

На правах рукописи



Семенов Сергей Евгеньевич

**Импульсная электрическая прочность полимерных
пленок**

1.3.5 Физическая электроника

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой
степени кандидата физико-
математических наук

Санкт-Петербург
2025

Работа выполнена в Федеральном государственном автономном образовательном учреждении высшего образования «Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого»

Научный руководитель:

Профессор, доктор физико-математических наук, Сударь Николай Тобисович.

Официальные оппоненты:

Профессор, доктор физико-математических наук, Ханин Самуил Давидович, Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования "Санкт-Петербургский государственный университет телекоммуникаций им. проф. М.А. Бонч-Бруевича, кафедра электроники, профессор, г. Санкт-Петербург.

Кандидат технических наук, Шишов Михаил Александрович, Филиал Федерального государственного бюджетного учреждения «Петербургский институт ядерной физики им. Б.П. Константинова национального исследовательского центра «Курчатовский институт» – Институт высокомолекулярных соединений, лаборатория № 15 Анизотропных и структурированных полимерных систем, старший научный сотрудник, г. Санкт-Петербург.

Ведущая организация:

Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования Санкт-Петербургский государственный технологический институт (технический университет), г. Санкт-Петербург.

Защита состоится «25 февраля» 2026 года в 16:00 часов на заседании диссертационного совета У.1.3.5.11 федерального государственного автономного образовательного учреждения высшего образования «Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого» (195251, г. Санкт-Петербург, ул. Политехническая, 29, корпус 2, аудитория 347).

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке и на сайте федерального государственного автономного образовательного учреждения высшего образования «Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого» и на сайте университета www.spbstu.ru.

Автореферат разослан « »

Ученый секретарь диссертационного совета
У.1.3.5.11, доктор физико-математических наук,

Архипов Александр Викторович



ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность темы исследования. Исследование импульсной электрической прочности полимерных диэлектриков вызывает интерес как с практической, так и с научной точки зрения. Полимерные пленки широко используются в различных устройствах электронной техники и могут подвергаться воздействию сильных импульсных электрических полей. Однако данных об импульсной электрической прочности полимеров явно недостаточно, причем многие из них устарели, что затрудняет решение многих практических вопросов. На сегодняшний день отсутствует и единая точка зрения на физический механизм импульсного электрического разрушения полимерных пленок. Например, в качестве причин возникновения импульсного пробоя в полимерах часто рассматривается ударная ионизация макромолекул, приводящая к образованию электронных лавин [1] или же полевая ионизация (автоионизация) макромолекул — физический механизм разрушения полимеров в электрическом поле, несвязанный с ударной ионизацией [2].

Степень разработанности темы. Следует отметить, что пробивные напряженности полимерных пленок в квазипостоянном поле, когда скорость возрастания постоянного по знаку напряжения на образце не превышает $\sim 10^3$ – 10^4 В/с, и при воздействии короткого электрического импульса очень близки, хотя времена воздействия электрического поля на пленку отличаются на много порядков. Этот факт до сих пор не получил своего разумного объяснения, но он дает основание утверждать, что при воздействии на полимерную пленку электрического импульса процессы, приводящие к пробую полимерного диэлектрика, развиваются значительно быстрее, чем в постоянном поле.

Использование в качестве объектов исследования полимерных пленок микронной толщины при однократном воздействии на них электрического импульса длительностью ~ 10 мкс при крутизне фронта импульса 10^9 – 10^{10} В/с позволяет изучить явление импульсного электрического пробоя в условиях, когда в пленке распределение электрического поля близко к однородному, в полной мере не реализуется режим ограничения поля объемным зарядом и образования дендритов не происходит, то есть позволяет изучать собственно явление пробоя, а не сопутствующие ему эффекты.

Все эти обстоятельства определяют актуальность настоящего исследования, посвященного изучению электрофизических процессов, развивающихся в полимерных диэлектрических пленках в импульсных электрических полях.

Цель работы — изучить закономерности и особенности развития импульсного электрического пробоя в полимерных пленках, способствующие выяснению природы процессов, определяющих пробой полимерных пленок на импульсном напряжении и на этой основе сформулировать основные положения физической модели развития импульсного электрического пробоя в полимерных пленках микронных толщин.

В соответствии с целью исследований **задачи работы** были сформулированы следующим образом:

1. Разработать методику оценки импульсной электрической прочности полимерных пленок микронных толщин при однократном воздействии на них электрического импульса и создать экспериментальную установку, обеспечивающую фиксацию момента пробоя полимерной пленки с временным разрешением на уровне наносекунд.

2. Изучить влияние амплитуды и крутизны фронта высоковольтных импульсов, а также температуры на импульсную электрическую прочность пленок полимеров с различной морфологией, температурой стеклования и степенью полярности.

3. Разработать методику регистрации электролюминесценции (ЭЛ) полимеров на импульсном напряжении и создать экспериментальную установку, позволяющую фиксировать световые импульсы при воздействии на полимерную пленку высоковольтных электрических импульсов. Установить роль ЭЛ в процессе импульсного электрического пробоя полимерных пленок.

4. Расчетным путем получить оценки реально достижимой напряженности электрического поля в полимерах при воздействии на них электрических импульсов с различной крутизной фронта и амплитудой.

5. Обобщить полученные результаты и на этой основе сформулировать основные положения физической модели развития импульсного электрического пробоя в полимерных пленках.

Область исследования. Диссертационная работа соответствует паспорту специальности: 1.3.5. Физическая электроника, а именно пункту

- п. 5. Физические явления в твердотельных микро- и нано-структурах, молекулярных структурах и кластерах; проводящих, полупроводниковых и тонких диэлектрических пленках и покрытиях.

Методология и методы исследования. С использованием разработанной экспериментальной установки проводились испытания на пробой полимерных пленок полипропилена (ПП), полиэтилентерефталата (ПЭТФ) и поликарбоната (ПК) толщиной 2-3 мкм при однократном воздействии на пленку высоковольтного импульса отрицательной полярности с различной крутизной переднего фронта и амплитудой импульса.

Полученные данные об электрической прочности полимерных пленок оценивались на основании статистической обработки результатов электрических испытаний с использованием распределения Вейбулла.

Для регистрации импульсной ЭЛ указанных полимерных пленок была использована экспериментальная установка с ФЭУ, работающем в режиме регистрации тока.

Научная новизна. Выполнено систематическое исследование импульсной электрической прочности полимерных пленок микронной толщины при однократном воздействии на них высоковольтного электрического импульса. По итогам исследования научную новизну работы обеспечивают следующие результаты:

1) Зафиксирован скачок долговечности пленок, определяемой как время от начала воздействия импульса до момента пробоя, при переходе от пробоя на фронте к пробоям на плато

импульса, что дает основание утверждать о том, что процессы, подготавливающие электрический пробой пленок, развиваются быстрее на фронте, а не на плато импульса.

