

Механизм развития импульсного пробоя в полимерных пленках

© С.Е. Семенов¹, В.М. Капралова¹, В.А. Пахотин², Н.Т. Сударь¹

¹ Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого, Санкт-Петербург, Россия

² Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург, Россия

E-mail: sudar53@mail.ru

Поступила в Редакцию 12 апреля 2022 г.

В окончательной редакции 12 апреля 2022 г.

Принята к публикации 19 апреля 2022 г.

Представлены результаты экспериментального исследования импульсной электрической прочности пленок полиэтилентерефталата и полипропилена при однократном воздействии на них электрического импульса. Установлено, что пробой этих пленок возможен как на фронте, так и на плато импульса, причем при увеличении его амплитуды вероятность пробоя на фронте возрастает. Зафиксирован скачок долговечности пленок при переходе от пробоя на фронте к пробую на плато импульса. Показано, что процессы, подготавливающие электрический пробой пленок развиваются быстрее на фронте, а не на плато импульса. Обсужден возможный физический механизм, объясняющий этот эффект.

Ключевые слова: полимеры, полипропилен, полиэтилентерефталат, импульсный электрический пробой, электролюминесценция.

DOI: 10.21883/FIT.2022.08.52689.346

1. Введение

Интерес к изучению импульсной электрической прочности полимерных диэлектриков не ослабевает на протяжении нескольких десятилетий. Он обусловлен как практической, так и научной значимостью этого явления. С одной стороны, полимерные материалы находят широкое применение в различных устройствах электронной техники, где они используются в качестве диэлектрических и изоляционных слоев и могут подвергаться воздействию сильных электрических полей, а с другой, несмотря на актуальность проблемы, физическая теория, удовлетворительно объясняющая все известные закономерности импульсного пробоя полимеров, до сих пор отсутствует.

Существующие в настоящее время точки зрения на физический механизм импульсного электрического пробоя полимеров существенно различаются. Наиболее распространенной является гипотеза об ударной ионизации. Полагают, что она развивается в полимерных диэлектриках при воздействии на них сильного электрического поля, приводящего к образованию электронных лавин. Несмотря на широкое и продолжительное обсуждение данного механизма образования электронных лавин [1–4], возможность его реализации в полимерах вызывает сомнения.

По мнению авторов [5–8], в условиях прыжкового транспорта носителей, характерного для органических материалов, возникновение электронных лавин в полимерах затруднено. Действительно, длина свободного пробега электрона в этих материалах не превышает 1 nm, что соответствует межмолекулярному расстоянию, следовательно, энергия, набираемая электроном на

длине свободного пробега даже в поле 10^7 V/cm, не превысит 1 eV. Эта величина существенно меньше энергии ионизации макромолекул полимерных диэлектриков, равной 5–7 eV [8–10]. Такая аргументация, поясняющая невозможность развития процессов ударной ионизации, по крайней мере, на начальной стадии электрического старения полимеров, когда в них еще отсутствуют поры и разупорядоченные области, в которых электроны на длине свободного пробега способны набрать необходимую энергию, представляется убедительной.

Авторами [8] для объяснения закономерностей электрического старения и пробоя полимерных диэлектриков в постоянном электрическом поле была предложена не связанная с ударной ионизацией физическая модель разрушения полимеров. Она базируется на представлении о полевой ионизации макромолекул, в результате которой возникают положительно заряженные молекулярные ионы (дырки) и электроны. Согласно данной модели взрывообразное возрастание концентрации носителей зарядов происходит за счет дебаевского экранирования зарядов, приводящего к уменьшению энергии ионизации макромолекул, и, как следствие этого, к самоускорению процесса их полевой ионизации. В работах [9,11] была показана возможность использования данной модели не только для объяснения закономерностей пробоя полимеров в постоянном электрическом поле, но и при рассмотрении причин импульсного электрического пробоя полимерных пленок.

Важно отметить, что импульсный электрический пробой полимеров происходит не мгновенно после приложения напряжения, а через некоторое время, называемое временем задержки. Вне зависимости от того, какой физический механизм пробоя реализуется в реальной

ситуации (ударная или полевая ионизации макромолекул), время задержки необходимо для достижения такой концентрации носителей заряда, при которой станет возможным протекание сквозь полимер тока большой плотности и, вследствие выделения джоулева тепла, разогрева локальной области полимера, что приведет к образованию в нем канала пробоя. При этом произойдет превращение вещества, находящегося при низкой температуре, в проводящую плазму при высокой температуре. В полимерных пленках в условиях квазигомогенного электрического поля формирование канала пробоя происходит наиболее быстро — за один шаг. В этом случае время развития пробоя не превышает нескольких наносекунд, а плотность тока в канале пробоя превосходит 10^7 A/cm^2 [12,13]. В массивных образцах полимеров это время существенно возрастает, что, по-видимому, связано с многошаговым процессом прорастания дендрита в объеме диэлектрика [1]. В работе [14] теоретически показано, что одношаговый импульсный пробой полимерного диэлектрика, приводящий к возникновению в нем сквозного проводящего канала пробоя, возможен в пленке при условии, что ее толщина не превышает $10 \mu\text{m}$.

