

Механизм образования древовидных каналов в диэлектрике, облученном заряженными частицами

Ю. С. ДЕЕВ, М. С. КРУГЛЫЙ, В. К. ЛЯПИДЕВСКИЙ, В. И. СЕРЕНКОВ

УДК 541.15:537.226

В работе [1] описано явление, не похожее ни на один из известных процессов трещинообразования в пластмассах под действием излучения. Авторы этой работы обнаружили, что в облученном быстрыми электронами ($E = 0,7 \text{ Мэв}$) полиметилметакрилате (ПММА) возникают и развиваются трещины, имеющие древовидную форму. Согласно работе [1] растрескивание происходит в результате радиолиза полимера и связано с возникновением внутренних напряжений вследствие скопления в материале одноименно заряженных низкомолекулярных продуктов деструкции. В то же время внутренние напряжения, созданные в образце путем растяжения, на «ориентацию» трещин не влияют. В работе [2] эффект растрескивания объяснялся газообразованием под действием излучения, а сами трещины рассматривались как пути прохождения газов. Гросс [3] впервые обратил внимание на электрозарядное происхождение трещин, причем последние отождествлялись с фигурами Лихтенберга.

При исследовании поведения ПММА под действием электронов с энергией 5 Мэв , генерируемых линейным ускорителем, авторы настоящей работы установили, что возникновение древовидных каналов сопровождается характерной световой вспышкой типа молнии, хорошо заметной, несмотря на сильное свечение образца под действием излучения. В дальнейшем было отмечено, что наряду со световым импульсом возникает электрический. Схема эксперимента приведена на рис. 1. Образец ПММА размером $5 \times 5 \times 5 \text{ см}$ с вплавленным в него электродом помещали в светонепроницаемую камеру и через диафрагму диаметром 4 мм облучали электронным пучком со средней плотностью тока $0,1 \text{ мкА/см}^2$. Свечение образца регистрировалось через воздушный светопровод фотоумножителем ФЭУ-11. Сигнал с выхода ФЭУ подавался на один из входов двухлучевого осциллографа С1-19; электрод, вплавленный в образец, соединялся со вторым входом осциллографа. Геометрия расположения образца относительно пучка была выбрана таким образом, чтобы электрод не подвергался действию излучения.

Было установлено, что через несколько секунд после начала облучения на экране осциллографа одновременно в обоих каналах возникают импульсы с передним фронтом менее 10^{-7} сек . Совпадение во времени световых и электрических импульсов позволяет предположить, что возникающие при облучении древовидные каналы представляют собой след искрового разряда, происходящего в материале в результате накопления объемного заряда термализовавшихся электронов первичного пучка. Это подтверждают фотографии образца, выполненные в момент разряда* (рис. 2, а) и после него (рис. 2, б).

Как уже отмечалось выше, согласно механизму, предложенному в работе [1], структура «дерева» должна определяться в процессе облучения образца как результат радиолиза. С точки зрения авторов настоящей работы, каналы создаются электрическим разрядом и, следовательно, до разряда древовидной структуры

вообще не существует. На это указывают результаты следующих экспериментов.

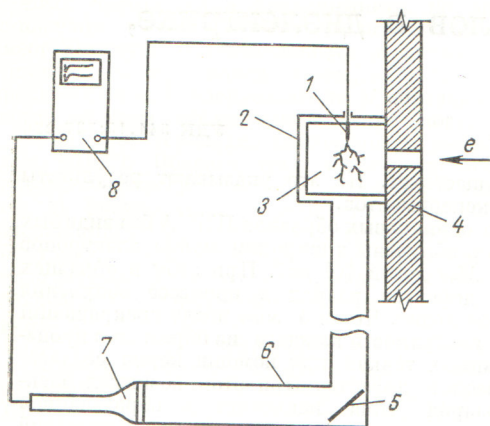
Несколько одинаковых образцов ПММА без видимых дефектов были облучены в широком пучке электронов с энергией 5 Мэв дозой 10^5 рад . При этом в образцах без видимых дефектов разряд в процессе облучения обычно не происходит. Через 3 мин после прекращения облучения на поверхности каждого из образцов в произвольно выбранных точках при помощи керны создавались механические дефекты. При этом возникал электрический разряд типа искрового с образованием «дерева», ствол которого выходил на механический дефект. Форма образующихся «деревьев» и их ориентация были различными в зависимости от расположения дефекта относительно области объемного заряда (см. рис. 2, в, г). Таким образом, структура каналов и их ориентация, а также точка выхода на поверхность могут быть заданы уже после окончания облучения. Канал искрового разряда может быть выведен на поверхность противоположную облучаемой, через слой материала, вообще не подвергавшийся облучению, а также одновременно в нескольких местах с образованием независимых древовидных структур. Вместе с тем древовидная структура возникает только в той области, где существует объемный заряд.

Следует отметить, что электрический разряд в ПММА сопровождается значительной деструкцией материала, о чем свидетельствует не только растрескивание, но и образование большого количества газообразных продуктов разложения. В течение нескольких суток после прекращения разряда авторами данной работы наблюдалось выделение пузырьков газа из каналов разряда в образце, помещенном в вазелиновое масло. При этом объем выделившихся газов существенно (на порядки) превышает объем, рассчитанный на основании известных значений радиационнохимического выхода в ПММА.