2) Установлено, что значение пробивной напряженности пленок ПП, ПК и ПЭТФ при нагреве их от 293 до 363 К уменьшается незначительно, но характеризуется существенной дисперсией, не зависящей от температуры;

3) Показано, что представленные экспериментальные данные о влиянии температуры на импульсную электрическую прочность полимеров можно объяснить на основе представления о полевом ионизационном механизме пробоя полимеров, который не связан с развитием ударной ионизации;

4) Впервые математически проанализировано распределение электрического поля в полимере с учетом шероховатости электродов в режиме воздействия на пленку электрического импульса с крутизной фронта 10^9 – 10^{10} В/с;

5) На примере пленок ПП и ПЭТФ впервые выявлена взаимосвязь между яркостью импульса электролюминесценции и импульсной электрической прочностью полимерных пленок.

Теоретическая и практическая значимость работы. Показано, что в качестве физического механизма, определяющего развитие пробоя в полимерных пленках микронных толщин при воздействии на них высоковольтных электрических импульсов можно рассматривать полевую ионизацию возбужденных электронным ударом полимерных молекул, реализующуюся на переднем фронте электрического импульса.

Практическая значимость работы определяется возможностью использования полученных результатов при конструировании импульсных тонкопленочных конденсаторов. На основании результатов диссертационной работы получен патент на изобретение способа получения полимерного диэлектрика с повышенной электрической долговечностью в переменном электрическом поле.

Выполнено систематическое исследование импульсной электрической прочности полимерных пленок микронной толщины при однократном воздействии на них высоковольтного электрического импульса. Предложена и математически обоснована физическая модель развития электрического пробоя тонких полимерных пленок при однократном воздействии на них электрического импульса.

Степень достоверности. Достоверность полученных результатов обеспечивается применением апробированных методов исследования с использованием современного экспериментального оборудования, а также статистическими методами обработки результатов электрических испытаний. Достоверность выводов диссертационной работы подтверждается соответствием экспериментальных результатов теоретическим выводам и полученным расчетным значениям.

Личный вклад автора. Автор участвовал в формулировании цели и задач диссертационной работы, проведении экспериментов, оценке и описании полученных экспериментальных данных. Проведение расчетов и разработка необходимых для этого программ были выполнены автором лично.

Апробация работы. Результаты работы докладывались на следующих конференциях: XXI Молодежная научная конференция, посвященная 75-летию Института химии силикатов им. И.В. Гребенщикова (с международным участием) СПб, 2023; Всероссийская конференция "Неделя науки ИЭиТ" СПб: 2021-2022 гг; International Conference on Electrical Engineering and Photonics, EExPolytech, St. Petersburg 2022-2024 гг; 20th International Workshop Complex Systems of Charged Particles and Their Interactions with Electromagnetic Radiation, Moscow, 2024; XVI международная конференция по физике диэлектриков "Диэлектрики-2024" СПб, 2024.

Публикации по теме диссертации. По теме диссертации опубликовано 13 печатных работ. Пять из этих работ опубликованы в рецензируемых изданиях, индексируемых базой RSCI и/или международными базами данных Web of Science и Scopus, либо приравнены к ним, согласно рекомендациям НАК СПбПУ Петра Великого. Четыре работы относятся к категориям K1 или K2 Перечня ВАК или приравнены к ним, согласно рекомендациям НАК СПбПУ Петра Великого.

Основные положения, выносимые на защиту:

1. При однократном воздействии высоковольтного импульса на полимерные пленки ПЭТФ, ПП и ПК микронной толщины их наиболее вероятная пробивная напряженность при пробое на переднем фронте импульса в температурном интервале от 293 до 363 К практически не зависит от температуры и оценивается соответственно для ПЭТФ, ПП и ПК в 700, 550 и 650 МВ/м, что близко к величине пробивной напряженности этих пленок в квазипостоянном электрическом поле.

2. При скорости возрастания напряжения на образце $\sim 10^{10}$ В/с за время воздействия переднего фронта импульса длительностью ~ 100 нс в полимерном диэлектрике за счет автоэлектронной эмиссии электронов из микроострий на катоде накапливается объемный заряд, глубина прорастания которого оценивается в $\sim 0,5$ мкм.

3. На переднем фронте импульса реализуется эффект ограничения поля отрицательным объемным зарядом, приводящий к тому, что локальная напряженность поля у вершины микроострия оказывается в 3–4 раза больше, чем в стационарном режиме. При выходе на плато импульса ее величина уменьшается до значения, близкого к стационарному, за время 10^2 – 10^3 нс.

4. Полевая ионизация макромолекул является причиной импульсного электрического пробоя полимерных пленок, который наступает при достижении критической концентрации положительных молекулярных ионов. Более высокая скорость их накопления на переднем фронте импульса по сравнению с его плато обусловлена дополнительным фактором — полевой ионизацией возбужденных электронным ударом макромолекул и большей локальной напряженностью поля на этом временном интервале.

Структура и объём диссертации. Диссертационная работа изложена на 134 страницах и содержит 39 рисунков, 7 таблиц. Работа состоит из введения, пяти глав, заключения, списка сокращений и условных обозначений, списка литературы и двух приложений. Список литературы включает 180 наименований.

ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во **введении** раскрывается актуальность научного исследования, формулируются цели и задачи диссертационной работы, описывается методика исследования и обосновывается достоверность полученных результатов, указываются научная новизна, практическая и научная значимости работы, приводятся основные положения, выносимые на защиту, а также сведения о структуре, объеме диссертации и апробации результатов диссертационного исследования.

В **первой главе** представлен аналитический обзор основных теоретических и экспериментальных работ, посвященных исследованием электрического пробоя полимеров. Обсуждаются возможные механизмы импульсного электрического пробоя. Показано, что в настоящее время еще не сложилась единая точка зрения на физический механизм развития импульсного электрического пробоя полимерных диэлектрических пленок. Рассматриваются работы, посвященные изучению распределения электрического поля в полимерных диэлектриках, и анализируются возможные подходы, на которых могут основываться соответствующие расчеты.

Вторая глава является методической. Она содержит обоснование выбора пленок ПП, ПК и ПЭТФ толщиной 2–3 мкм для проведения электрических испытаний и описание экспериментальной установки, позволяющей проводить электрические испытания полимерных пленок при однократном воздействии на них электрического импульса отрицательной полярности с крутизной фронта, варьируемой в пределах от 100 до 4000 нс, и амплитудой 500–2500 В при протяженности плато импульса 100 мкс. На заднем фронте импульса происходил медленный (в течение нескольких миллисекунд) спад напряжения.