Таким образом, вышеизложенное позволяет сделать вывод о том, что полимерные пленки толщиной менее $10 \mu\text{m}$ являются наиболее приемлемыми объектами для изучения электронной формы импульсного электрического пробоя, развивающегося в условиях однородного электрического поля.

Целью настоящей работы было выяснение закономерностей импульсного электрического пробоя тонких полимерных пленок и обсуждение возможных причин и особенностей его развития. Используя высокоскоростные методы регистрации пробоя с высоким временным разрешением, предполагалось выяснить условия возникновения пробоя на фронте и плато импульса.

2. Методика

В качестве объектов исследования были выбраны двухосноориентированные пленки полиэтилентерефталата (ПЭТФ) и полипропилена (ПП) промышленного производства толщиной, соответственно, 2.5 и $2.0 \mu\text{m}$. ПЭТФ является слабо полярным полимером, диэлектрическая проницаемость ϵ которого равна 3.0–3.1, а ПП — неполярный полимер с $\epsilon \approx 2$. Пленки из этих полимеров широко используются при изготовлении импульсных высоковольтных конденсаторов. Свойства их хорошо изучены. Обращает на себя внимание, тот факт, что в квазипостоянном электрическом поле в условиях подавления частичных разрядов пробивная напряженность F_{br} данных пленок различным образом зависит от скорости возрастания напряжения dU/dt на образцах [15]. Если F_{br} пленки ПЭТФ возрастает при увеличении dU/dt , то для пленки ПП зависимости F_{br} от dU/dt не наблюдается. Авторами [15] высказано предположение, что в полимерных пленках данная особенность обусловлена различием в величинах коэффициентов электрических перенапряжений, возникающих

в полимерах при накоплении в них объемного заряда. Отметим также, что и при импульсном пробое пленки ПЭТФ существует зависимость F_{br} от крутизны фронта импульса [9], а в пленках ПП она отсутствует [11].

Таким образом, в настоящей работе предполагается исследовать импульсную электрическую прочность полимерных пленок, существенно различающихся по своим электрическим свойствам, что, по нашему мнению, позволит при сопоставлении результатов электрических испытаний этих пленок уточнить особенности влияния объемного заряда на импульсную электрическую прочность полимеров.

Электрические испытания данных пленок на пробой проводились при температуре 295 и 343 К и заключались в однократном воздействии на них высоковольтного импульса отрицательной полярности. Амплитуда импульса могла варьироваться в пределах от 1000 до 2500 В. Крутизна переднего фронта импульса зависела от его амплитуды и при ее увеличении в указанных пределах линейно возрастала от 7.5 до 12.5 В/нс. Протяженность плато импульса была неизменна и равнялась $\sim 100 \mu\text{s}$.

Исследуемая пленка закреплялась в специальной кольцевой оправке, которая устанавливалась между двумя стальными полированными электродами. Один из электродов (плоский) находился под потенциалом земли, а на второй (сферический электрод диаметром 6 мм) подавался высоковольтный импульс отрицательной полярности. Для устранения краевых и поверхностных разрядов межэлектродное пространство заливалось конденсаторным маслом. В такой электродной системе распределение поля в области минимального расстояния между электродами близко к однородному, поэтому напряженность электрического поля F можно рассчитать, используя соотношение

$$F = \frac{U}{d}, \quad (1)$$

где U — напряжение на образце, d — толщина пленки.

Здесь следует отметить, что использование электродов, обеспечивающих малую площадь контакта электрода с пленкой, позволяет установить электрическую прочность собственно полимерного материала, а не электрическую прочность, определяемую наличием в полимерной пленке различного рода дефектов. Действительно, площадь сферического электрода, в пределах которой сохраняется высокая напряженность электрического поля, невелика. Соответственно мал и объем полимера, в котором возможен пробой, поэтому мала и вероятность попадания крупной поры или дефекта пленки в этот „опасный“ объем.

Измерительная схема позволяла с высоким разрешением по времени и амплитуде регистрировать пробой пленки как на фронте импульса, так и на его плато, если время жизни образца, т.е. время до момента его пробоя (t_{br}) при данной амплитуде высоковольтного импульса, не превышало $100 \mu\text{s}$. На рис. 1 представлены типичные осциллограммы сигналов, регистрируемых

