ной длительностью импульса, а также с выносом ионов, определяющим дальнейший ход кривой до ~ 20 мс ($t^{-1.05}$). Затем следует участок спада, соответствующий $\alpha = 0.35$, и наконец, послепролетная ветвь переходного тока.

Остановимся теперь более подробно на вопросе о биполярности транспорта в ПЭНП. В нашей предыдущей работе [4] приведены достаточно убедительные доводы в пользу предположения о близости параметров переноса обоих носителей заряда. Эксперимент полностью согласуется с этим предположением.

Участок быстрого спада электронной времепролетной кривой в районе 1–6 мс, обусловленный выходом дырок на облучаемый электрод, обозначает переход от регистрации суммарного тока к таковому от электронов (пролет ионов через облучаемый слой заканчивается гораздо раньше без видимого влияния на ход кривой). Дополнительное снижение тока почти в 2 раза из-за прекращения вклада дырок в регистрируемый ток опять же подтверждает тезис о приблизительном равенстве параметров переноса дырок и электронов.

Предварительные расчеты демонстрируют перспективность подхода, трактующего дырочную кривую переходного тока как обусловленную дисперсионным транспортом дырок и гауссовым транспортом ионов при варьируемой доле последних (рис. 7). Из рисунка видно, что увеличение коэффициента полевой диффузии и уменьшение относительной доли ионов приводят в конце концов к размытию плато и его смене плечом, что также согласуется с экспериментом.

Несколько непонятным остается вопрос о причинах быстрого выноса дырок через объем образца при временах порядка 0.2–1.0 с. Кажущееся значение дисперсионного параметра (0.5–0.7) явно выше его значения (0.35), следующего из кривой спада нестационарной радиационной электропроводности при временах 1–100 мс, непосредственно предшествующих началу пролета. Также не совсем ясно, почему понижение электрического поля сопровождается исчезновением плато и его превращением в плечо, хотя при уменьшении температуры при близком изменении параметров переходного тока плато сохраняет свою форму.

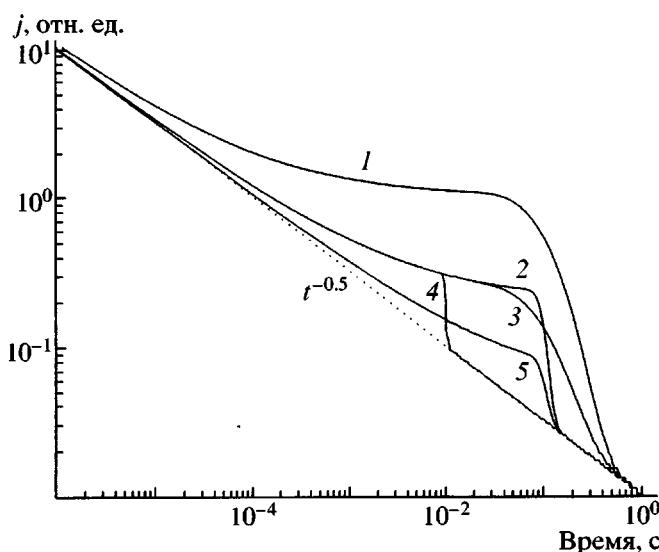


Рис. 7. Расчетные кривые переходного тока для комбинации дисперсионного транспорта дырок ($\alpha = 0.5$, пунктирная прямая) и нормального транспорта положительных ионов со временем пролета 0.1 (1–3, 5) и 0.01 с (4). Пролет дырок отсутствует. 1 – увеличены одновременно концентрация ионов в 5 раз и коэффициент полевой диффузии в 20 раз; 2 – базовая кривая; 3 – коэффициент полевой диффузии увеличен в 20 раз; 4 – в 10 раз увеличена подвижность ионов; 5 – в 4 раза уменьшена относительная концентрация ионов.

Вернемся теперь к вопросу о природе плато на времязадержательных кривых. В литературе рассматриваются три основных подхода к его решению. Во-первых, согласно модели гауссова беспорядка [9–11, 15], формирование плато рассматривается как доказательство установления в системе квазиравновесного режима транспорта основных носителей заряда. Во-вторых, в работах [8, 16] образование плато связывается с влиянием приповерхностных слоев. И, наконец, высказано предположение, что плато обусловлено движением некоторой малочисленной группы носителей заряда с постоянной подвижностью, природа которых в каждом конкретном случае должна устанавливаться отдельно [4].