Испытания проводились при температурах от 293 до 363 К с использованием электродной системы типа "сфера-плоскость" (высоковольтный электрод — стальная полированная сфера диаметром 6 мм, электрод, находящийся под потенциалом земли, полированный стальной диск), что обеспечивало близкое к однородному распределение электрического поля в месте пробоя пленки. Образец пленки с электродами помещался в конденсаторное масло.

При импульсном электрическом воздействии пробой пленки мог возникать как на фронте, так и на плато импульса. В первом случае для количественной оценки электрической прочности использовалось значение напряжения на образце в момент пробоя (пробивное напряжение U_{br}), и по формуле $F_{br} = U_{br}/d$, где d — толщина пленки, определялась пробивная напряженность. При пробое на плато импульса вместо U_{br} для оценки электрической прочности полимера использовалось время до пробоя t_{br} , определяемое от начала импульса до момента пробоя.

При каждом значении варьируемых параметров: температуры, амплитуды и крутизны переднего фронта импульса, для данной полимерной пленки осуществлялось не менее 50 испытаний. При обработке их результатов применялось распределение Вейбулла, параметры которого использовались для расчета наиболее вероятного значения и дисперсии либо F_{br} , либо t_{br} .

Для регистрации импульсной ЭЛ полимерных пленок была использована экспериментальная установка с ФЭУ, работающем в режиме регистрации тока. В качестве объектов для изучения ЭЛ применялись пленки ПП (толщиной 4 мкм) и ПЭТФ (толщиной 5 мкм). На образцы этих пленок размером 1 см^2 с одной из сторон наносился тонкий прозрачный слой ИТО. Он исполнял функции электрода, потенциал которого считался нулевым, а также прозрачного (в видимой области спектра) окна, через которое проходил световой поток при ЭЛ полимерной пленки. С противоположной стороны на пленку при помощи термического напыления в вакууме наносился непрозрачный алюминиевый электрод диаметром 4 мм.

В **третьей главе** приведены результаты экспериментального исследования импульсной электрической прочности полимерных пленок ПП, ПЭТФ и ПК и оценено влияние на неё различных факторов.

Установлена взаимосвязь между амплитудой высоковольтного импульса и количеством пробоев на плато и фронте импульса, а также числом импульсов, в течение которых пробоя не произошло. Определено, что при достаточно больших значениях U_{amp} (2400 и 1300 В для ПК и ПП соответственно) практически все образцы пленок пробиваются на фронте импульса, и вероятность электрического пробоя на плато или отсутствия пробоя практически равна нулю. В этом случае для оценки импульсной электрической прочности используется величина пробивной напряженности F_{br} , значение которой определяется по напряжению на образце в момент пробоя U_{br} . Зависимости $F_{br}(U_{amp})$ для исследованных полимерных пленок при температурах 295 и 343 К изображены на Рисунке 1.

Показано, что величина пробивной напряженности F_{br} для всех исследованных полимерных пленок с учетом коэффициента вариации $\sim 30\%$ практически не зависит от амплитуды импульса и для ПЭТФ, ПП и ПК оценивается соответственно в 700, 450 и 550 МВ/м.

Поскольку пробой мог происходить как на фронте, так и на плато импульса, для более общей оценки импульсной электрической прочности полимерных пленок в данной работе мы использовали электрическую долговечность, которая определялась временем от момента приложения напряжения до пробоя при заданном значении напряженности электрического поля. Полученные зависимости относительного времени до пробоя (отношение времени до наступления пробоя с момента приложения импульса к продолжительности его фронта) от амплитуды импульса представлены на Рисунке 2. Переходу пробоя с фронта на плато импульса соответствует $t_{br}/\Delta = 1$. На Рисунке 2 наблюдается скачок долговечности пленок в 10^2 – 10^3 раз при переходе от пробоя на фронте к пробоям на плато импульса, что дает основание утверждать, что процессы, подготавливающие электрический пробой пленок, развиваются быстрее на переднем фронте импульса.

Одним из основных факторов, способных оказывать влияние на электрическую прочность полимерных диэлектрических материалов, является температура. Поэтому в данной работе была определена температурная зависимость пробивной напряженности полимерных пленок (Рисунок 3) и проведена статистическая обработка полученных результатов с использованием распределения Вейбулла, которое широко используется при анализе результатов по импульсному пробоям полимеров [3].

Установлено, что значение наиболее вероятной пробивной напряженности \tilde{F}_{br} пленок ПП, ПК и ПЭТФ при их нагреве от 293 до 363 К уменьшается незначительно, но при этом пробивная напряженность характеризуется существенной дисперсией, практически не зависящей от температуры. Отметим, что несмотря на то, что температура стеклования T_g пленки ПЭТФ лежит в исследованном нами температурном диапазоне, при прохождении области T_g для этого полимера не наблюдалось какого-либо заметного изменения \tilde{F}_{br} .

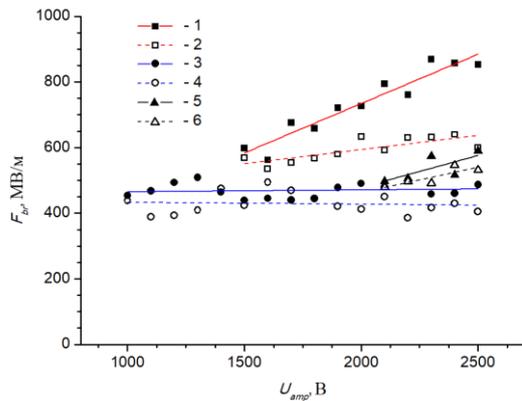


Рисунок 1 – Зависимости пробивной напряженности от амплитуды импульса для пленок ПЭТФ при температуре 295 К (1) и 343 К (2); для ПП при температуре 295 К (3) и 343 К (4); для ПК при температуре 295 К (5) и 343 К (6)

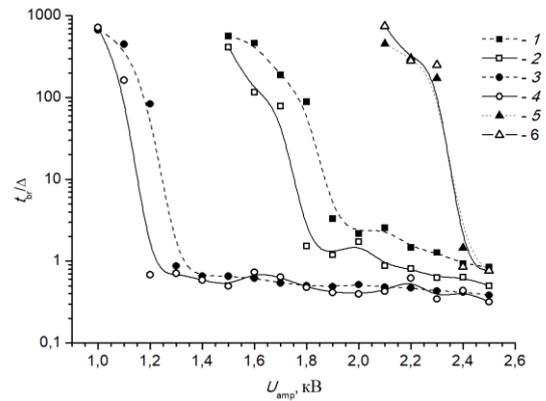


Рисунок 2 – Зависимости относительного времени до пробоя от амплитуды импульса для пленки ПЭТФ при температуре 295 К (1) и 343 К (2); для ПП при температуре 295 К (3) и 343 К (4); для ПК при температуре 295 К (5) и 343 К (6)