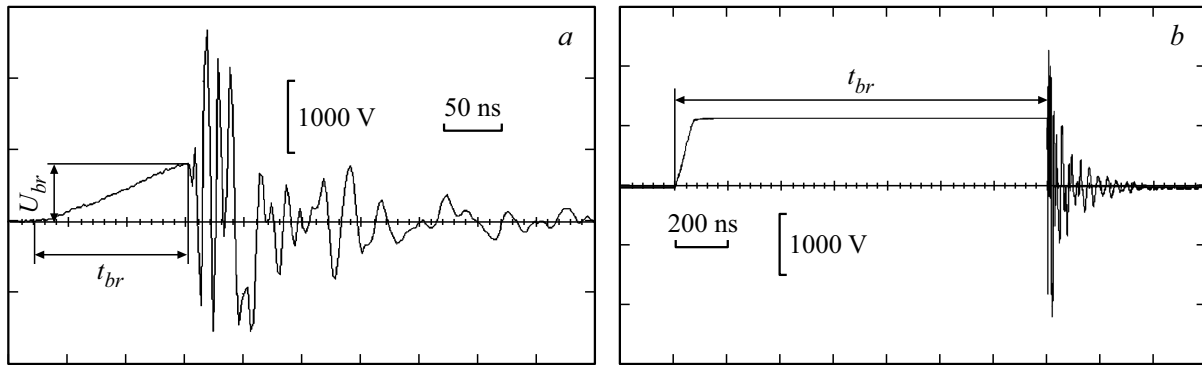


Рис. 1. Осциллограммы сигналов, регистрируемых при пробое на фронте (а) и плато (b) высоковольтного импульса.

при пробое на фронте (а) и плато (b) высоковольтного импульса. В случае, когда образец пленки не пробивался в течение времени регистрации, т. е. когда $t_{br} > 100 \mu\text{s}$ результат испытаний рассматривался как отсутствие пробоя.

При каждом значении амплитуды импульса проводилось не менее 50 испытаний. Вследствие стохастической природы электрического пробоя величины пробивного напряжения U_{br} , определенные на фронте импульса, а также значения t_{br} характеризовались значительным разбросом. Поэтому для каждой серии испытаний рассчитывались средние значения и коэффициенты вариации U_{br} и t_{br} .

3. Экспериментальные результаты и их обсуждение

На основании данных, полученных при электрических испытаниях пленок ПЭТФ и ПП, были рассчитаны относительные доли (в процентах) пробившихся образцов этих пленок на фронте и плато импульса, а также доли не пробившихся образцов при различной амплитуде импульсов при температурах 293 и 343 К. Результаты расчетов представлены на рис. 2. Отметим, что относительные доли пробившихся или не пробившихся образцов определяют вероятности пробоя на фронте p_{fr} и плато p_{pl} импульса, а доля не пробившихся образцов — вероятность отсутствия пробоя p_{no} . Очевидно, что $p_{fr} + p_{pl} + p_{no} = 1$.

Рассмотрим сначала результаты, полученные для пленки ПЭТФ. Видно, что эта пленка (рис. 2, а) при температуре 295 К и $U_{amp} \approx 1500 \text{ V}$ практически не пробивается. При такой амплитуде импульсов, согласно соотношению (1) напряженность поля в пленке ПЭТФ $F_{amp} \approx 600 \text{ MV/m}$. По мере увеличения амплитуды импульсов величины p_{fr} и p_{pl} плавно возрастают, а p_{no} снижается. Значение p_{pl} достигает максимума при $U_{amp} \approx 1900 \text{ V}$ ($F_{amp} \approx 760 \text{ MV/m}$), причем в рассмотренной области изменения U_{amp} пробой на плато оказывается более вероятным, чем на фронте. При дальнейшем увеличении амплитуды импульса p_{pl} снижается, но p_{fr} продолжает возрастать. При $U_{amp} > 2300 \text{ V}$

($F_{amp} > 920 \text{ MV/m}$) пробиваются уже практически все образцы, причем пробой, как правило, происходит на фронте импульса, т. е. $p_{fr} \approx 1$.

Увеличение температуры до 343 К (рис. 2, b) не приводит к существенному изменению характера зависимости p_{fr} , p_{pl} и p_{no} от амплитуды импульса. Следует отметить лишь то, что в этом случае максимум зависимости $p_{pl}(U_{amp})$ смещается в область более низкой амплитуды и наблюдается при $U_{amp} \approx 1700 \text{ V}$ ($F_{amp} \approx 680 \text{ MV/m}$).

При импульсном пробое пленки ПП характер изменения вероятностей p_{fr} , p_{pl} и p_{no} при возрастании амплитуды импульса существенно отличается от аналогичных зависимостей, установленных для пленки ПЭТФ. Переход от отсутствия пробоя к пробую оказывается более резким. При $U_{amp} < 1000 \text{ V}$ ($F_{amp} < 500 \text{ MV/m}$) при температуре 295 К (рис. 2, c) пленки практически не пробиваются. Однако возрастание амплитуды импульса до $U_{amp} \approx 1300 \text{ V}$ ($F_{amp} \approx 650 \text{ MV/m}$) приводит к тому, что подавляющее число образцов начинает пробиваться на фронте импульса, причем пробой пленок ПП на плато или отсутствия пробоя практически не наблюдаются. Нагрев пленок ПП до температуры 343 К (рис. 2, d) не оказывает какого-либо заметного влияния на характер изменения вероятностей p_{fr} , p_{pl} и p_{no} при возрастании амплитуды импульса.