В настоящей работе показано, что хотя влияние ловушек приповерхностных слоев прослеживается на самом раннем участке времязадержательных кривых, образование плато следует объяснять не их влиянием, а пролетом через образец положительно заряженных частиц (ионов), дрейфующих с постоянной подвижностью. И уже совсем точно

оно не связано с установлением в полимере квазиравновесного режима транспорта дырок.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Бартенев Г.М., Зеленев Ю.В. Физика и механика полимеров. М.: Высшая школа, 1983.
2. Бартенев Г.М., Бартенева А.Г. Релаксационные свойства полимеров. М.: Химия, 1992.
3. Тютнев А.П., Ванников А.В., Мингалиев Г.С. Радиационная электрофизика органических диэлектриков. М.: Энергоатомиздат, 1989.
4. Тютнев А.П., Саенко В.С., Кундина Ю.Ф., Пожидаев Е.Д., Ванников А.В. // Хим. физика. 2002. Т. 21. № 7. С. 30.
5. Тютнев А.П., Саенко В.С., Смирнов И.А., Шахбаев С.Ю., Пожидаев Е.Д., Ванников А.В. // Журн. науч. и прикл. фотографии. 2003. Т. 48. № 2. С. 62.
6. Тютнев А.П., Ванников А.В., Мингалиев Г.С., Саенко В.С. Электрические явления при облучении полимеров. М.: Энергоатомиздат, 1985.
7. Тютнев А.П. // Химия высоких энергий. 1996. Т. 30. № 1. С. 5.
8. Тютнев А.П., Кундина Ю.Ф., Саенко В.С., Пожидаев Е.Д. // Высокомолек. соед. А. 2002. Т. 44. № 12. С. 2160.
9. Bässler H. // Phys. Status Solidi. B. 1981. V. 107. № 1. P. 9.
10. Bässler H. // Phys. Status Solidi. B. 1993. V. 175. № 1. P. 15.
11. Borsenberger P.M., Weiss D.S. Organic Photoreceptors for Imaging Systems. New York: Marcel Dekker, 1993.
12. Abramov V.N., Tютнев А.П., Пожидаев Е.Д., Саенко В.С., Ванников А.В. // Phys. Status Solidi. A. 1986. V. 93. № 2. P. 655.
13. Тютнев А.П., Садовничий Д.Н., Смирнов И.А., Саенко В.С., Пожидаев Е.Д. // Высокомолек. соед. Б. 2003. Т. 45. № 7. С. 1205.
14. Бах А.Н., Ванников А.В., Гришина А.Д. Электропроводность и парамагнетизм полимерных полупроводников. М.: Наука, 1971.
15. Ванников А.В., Гришина А.Д., Новиков С.В. // Успехи химии. 1994. Т. 63. № 2. С. 107.
16. Кундина Ю.Ф., Тютнев А.П., Саенко В.С., Пожидаев Е.Д. // Журн. науч. и прикл. фотографии. 2002. Т. 47. № 5. С. 45.

Mobility of Excess Charge Carriers in Low-Density Polyethylene

A. P. Tyutnev*, V. S. Saenko*, E. D. Pozhidaev*, and V. A. Kolesnikov**

*Moscow State Institute of Electronics and Mathematics,
Trekhsvyatitel'skii per. 3/12, Moscow, 109028 Russia

**Frumkin Institute of Electrochemistry, Russian Academy of Sciences,
Leninskii pr. 31, Moscow, 119991 Russia

Abstract—Comparative testing of commercial LDPE (20- μm thick film) was performed using the radiation-induced conductivity and time-of-flight techniques at elevated temperatures (basically, 352 K). It was shown that charge carrier transport in the test polymer is dipolar and its hole and electron transport parameters are virtually equal. The appearance of a plateau on the hole current transient in time-of-flight experiments is not due to the establishment of quasi-equilibrium regime of hole transport but is presumably associated with the normal (Gaussian) transport of a small group of positively charged particles. The exact nature of these particles was not revealed. The transport of electrons and holes still remain nonequilibrium (dispersive) over the entire observation time span (at least, up to a few seconds). The transit of holes and electrons is reliably detected at times of about 200 ms and occurs in full accordance with the dispersive transport laws (electric field strength of $5 \times 10^7 \text{ V/m}$). In the transit step, the disorder parameter for holes (0.5–0.6) is somewhat greater than that for electrons (0.3–0.4).