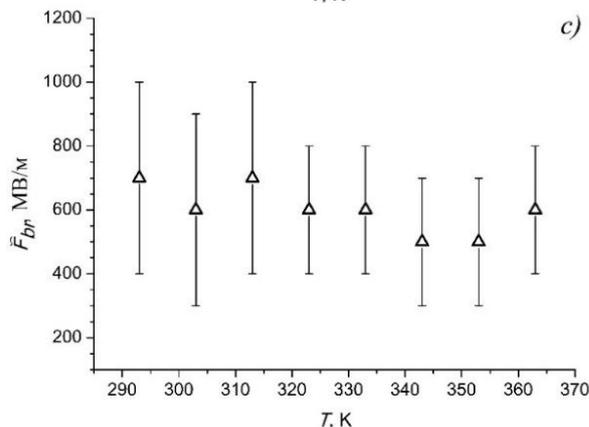
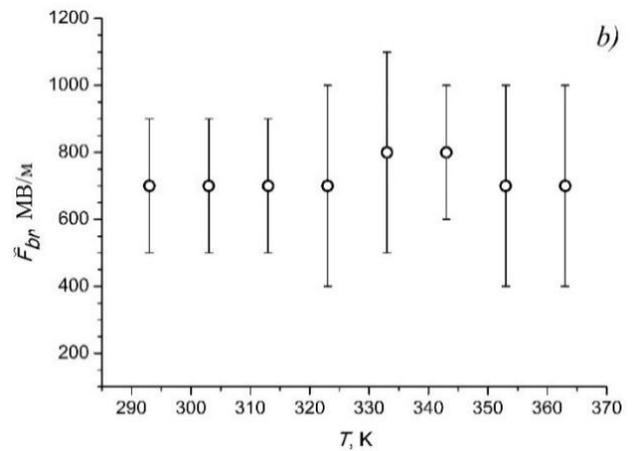
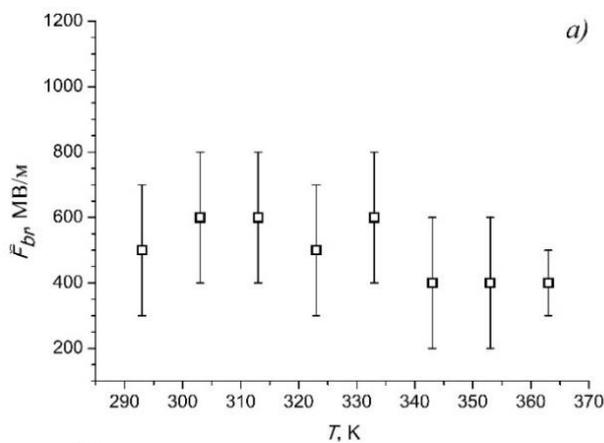


Рисунок 3 – Температурные зависимости наиболее вероятной пробивной напряженности для пленок ПП (a), ПЭТФ (b), ПК (c)

Таким образом, можно полагать, что размораживание молекулярной подвижности в полимерах не оказывает заметного влияния на импульсную электрическую прочность полимерных диэлектрических пленок.

Другим фактором, влияющим на импульсную электрическую прочность

полимерных диэлектриков, является крутизна переднего фронта импульса. В данной работе определено влияние крутизны фронта импульса на F_{br} пленки ПК толщиной 3 мкм (Рисунок 4). Установлено, что для пленки ПК величина \tilde{F}_{br} практически не зависит от крутизны переднего фронта импульса с учетом коэффициента вариации, который оценивается в $\sim 30\%$. Определено на основании литературных данных [2] и результатов настоящего исследования, что влияние крутизны переднего фронта импульса в полимерных пленках различной природы проявляется по-разному: например, для ПП зависимость F_{br} от крутизны фронта импульса отсутствует, а F_{br} пленки ПЭТФ возрастает при увеличении температуры.

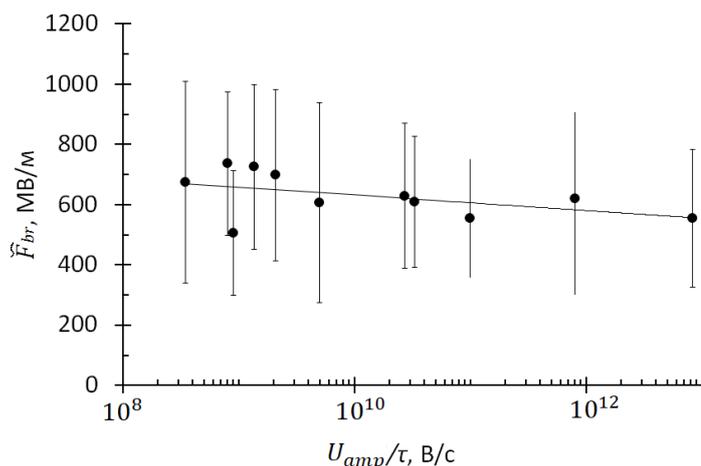


Рисунок 4 – Зависимость наиболее вероятной пробивной напряженности от крутизны фронта импульса для пленки ПК

Для выяснения взаимосвязи между ЭЛ и импульсной прочностью полимерных пленок сравнивались яркостно-временные характеристики световых импульсов и пробивная напряженность пленок, изготовленных из различных полимеров. Импульсная ЭЛ регистрировалась в пленках ПП и ПЭТФ толщиной 4 и 5 мкм соответственно при воздействии на них импульсов амплитудой от 500 до 2500 В и длительностью переднего фронта около 250 нс. Было установлено, что световые импульсы в обоих полимерах возникают только на переднем фронте электрического импульса, быстро затухая на его плато. По мере увеличения амплитуды электрического импульса яркость свечения возрастала. Этот результат хорошо согласуется с известными литературными данными об импульсной ЭЛ полимерных пленок [4]. При всех значениях U_{amp} амплитуда световых импульсов в пленке ПЭТФ оказалась большей, чем в пленке ПП. Как было показано выше, пленки ПЭТФ характеризуются и большими значениями пробивной напряженности.