Учитывая достаточно сложную взаимосвязь между пробоем на фронте, плато и отсутствием пробоя пленок при различных амплитудах электрических импульсов, по-разному проявляющуюся в различных полимерах, возникает вопрос о способе оценки их импульсной электрической прочности и возможности сопоставления результатов, полученных для различных полимеров.

В случае, когда пробой преимущественно происходит на фронте импульса, для оценки электрической прочности естественно использовать величину пробивной напряженности F_{br} , значение которой определяется по величине напряжения на образце в момент пробоя U_{br} (рис. 1, a). На рис. 3 представлены зависимости $F_{br}(F_{amp})$ для пленок ПЭТФ и ПП, установленные для этих полимеров при температурах 295 и 343 К. Чтобы не загромождать графики на данном рисунке не изображены статистические отклонения F_{br} . Отметим, что

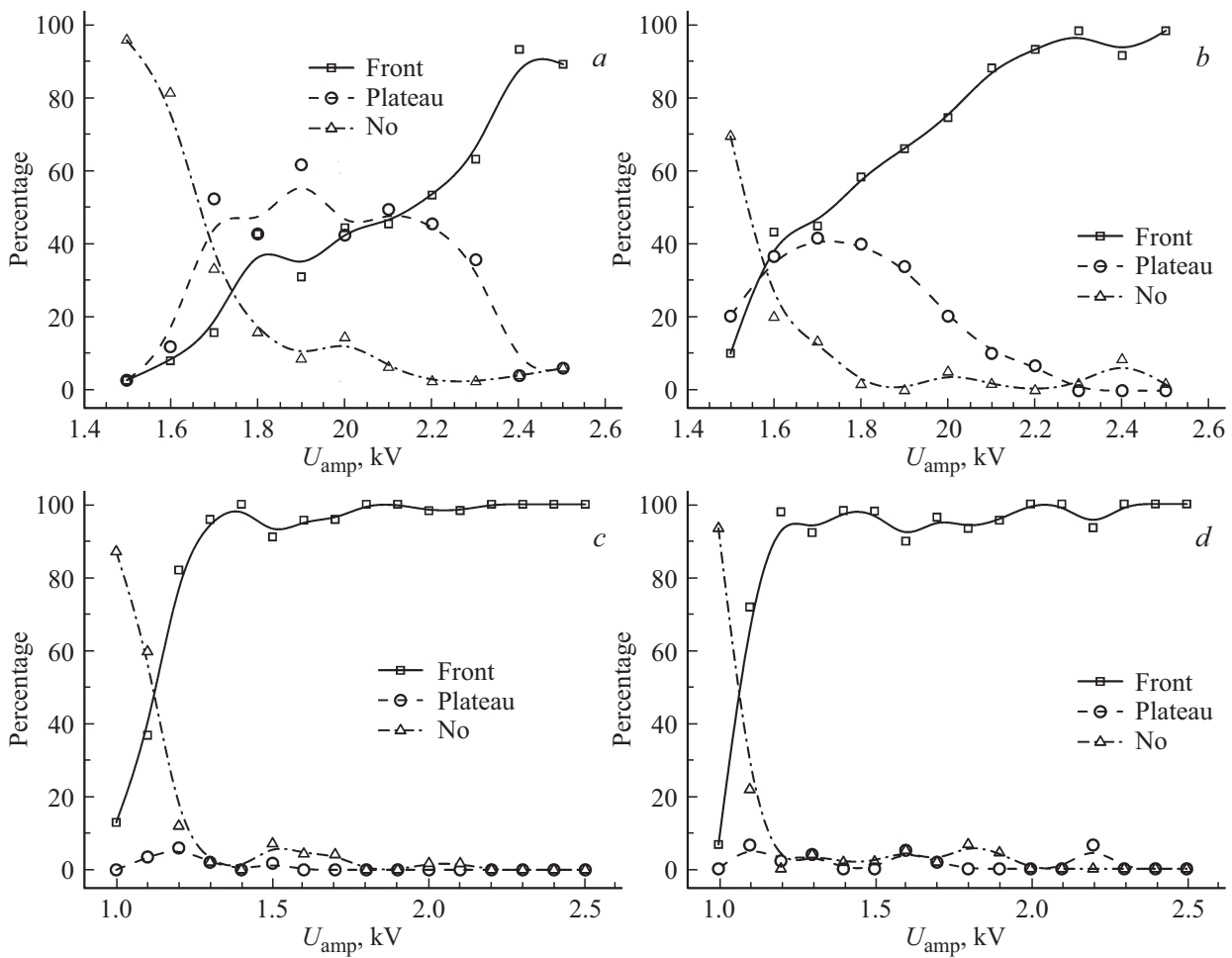


Рис. 2. Доли образцов в процентах по отношению к общему числу образцов в серии, соответствующие отсутствию пробоя образца, пробую на фронте и пробую на плато импульса при различных величинах амплитуды импульса (напряженности электрического поля, достигаемой в импульсе) для ПЭТФ при температуре 295 К (а) и 343 К (б); для ПП при температуре 295 К (с) и 343 К (д).

коэффициент вариации F_{br} этих пленок достигал 30%. Как видно из рисунка, величина F_{br} пленки ПП не зависит ни от температуры, ни от амплитуды импульса. Напротив, для пленок ПЭТФ при температуре 295 К можно отметить близкое к линейному возрастанию F_{br} с 600 до 850 MV/m при увеличении F_{amp} от 600 до 900 MV/m. При больших значениях F_{amp} величина F_{br} , по-видимому, перестает возрастать и стабилизируется на уровне ~ 850 MV/m. Линейный характер зависимости $F_{br}(F_{amp})$ сохраняется и при более высокой температуре. Повышение температуры до 343 К приводит к меньшему наклону прямой $F_{br}(F_{amp})$.

Анализ результатов электрических испытаний значительно усложняется, если пробой на фронте импульса не доминирует, например, реализуется ситуация, наблюдаемая при пробое пленки ПЭТФ при относительно небольшой амплитуде испытательного импульса. Поскольку при этом фиксируется значительное число пробоев на плато импульса или таковые вообще отсутствуют, то расчет среднего значения F_{br} не будет адекватно определять электрическую прочность полимерного диэлектрика. По

нашему мнению, в этом случае ее следовало бы характеризовать не значением F_{br} , а временем жизни образца t_{br} . Трудность расчета среднего значения t_{br} заключается в том, что при проведении экспериментов точность определения t_{br} при каждом испытании ограничена конечной длительностью временного интервала, на котором регистрируется пробой. В рассматриваемом случае наиболее просто установить качественный характер зависимости $t_{br}(U_{amp})$, если для каждого не пробившегося образца принять $t_{br} = 100 \mu s$ и учитывать данное значение при расчете средней величины t_{br} .

На рис. 4 в полулогарифмических координатах представлена зависимость отношения t_{br}/Δ от U_{amp} , рассчитанная для пленок ПЭТФ и ПП при температурах 295 и 343 К. Здесь Δ — длительность переднего фронта импульса при данной амплитуде. Заметим, что $t_{br}/\Delta = 1$ соответствует переходу пробоя с фронта на плато импульса. Видно, что данный переход происходит практически скачкообразно, причем при увеличении температуры он происходит при меньших значениях амплитуды импульса. Это дает основание утверждать,

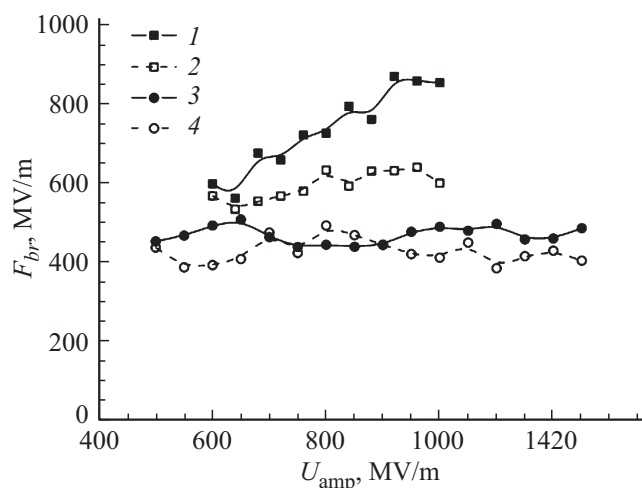


Рис. 3. Зависимости $F_{br}(F_{amp})$ для пленок: ПЭТФ при температуре 295 К (1) и 343 К (2); ПП при температуре 295 К (3) и 343 К (4).

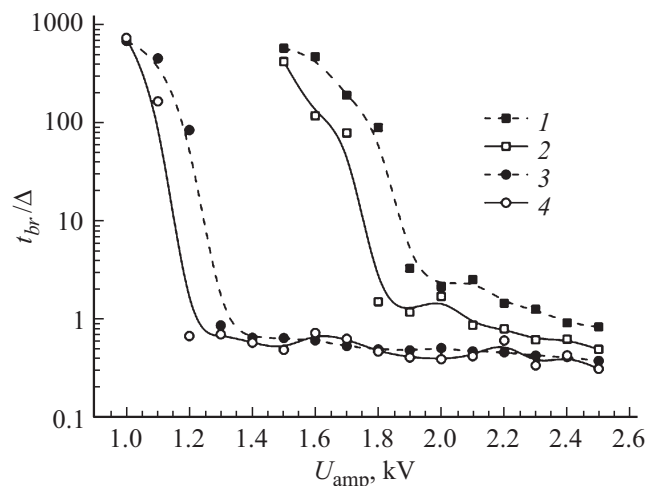


Рис. 4. Зависимость отношения t_{br}/Δ от U_{amp} : для пленки ПЭТФ при 295 К (1) и 343 К (2); для пленки ПП при 295 К (3) и 343 К (4).