В четвертой главе представлен расчет распределения электрического поля вблизи микроострия в полимерном диэлектрике в условиях накопления в нем отрицательного объемного заряда (ООЗ) при воздействии на полимер электрического импульса с высокой крутизной переднего фронта, а также выполнена оценка величин локальных перенапряжений, которые возникают у инжектирующих электродов и на границе прорастания в полимер объемного заряда (ОЗ). Микроострие на поверхности катода моделировалось электродной системой в виде сферического концентрического конденсатора, в котором непосредственно микроострие рассматривалось как электрод малого радиуса r_c , а сфера большего радиуса R

была анодом. Такая модель микроострия частот используется при математическом анализе накопления ОЗ в диэлектриках [5].

Распределение электрического поля в межэлектродном пространстве $F(r, t)$ данной электродной системы в любой момент времени t описывается уравнением Пуассона. В сильном электрическом поле инжекция электронов из катода в полимерный диэлектрик обусловлена автоэлектронной эмиссией (АЭЭ), поэтому для расчета плотности инжекционного тока использовалось уравнение типа уравнения Фаулера-Нортгейма в предположении треугольного потенциального барьера на границе катод-полимер.

Решение уравнения Пуассона с учетом полного заряда между сферическими поверхностями получено в следующем виде:

$$F(r, t) = \frac{r_c R}{r^2(R - r_c)} U(t) - \frac{r_c R}{4\pi\epsilon\epsilon_0 r^2(R - r_c)} \int_{r_c}^R \frac{q(r, t)}{r^2} dr + \frac{q(r, t)}{4\pi\epsilon\epsilon_0 r^2}, \quad (1)$$

где ϵ – относительная диэлектрическая проницаемость полимерного диэлектрика; ϵ_0 – абсолютная диэлектрическая проницаемость вакуума; $U(t)$ – напряжение на образце. При расчетах принималось, что $U(t)$ изменяется со временем как

$$U(t) = \begin{cases} \dot{U}t, & \text{при } t \leq \Delta \\ U_{amp} & \text{при } t > \Delta \end{cases}. \quad (2)$$

Здесь $\dot{U} = U_{amp}/\Delta$, где Δ — соответствует длительности переднего фронта импульса. Функция $q(r, t)$ определяет заряд, заключенный между двумя сферическими поверхностями с радиусами r_c и r к моменту времени t . Точное аналитическое выражение для функции $q(r, t)$ неизвестно и вряд ли может быть установлено, поскольку требует учета скоростей захвата и опустошения электронных ловушек при любых значениях r и t . Ее вид зависит от многих факторов: плотности инжекционного тока, подвижности носителей заряда, напряжения на электродах, энергетической плотности ловушечных состояний и длительности электрического импульса. Однако, эта функция может быть аппроксимирована кубическим полиномом с основанием $(r - r_c)$ [6].

Согласно определению $q(r, t)$ при $r_c \leq r \leq r_{fr}(t)$ ($r_{fr}(t)$ соответствует глубине прорастания ОЗ в образец к моменту времени t) монотонно возрастает по мере увеличения r , причем $q(r_c, t) \equiv 0$. При $r > r_{fr}(t)$ величина $q(r, t)$ не зависит от координаты и равна полному ОЗ, инжектированному в образец к моменту времени t .

Процесс прорастания ООЗ представляет собой самосогласованную задачу. Поэтому при расчете изменения со временем напряженности поля у катода $F_c(t)$ и напряженности поля на границе прорастания ОЗ в полимер $F_{fr}(t)$ был использован временной пошаговый метод. В соответствии с этим методом предполагалось, что распределение поля и заряда неизменно в течение времени дискретизации Δ_t (при расчетах принималось $\Delta_t = 1$ нс). Расчет F_c и F_{fr} на i -м шаге в момент времени t_i проводился на основании результатов расчета этих величин на предыдущем временном шаге.

Результаты расчетов зависимостей $F_c(t)$ и $F_{fr}(t)$ при $U_{amp} = 1500$ В и различных значениях \dot{U} , определяющих крутизну переднего фронта импульса, представлены на Рисунке 5.

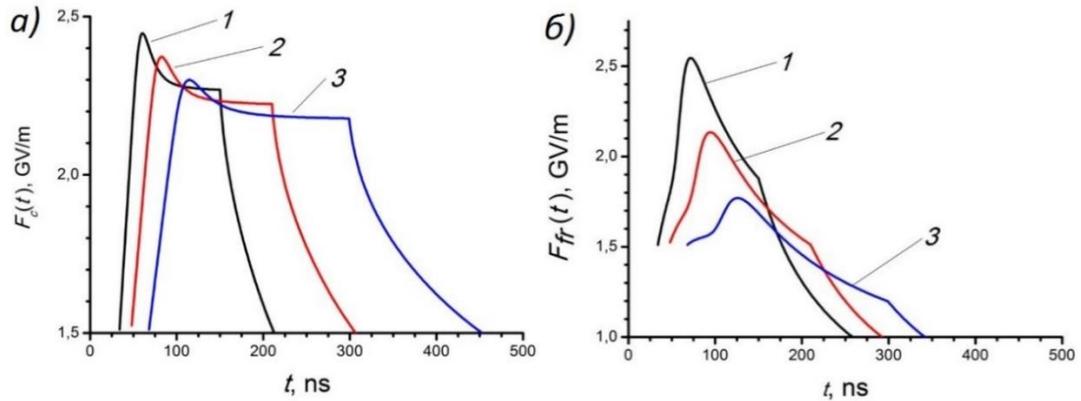


Рисунок 5 – Зависимости $F_c(t)$ (а) и $F_{fr}(t)$ (б), рассчитанные при $U_{amp} = 1500$ В и различных значениях крутизны фронта импульса: 1 — 10 ГВ/с, 2 — 7 ГВ/с; 3 — 5 ГВ/с

Видно, что уменьшение длительности переднего фронта (возрастание крутизны фронта импульса) приводит к возрастанию напряженности электрического поля в полимере в области накопления ОЗ и, соответственно, к возрастанию плотности инжекционного тока, но длительность воздействия сильного электрического поля при этом сокращается. Это, с одной стороны, может привести к увеличению скорости протекания процессов, инициируемых в полимерном материале электрическим полем, но с другой, уменьшает время их воздействия на полимерный материал.

Глубина прорастания ООЗ в полимер рассчитывалась по формуле:

$$r_{fr}(t) = \mu_{др} \int_0^t F_{fr}(t') dt', \quad (3)$$

где $\mu_{др}$ — дрейфовая подвижность электронов в полимерном диэлектрике ($\mu_{др} = 10^{-9}$ м²/(В·с)).

На Рисунке 6 представлены результаты расчета глубины прорастания ООЗ в полимере при различных значениях крутизны фронта импульса. Видно, что она зависит от крутизны фронта импульса и во временном интервале, который соответствует длительности переднего фронта, не превышает 0,6 мкм.