что характер развития процессов, инициируемых электрическим полем и приводящих в конечном итоге к пробое полимерной пленки, на фронте и на плато импульса различен.

При анализе процессов, подготавливающих резкие структурные изменения при электрическом пробое полимерных диэлектриков, а именно, возникновение канала пробоя, важнейшим фактором, определяющим величину t_{br} , следует считать скорость развития этих процессов. На основании рассмотренных выше экспериментальных данных можно сделать вывод о том, что при импульсном электрическом пробое она должна быть значительно выше на фронте импульса, а не на его плато.

При обсуждении воздействия на полимерный диэлектрик импульсного напряжения будем полагать в

качестве причины, приводящей к его электрическому пробое, — полевою ионизацию макромолекул. Ионизационно-полевою механизм электрического пробоя полимерных диэлектриков предполагает протекание двух взаимосвязанных процессов, обуславливающих возникновение в полимере твердотельной плазмы и увеличение ее концентрации до критического значения. В качестве таковых рассматривается полевая ионизация макромолекул и термофлуктуационный распад образующихся молекулярных ионов. Вследствие кратковременности развития импульсного пробоя, согласно [11], можно ограничиться анализом лишь наиболее быстропротекающего процесса, а именно, рассмотрением полевою ионизации макромолекул при туннельном переходе электрона с уровня высшей занятой молекулярной орбитали макромолекулы (НОМО) на низшую свободную орбиталь (LUMO) другой молекулы. Отметим здесь, что такие НОМО–LUMO переходы хорошо известны и определяют работу органических диодов Зинера [16]. Константа скорости туннельной ионизации k_{HL} при таких переходах, определяется как

$$k_{HL} = \nu D_{HL}, \quad (2)$$

где ν — частотный фактор, D_{HL} — прозрачность барьера при переходе НОМО–LUMO. Наиболее вероятно туннелирование вдоль направления поля, поэтому для простой оценки вероятности полевою ионизации молекул можно воспользоваться решением одномерной задачи туннелирования через треугольный барьер

$$D_{HL} = \exp\left(-\frac{4\sqrt{2m}\Delta^{3/2}}{3e\hbar F}\right), \quad (3)$$

где m — масса электрона, \hbar — постоянная Планка, F — напряженность действующего на молекулу электрического поля, Δ — высота потенциального барьера при переходе НОМО–LUMO. Значение Δ определяется шириной энергетической щели $E_g = (E_{НОМО} - E_{LUMO})$, (здесь $E_{НОМО}$ и E_{LUMO} — энергии уровней НОМО и LUMO соответственно), поэтому $\Delta = E_g$. Из соотношения (3) следует, что наибольшая скорость ионизации макромолекул должна достигаться на плато, а не на фронте импульса, поскольку там напряженность электрического поля будет наибольшей. Однако такой вывод противоречит экспериментальным данным о скоростях развития пробоя на фронте и плато импульса.

Чтобы избежать этого противоречия, мы предполагаем, что на фронте импульса наряду с процессом туннельной ионизации макромолекул возникает еще один процесс, ускоряющий ионизацию макромолекул, причем он же является и причиной возникновения электролюминесценции (ЭЛ) полимерных диэлектриков. Отметим, что на импульсном напряжении ЭЛ наблюдалась во многих полимерных пленках, в том числе и в пленках ПЭТФ [17,18]. При этом наиболее интенсивное свечение регистрируется на переднем и заднем фронтах импульса, а свечение на его плато быстро затухает. ЭЛ полимеров

при импульсном напряжении возникает в существенно более слабых электрических полях, чем поля, при которых становится возможным их импульсный пробой. Например, в пленках ПЭТФ свечение регистрировалось уже при $F \approx 40 \text{ MV/m}$ [17].

Взаимосвязь между ЭЛ и электрическим старением полимеров на постоянном и переменном напряжении отмечалась многими авторами [19–21]. Полагают, что в этом случае испускание света в видимом диапазоне является следствием релаксации возбужденных состояний, возникающих при электронно-дырочной рекомбинации в объеме (на постоянном напряжении) или в приэлектродных областях (на переменном напряжении) полимера. При воздействии на полимерные диэлектрические пленки коротких импульсов (длительностью не более нескольких сотен наносекунд) реализация такого механизма ЭЛ становится, по-видимому, невозможной. Это связано с тем, что за столь короткое время в полимерной пленке толщиной более нескольких микрон не успеет возникнуть область, в которой одновременно присутствуют электроны и дырки, и в которой становится возможной электронно-дырочная рекомбинация. Действительно, глубина прорастания заряда в полимер в течение переднего фронта импульса (при условии, что скорость возрастания напряжения постоянна) определяется соотношением

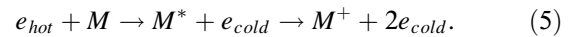
$$l = \frac{1}{2} \mu F_{\text{amp}} \Delta, \quad (4)$$

где μ — подвижность носителей заряда. Приняв, $F_{\text{amp}} = 40 \text{ MV/m}$, $\Delta = 200 \text{ ns}$ и, полагая подвижность носителей заряда в ПЭТФ $\mu \approx 10^{-8} \text{ m}^2/(\text{V} \cdot \text{s})$ [22], получим $l \approx 40 \text{ nm}$, т.е. действительно в приэлектродных областях полимерной пленки будут накапливаться заряды только одного знака.