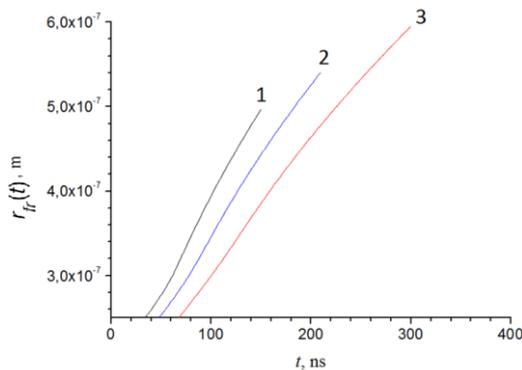


Рисунок 6 – Временная зависимость глубины прорастания ОЗ в течение переднего фронта импульса при различной его крутизне: 1 — 10 ГВ/с, 2 — 7 ГВ/с; 3 — 5 ГВ/с

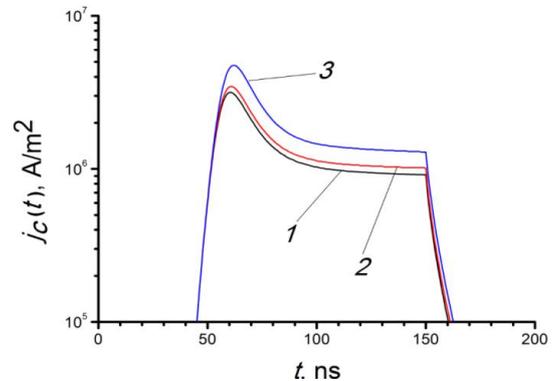


Рисунок 7 – Зависимость $j_c(t)$, рассчитанная при $U_{amp} = 1500$ В и $\Delta = 150$ нс с использованием различных функций, аппроксимирующих $q(r, t)$: 1 – квадратичной, 2 – линейной, 3 – кубической.

На Рисунке 7 представлено изменение со временем плотности тока АЭЭ. Видно, что наибольшее значение j_c наблюдается только на переднем фронте импульса и быстро спадает по мере перехода на плато.

В пятой главе сформулированы и проанализированы основные положения физической модели импульсного электрического пробоя полимерных диэлектрических пленок. Принимается, что основной причиной пробоя является накопление в локальных областях пленок положительных молекулярных ионов (дырок), возникающих за счет полевой ионизации макромолекул в областях полимера, где напряженность электрического поля достигает наибольших значений. Пробой наступает при достижении критической концентрации дырок $\sim 10^{24} - 10^{25} \text{ м}^{-3}$. При достижении такой концентрации из-за возникновения эффекта дебаевского экранирования и снижения потенциала ионизации макромолекул реализуется самоускоряющийся процесс накопления положительных молекулярных ионов [2].

В аморфных областях полимерного материала всегда существуют микропустоты, являющиеся элементами свободного флуктуационного объема полимера. Двигаясь в таких микропустотах, инжектированные из катода электроны под действием электрического поля способны на длине свободного пробега набрать энергию в несколько электрон-вольт. Такой энергии недостаточно для ударной ионизации макромолекул, потенциал ионизации которых значительно больше, но ее достаточно для возбуждения макромолекул в синглетные и триплетные состояния электронным ударом [7]. Деактивация молекул, возбужденных в результате неупругого взаимодействия с электронами низких энергий, происходит вследствие флуоресценции, что, как полагают, является причиной ЭЛ при импульсном напряжении [4]. Возбужденные полимерные молекулы способны ионизоваться при меньших напряженностях электрического поля, чем молекулы, находящиеся в основном состоянии. На возможность ионизации электронно-возбужденных органических молекул в сильном электрическом поле указывается, например, в работе [8]. Поскольку интенсивная автоэлектронная эмиссия возникает в полимерах только на переднем фронте импульса, то на этом временном интервале возникает дополнительный механизм ионизации макромолекул, ускоряющий накопление макроионов на переднем фронте импульса.

Схема накопления положительных ионов в полимерном диэлектрике при воздействии импульса напряжения представлена на Рисунке 8.

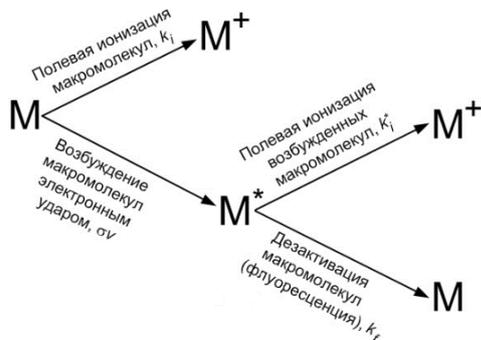


Рисунок 8 – Схема накопления положительных ионов в полимерном диэлектрике при воздействии импульса напряжения

Вышеизложенные качественные соображения были проиллюстрированы расчетами. Система дифференциальных уравнений, соответствующая модели и учитывающая зависимость напряженности поля на переднем фронте импульса от времени включает в себя дифференциальные уравнения, определяющие скорости изменения

концентраций невозбужденных макромолекул $M(t)$, макромолекул, возбужденных электронным ударом $M^*(t)$ и образующихся за счет полевой ионизации невозбужденных макромолекул и положительных молекулярных ионов (дырок) $M^+(t)$.

Поскольку между $M(t)$, $M^*(t)$ и $M^+(t)$ существует взаимосвязь, определяемая соотношением $M_0 = M(t) + M^*(t) + M^+(t)$, где M_0 — начальная концентрация молекул, способных либо ионизоваться, либо перейти в возбужденное состояние, то анализируемая система дифференциальных уравнений сводится к системе из двух уравнений:

$$\begin{cases} \frac{dM^*(t)}{dt} = \sigma_n v n(t) [M_0 - M^*(t) - M^+(t)] - k_f M^*(t) - k_i^*(t) M^*(t) \\ \frac{dM^+(t)}{dt} = k_i(t) [M_0 - M^*(t) - M^+(t)] + k_i^*(t) M^*(t) \end{cases}, \quad (4)$$

где k_f — константа скорости флуоресценции, $k_f \approx 10^7$ - 10^8 c^{-1} [9]; $k_i(t)$ и $k_i^*(t)$ — константы скорости ионизации невозбужденных и возбужденных макромолекул; $n(t)$ — концентрация свободных электронов; σ_n — сечение неупругих столкновений, $\sigma_n = 10^{-20}$ м^2 [7]; v — скорость электронов в полости перед соударением с молекулой, $v \sim 10^6$ м/с .