Учитывая это обстоятельство, авторы [17] делают вывод о том, что возникновение ЭЛ в импульсном электрическом поле обусловлено не электронно-дырочной рекомбинацией, а ударным возбуждением люминесцентных центров электронами, инжектированными из катода и ускоренными высоким электрическим полем. Несмотря на то, что свободные электроны постепенно захватываются на ловушки и образуют отрицательный объемный заряд, этот заряд не способен ограничить напряженность поля у катода и подавить электронную эмиссию. Напротив, она возрастает, поскольку на переднем фронте импульса напряжение на образце непрерывно увеличивается. Ограничение поля у катода объемным зарядом и уменьшение эмиссионного тока становится возможным только при переходе на плато импульса, когда напряжение на образце перестанет изменяться. Это объясняет, почему яркость ЭЛ, достигнув пикового значения, постепенно уменьшается до нуля на плато импульса.

Естественно допустить, что наряду с возбуждением люминесцентных центров „горячими“ электронами с энергией 2–3 eV, такие электроны при электронном

ударе способны возбуждать и полимерные молекулы, что существенным образом облегчит в дальнейшем их полевую ионизацию. Отметим, что на возможность ионизации электронно-возбужденных молекул в сильном электрическом поле указывается, например, в работах [23,24]. Таким образом, в течение времени, определяемого длительностью переднего фронта импульса, может быть реализован механизм генерации положительных молекулярных ионов (дырок) и электронов, идущий по следующей схеме:



Здесь e_{hot} — „горячий“ электрон, M — невозбужденная молекула, M^* — возбужденная молекула, M^+ — положительный молекулярный ион, e_{cold} — „холодный“ термализованный электрон, возникающий в результате полевой ионизации возбужденной макромолекулы или электрон, теряющий энергию при столкновении с макромолекулой.

По мере накопления отрицательного объемного заряда в приэлектродной области напряженность поля на границе его прорастания в полимер возрастает. Согласно [9], напряженность поля на границе прорастания заряда F_f определяется соотношением

$$F_f \approx F + \frac{eN_t x_f}{2\epsilon\epsilon_0}, \quad (6)$$

где e — заряд электрона, N_t — концентрация ловушек в полимерах, x_f — глубина прорастания заряда, ϵ — диэлектрическая проницаемость полимера, $\epsilon_0 = 8.85 \cdot 10^{-12} \text{ F/m}$. Оценим значение F_f при величинах F близких к пробивным значениям. Примем $F = 400 \text{ MV/m}$, тогда согласно (4) $x_f \approx 0.4 \mu\text{m}$ и, полагая $N_t \approx 10^{18} \text{ cm}^{-3}$, при $\epsilon = 3$ получим $F_f \approx 1200 \text{ MV/m}$. В электрическом поле столь высокой напряженности вероятность полевой ионизации невозбужденных макромолекул становится достаточно высокой [8]. Поэтому полевую ионизацию не возбужденных молекул можно рассматривать как фактор, ускоряющий процесс накопления дырок и электронов в полимерном диэлектрике на переднем фронте электрического импульса.

Пробой полимерного диэлектрика произойдет на переднем фронте импульса только в том случае, если концентрация зарядов в диэлектрике успеет достичь критического значения, при котором станет возможным самоускорение полевой ионизации макромолекул. В противном случае накопление зарядов продолжится уже на плато импульса, но скорость его уменьшится, поскольку процесс ионизации, определяемый схемой (5), существенно замедлится или практически полностью будет подавлен вследствие ограничения инжекционного тока объемным зарядом.

Рассмотренная модель развития импульсного электрического пробоя полимерных пленок объясняет причину снижения U_{br} и t_{br} при их нагреве. По нашему мнению, оно связано с резким увеличением плотности

инжекционного тока при повышении температуры и, как следствие этого, возрастанием числа свободных электронов, способных набрать в электрическом поле энергию, достаточную для возбуждения молекул.

4. Заключение

Таким образом, выполненное в настоящей работе экспериментальное исследование импульсной электрической прочности пленок ПЭТФ и ПП толщиной 2.5 и 2 μm при однократном воздействии на них электрического импульса показало, что пробой исследуемых пленок возможен как на фронте, так и на плато импульса, причем при увеличении его амплитуды вероятность пробоя на фронте возрастает. Зафиксирован скачок долговечности пленок при переходе от пробоя на фронте к пробоям на плато импульса. Этот результат дает основание утверждать, что процессы, подготавливающие электрический пробой пленок развиваются быстрее на фронте, а не на плато импульса. Для объяснения данной особенности импульсного пробоя было использовано представление о полевой ионизации макромолекул.

Предполагается, что сначала при относительно невысоких напряженностях электрического поля возникает электронная инжекция. Инжектированные электроны ускоряются электрическим полем и приобретают энергию достаточную для возбуждения молекул, но не достаточную для их ионизации. Возбужденные полимерные молекулы способны ионизоваться при меньших напряженностях электрического поля, чем молекулы, находящиеся в основном состоянии. По мере накопления отрицательного объемного заряда в приэлектродной области, на границе его прорастания в полимер напряженность электрического поля достигнет значений, при которых станет возможной генерация зарядов и за счет полевой ионизации невозбужденных молекул. Электрический пробой полимерной пленки произойдет, если оба этих процесса обеспечат достижение критической концентрации зарядов за время, не превышающее длительность переднего фронта. В противном случае, процесс накопления зарядов продолжится на плато импульса, но скорость его снизится вследствие ограничения объемным зарядом напряженности поля у катода и снижения тока эмиссии.

Наблюдаемое снижение U_{br} и t_{br} при увеличении температуры, как можно полагать, связано с увеличением плотности инжекционного тока, приводящего к возрастанию концентрации свободных электронов, способных в электрическом поле набирать энергию, достаточную для возбуждения молекул.

Финансирование работы

Исследование выполнено при финансовой поддержке Минобрнауки России в рамках реализации программы Научного центра мирового уровня по направлению „Передовые цифровые технологии“ СПбПУ (соглашение от 17.11.2020 № 075-15-2020-934).

Конфликт интересов

Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

Список литературы

- [1] L. Zhao, J. Su, C.L. Liu. AIP Advances **10**, 3, 035206 (2020).
- [2] M.P. Wilson, M.J. Given, I.V. Timoshkin, S.J. MacGregor, M.A. Sinclair, K.J. Thomas, J.M. Lehr. IEEE Trans. Plasma Sci. **38**, 10, 2611 (2010).
- [3] J. Artbauer. J. Phys. D **29**, 2, 446 (1996).
- [4] I. Kitani, K. Arai. Jpn. J. Appl. Phys. **22**, 5R, 857 (1983).
- [5] Z. Chen, S. Ji, W. Jia, J. Tan, F. Guo, J. Li, W. Chen. IEEE Trans. Plasma Sci. **46**, 11, 4010 (2018).
- [6] L.A. Dissado, J.C. Fothergill. Electrical Degradation and Breakdown in Polymers. The Institution of Engineering and Technology, London (1992). 601 p.
- [7] K.C. Kao. J. Appl. Phys. **55**, 3, 752 (1984).
- [8] V.A. Zakrevskii, V.A. Pakhotin, N.T. Sudar. J. Appl. Phys. **115**, 23, 234101 (2014).
- [9] В.А. Закревский, В.А. Пахотин, Н.Т. Сударь. ЖТФ **89**, 1, 120 (2019).
- [10] N.R. Rajopadhye, S.V. Bhoraskar. J. Mater. Sci. Lett. **5**, 603 (1986).
- [11] В.А. Закревский, В.А. Пахотин, Н.Т. Сударь. ЖТФ **87**, 2, 249 (2017).
- [12] В.А. Пахотин, В.А. Закревский, Н.Т. Сударь. ЖТФ **85**, 8, 40 (2015).
- [13] В.М. Рожков. ЖТФ **73**, 1, 51 (2003).
- [14] S. Boggs. IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul. **11**, 1, 90 (2004).
- [15] В.А. Закревский, Н.Т. Сударь. ЖТФ **66**, 4, 105 (1996).
- [16] H. Kleemann, R. Gutierrez, F. Lindner, S. Avdoshenko, P.D. Manrique, B. Lüsssem, K. Leo. Nano Lett. **10**, 12, 4929 (2010).
- [17] K. Kaneto, K. Yoshino, K.C. Kao, Y. Inuishi. Jpn. J. Appl. Phys. **13**, 6, 1023 (1974).
- [18] K. Kojima, Y. Takai, M. Ieda. Jpn. J. Appl. Phys. **21**, 6R, 860 (1982).
- [19] C. Laurent, F. Massines, C. Mayoux. IEEE Trans. Dielectr. Electr. Insul. **4**, 5, 585 (1997).
- [20] G. Teyssedre, G. Tardieu, D. Mary, C. Laurent. J. Phys. D **34**, 14, 2220 (2001).
- [21] В.А. Закревский, В.А. Пахотин, Н.Т. Сударь. ФТТ **61**, 10, 1953 (2019).
- [22] K. Hayashi, K. Yoshino, Y. Inuishi. Jpn. J. Appl. Phys. **14**, 1, 39 (1975).
- [23] H.S.W. Massey, E.H.S. Burhop, P.M. Morse. Phys. Today **6**, 1, 15 (1953).
- [24] V.A. Polyansky, I.L. Pankrat'eva. J. Electrostatics **70**, 2, 201 (2012).

Редактор К.В. Емцев