Константы скоростей туннельной ионизации невозбужденных и возбужденных макромолекул соответственно определены как

$$k_i(t) = \nu_0 D(t) \text{ и } k_i^*(t) = \nu_0 D^*(t), \quad (5)$$

где $\nu_0 = 10^{16}$ с^{-1} , $D(t)$ и $D^*(t)$ — прозрачности барьера при туннелировании электрона из невозбужденных и возбужденных макромолекул соответственно. Для упрощения расчетов потенциальный барьер считался треугольным, а высота его принималась соответственно равной 3 и 5 эВ для возбужденной и невозбужденной молекул.

Система уравнений (4) была решена численно с использованием метода Эйлера, реализованного в программе Mathcad 15. На Рисунках 9 и 10 в качестве примера представлены временные зависимости концентрации возбужденных молекул $M^*(t)$ и молекулярных ионов $M^+(t)$ при двух значениях амплитуды напряженности поля F_{amp} , соответствующих достижению $M_{кр}^+$ на плато (Рисунок 9) и фронте (Рисунок 10) импульса. Полученные в данной работе экспериментальные результаты дают основание утверждать, что скорость накопления дырок оказывается большей на переднем фронте, а не на плато импульса. Именно этим объясняется преимущественное возникновение пробоя на переднем фронте импульса.

Расчеты $M^*(t)$ и $M^+(t)$ были выполнены при различных значениях F_{amp} , изменяющихся в пределах от 1580 до 1830 МВ/м , что позволило в рамках анализируемой модели импульсного пробоя полимерных пленок оценить влияние амплитуды импульса на величину их долговечности (Рисунок 11) и сравнить расчетные значения с полученными ранее экспериментальными зависимостями.

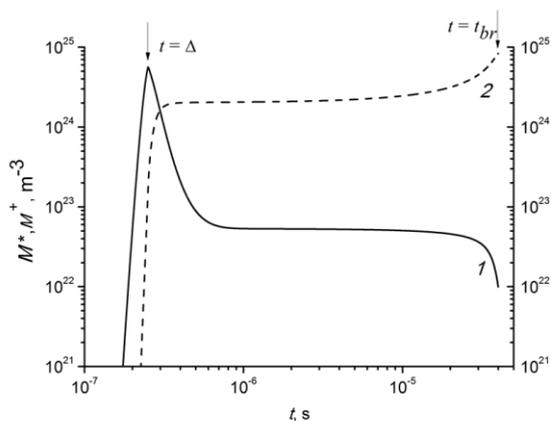


Рисунок 9 – Временные зависимости концентрации возбужденных молекул M^* (кривая 1) и макроионов M^+ (кривая 2) при $F_{amp} = 1585$ МВ/м и возникновении пробоя на плато импульса

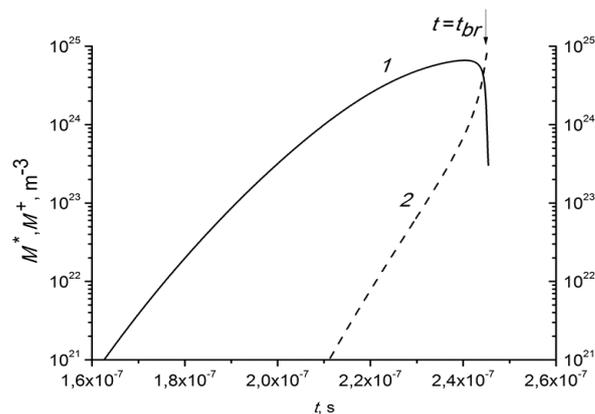


Рисунок 10 – Временные зависимости концентрации возбужденных молекул M^* (кривая 1) и макроионов M^+ (кривая 2) при $F_{amp} = 1700$ МВ/м и возникновении пробоя на фронте импульса

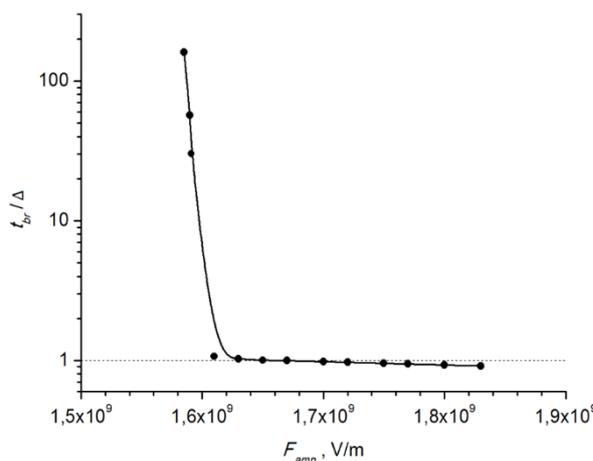


Рисунок 11 – Расчетная зависимость t_{br}/Δ от амплитудного значения напряженности локального поля

Видно, что переход от пробоя на фронте импульса ($t_{br}/\Delta < 1$) к пробоя на плато ($t_{br}/\Delta > 1$) сопровождается резким скачкообразным увеличением долговечности, при котором отношение t_{br}/Δ возрастает более, чем в 150 раз. Этот результат качественно согласуется с экспериментальными данными о характере зависимостей $\frac{t_{br}}{\Delta}(U_{amp})$ для ПЭТФ, ПП и ПК, представленными на Рисунке 2.

В **заключении** приведены основные результаты и выводы диссертационной работы.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

1. Разработана методика оценки импульсной электрической прочности полимерных пленок микронных толщин при однократном воздействии на них электрического импульса и создана экспериментальная установка, обеспечивающая фиксацию момента пробоя полимерной пленки с временным разрешением на уровне наносекунд.

2. Изучено влияние амплитуды и крутизны фронта высоковольтных импульсов, а также температуры на импульсную электрическую прочность пленок полимеров с различной морфологией, температурой стеклования и степенью полярности.

3. Разработана методика регистрации электролюминесценции полимеров на импульсном напряжении и создана экспериментальная установка, позволяющая фиксировать световые импульсы при воздействии на полимерную пленку высоковольтных электрических импульсов. Установлена роль ЭЛ в процессе импульсного электрического пробоя полимерных пленок как одного из каналов диссипации энергии возбужденных электронным ударом макромолекул.

4. Расчетным путем получены оценки реально достижимой напряженности электрического поля в полимерах при воздействии на них электрических импульсов с различной крутизной фронта и амплитудой.

5. Сформулированы и проанализированы основные положения физической модели импульсного электрического пробоя полимерных диэлектрических пленок. Полученные в данной работе экспериментальные результаты дают основание утверждать, что скорость накопления дырок оказывается большей на переднем фронте, а не на плато импульса. Именно этим объясняется преимущественное возникновение пробоя на переднем фронте импульса

6. Решение системы дифференциальных уравнений, описывающих скорость накопления дырок при ионизации макромолекул, показало приемлемое согласие расчетов и экспериментальных результатов об электрической долговечности исследованных полимерных пленок при импульсном воздействии напряжения.

Рекомендации и перспективы дальнейшей разработки темы:

В качестве рекомендации для дальнейшей разработки темы предлагается изучение особенностей импульсного пробоя полимерных пленок при уменьшении длительности переднего фронта импульса до значений $\sim 10^{-10}$ с.

Перспективы дальнейшей разработки темы связаны с определением условий, при которых будет повышаться вероятность излучательной релаксации триплетных возбужденных состояний, что должно привести к увеличению долговечности полимеров в переменном или импульсном электрических полях.

Список цитируемой литературы

1. Zhao, L. Review of developments on polymers' breakdown characteristics and mechanisms on a nanosecond time scale / L. Zhao, J. Su, C.L. Liu // AIP Advances. – 2020. – Vol. 10. – N. 3. – P. 035206.
2. Закревский, В.А. Импульсная электрическая прочность пленки полипропилена / В.А. Закревский, В.А. Пахотин, Н.Т. Сударь // Журнал технической физики. – 2017. – Т. 87. – N. 2. – С. 249–253.
3. Dissado, L.A. Theoretical basis for the statistics of dielectric breakdown / L.A. Dissado // Journal of Physics D: Applied Physics. – 1990. – Vol. 23. – N. 12. – P. 1582–1591.
4. Kaneto, K. Electroluminescence in Polyethylene Terephthalate / K. Kaneto, K. Yoshino, K.C. Kao, Y. Inuishi // Jpn. J. Appl. Phys. – 1974. – Vol. 13. – N. 6. – P. 1023–1024.
5. Ламперт, М., Марк П. Инжекционные токи в твердых телах / М. Ламперт, П. Марк. – М.: Мир, 1973. – 416 с.
6. Бережанский, В.Б. Влияние инжектированного заряда на распределение электрического поля в полимерном диэлектрике / В.Б. Бережанский, В.М. Быков, В.В. Городов, В.А. Закревский, Н.Т. Сударь // Высокомолекулярные соединения. – 1989. – Т. 31(Б). – N. 4. – С. 275–281.
7. Кухто, А.В. Электролюминесценция тонких пленок органических соединений (обзор) / А.В. Кухто // Журнал прикладной спектроскопии. – 2003. – Т. 70. – N. 2. – С. 151–176.

8. Polyansky, V.A. On ionization of electronically excited molecules in hydrocarbon combustion under strong electric field / V.A. Polyansky, I.L. Pankrat'eva // Journal of Electrostatics. – 2012. – Vol. 70. – N. 2. – P. 201–206.

9. Ранби, Б. Фотодеструкция, фотоокисление, фотостабилизация полимеров: Пер. с англ. В.Б. Иванова / Б. Ранби, Я. Рабек, пер. с англ. В.Б. Иванова. Под ред. Н.М. Эмануэля – М.: Мир, 1978. – 676 с.

Список работ, опубликованных автором по теме исследования

1. Семенов, С.Е. Механизм развития импульсного пробоя в полимерных пленках / С.Е. Семенов, В.М. Капралова, В.А. Пахотин, Н.Т. Сударь // Физика твердого тела. – 2022. – Т. 64. – N. 8. – С. 948-954.

2. Пахотин, В.А. О влиянии электронно-дырочной рекомбинации и частичных разрядов на долговечность полимерных диэлектриков в переменном электрическом поле / В.А. Пахотин, С.Е. Семенов, Н.Т. Сударь // Электричество. – 2023. – N. 8. – С. 39–46.

3. Семенов, С.Е. Влияние температуры на импульсную электрическую прочность полимерных пленок / С.Е. Семенов // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. – 2024. – Т. 17. – N. 2. – С. 141–149.

4. Pakhotin, V.A. Increasing the lifetime of polymer dielectrics in an AC field by using phosphorescent dopants: Theoretical justifications and numerical simulation / V.A. Pakhotin, S.E. Semenov, N.T. Sudar // J. Appl. Phys. 2025. — Vol. 137. — P. 214104.

5. Пахотин В.А., Семенов С.Е., Сударь Н.Т. Патент №2821113. Способ получения полимерного диэлектрика. Регистрация 17.06.2024 г.

6. Semenov, S.E. The Effect of Temperature on the Pulsed Electrical Strength of Polyethylene Terephthalate Films / S.E. Semenov, N.T. Sudar // 2022 International Conference on Electrical Engineering and Photonics (EEExPolytech), IEEE. – 2022. – P. 279-281.

7. Semenov, S.E. The Effect of Temperature on the Pulsed Electrical Strength of Polypropylene and Polycarbonate Films / S.E. Semenov, D.A. Kanev, N.T. Sudar // 2023 International Conference on Electrical Engineering and Photonics (EEExPolytech), IEEE. – 2023. – P. 246-248.

8. Semenov, S.E. Pulse Electrical Strength of Polymer Dielectric Films / S.E. Semenov, N.T. Sudar, V.A. Pakhotin // 2024 International Conference on Electrical Engineering and Photonics (EEExPolytech), IEEE. – 2024. – P. 313–315.

9. Семенов, С.Е. Роль электролюминесценции при импульсном пробое полимерных пленок / С.Е. Семенов, В.А. Пахотин, Н.Т. Сударь // XVI международная конференция по физике диэлектриков "Диэлектрики-2024" СПб. – 2024. – с. 66.

10. Семенов, С.Е. Увеличение долговечности полимерных диэлектриков в переменном электрическом поле / С.Е. Семенов, В.А. Пахотин, Н.Т. Сударь // XXI Молодежная научная конференция, посвященная 75-летию юбилею Института химии силикатов им. И.В. Гребенщикова (с международным участием) СПб. – 2023. – с. 187–188.

11. **Semenov, S.E.** Solid-state Plasma Model of Electrical Breakdown of Polymer Dielectrics / **S.E. Semenov**, N.T. Sudar, V.A. Pakhotin // 20th International Workshop Complex Systems of Charged Particles and Their Interactions with Electromagnetic Radiation, Moscow. – 2024. – p. 96.

12. **Семенов, С.Е.** Особенности оценки импульсной электрической прочности пленки полиэтилентерефталата / С.Е. Семенов, Н.Т. Сударь // Всероссийская конференция "Неделя науки ИЭиТ". – 2021. – с. 127-130.

13. Канев, Д.А. Оценка импульсной электрической прочности пленки поликарбоната / Д.А. Канев, **С.Е. Семенов**, Н.Т. Сударь // Всероссийская конференция "Неделя науки ИЭиТ". – 2022. – с. 132-135.