Эти данные, а также (как показано ниже) факт образования древовидной структуры в облученных неорганических диэлектриках (силикатное стекло) исключают радиационнохимическую природу исследуемого явления трещинообразования. На это указывает также то обстоятельство, что возникновение древовидных структур не удается наблюдать при воздействии электромагнитных излучений и нейтронов.

Время, необходимое для накопления объемного заряда до пробойного значения, определяется интенсивностью излучения, а также скоростью диффузии и дрейфа носителей к поверхности. Равновесная величина объемного заряда при равенстве скоростей «накачки» и стекания на поверхность должна уменьшаться с ростом температуры и при достаточно высоких температурах окажется ниже, чем это необходимо для реализации пробоя. Именно этим, по мнению авторов данной работы, объясняется отмеченное в работе [1] прекращение образования каналов при повышении температуры. При измерении скорости уменьшения объемного заряда после прекращения облучения образца в «допробойном» состоянии авторами настоящей статьи установлено, что если при комнатной температуре заряд сохраняется в образце около $1-2 \text{ ч}$, то при повышении ее на несколь-

* В этом случае источником света является искровой разряд (внешние источники света отсутствуют).



Р и с. 1. Схема эксперимента:

1 — электрод; 2 — светонепроницаемый кожух; 3 — исследуемый образец; 4 — диафрагма; 5 — зеркало; 6 — воздушный светопровод; 7 — фотоумножитель; 8 — двухлучевой осциллограф.

ко десятков градусов спад происходит в течение нескольких секунд.

Между поверхностью и областью, занятой древовидными трещинами, образуется «мертвая область», не затронутая разрядами. Это объясняется тем, что большая часть заторможенных в ней электронов успевает стечь на поверхность. При понижении температуры снижается скорость дрейфа носителей заряда, что приводит к уменьшению величины мертвой области. Если при комнатной температуре величина мертвой области составляет несколько миллиметров (см. рис. 2, *з*), то при температуре 120° К она уменьшается до долей миллиметра.

Установленный механизм образования древовидных трещин дает основания предположить, что описанное явление должно протекать во многих как органических, так и неорганических диэлектриках. В связи с этим были исследованы полистирол, отвержденная эпоксидная смола и силикатное стекло, причем во всех перечисленных материалах происходило образование древовидной структуры (рис. 2, *б*, *в*). Существенно, что все эти материалы при обычной температуре находятся в застеклованном состоянии. При температурах ниже температуры стеклования наблюдалась аналогичная картина разряда в полиэтилене и каучуке.

Однако в некоторых материалах получить древовидную структуру не удается даже при температуре существенно ниже температуры стеклования. Особенно примечателен в этом отношении поликарбонат — полимер, имеющий температуру стеклования около +150° С и диэлектрические характеристики, практически не отличающиеся от характеристик ПММА или полисти-

Р и с. 2. Искровой разряд и древовидные трещины в диэлектриках, облученных широким пучком электронов с энергией 5 Мэв при комнатной температуре:

а — искровой разряд в ПММА; *б* — древовидная структура, образовавшаяся после разряда в том же образце (освещение при помощи внешнего источника); *в* — древовидная структура в ПММА после нанесения дефекта на боковую поверхность; *г* — древовидная структура, образовавшаяся в ПММА; видна «мертвая область» (при облучении образцов пучок электронов падал нормально к верхней грани); *д* — древовидные трещины в полистироле; *е* — то же в силикатном стекле (в случае *д* и *е* пучок электронов падал нормально к плоскости чертежа).

рола. Известно, что этот материал обладает очень большой по сравнению с другими полимерами удельной ударной вязкостью. Можно предположить, что в процессе формирования разряда образование канала существенным образом зависит от скорости релаксации механических напряжений, возникающих в короткие промежутки времени; если эти скорости достаточно велики, канал не образуется (например, в поликарбонате, а также в других полимерах при достаточно высоких температурах). Различное поведение материалов с одинаковыми электрической прочностью и электропроводностью свидетельствует о том, что механизмы формирования пробоя при наложении внешнего электрического поля и специфических условиях, рассмотренных в настоящей статье, когда в диэлектрике существует объемный заряд, могут отличаться.

Следует также отметить, что возникающий при термализации электронов объемный заряд (даже если он не приводит к электрическому пробую) может существенно влиять на физико-химические свойства диэлектрика. В частности, возможно существенное изменение его механической и электрической прочности.

Протекание таких процессов, как дезактивация возбужденных состояний, химические реакции, люминесценция и электропроводность, также может зависеть от величины и распределения объемного заряда, возникающего в процессе облучения.

Аналогичные явления, хотя и в меньшей степени, могут наблюдаться при воздействии электромагнитных излучений в тех случаях, когда сильно нарушено электронное равновесие.

Авторы выражают признательность акад. И. В. Обреимову за обсуждение работы.

Поступило в Редакцию 16/IX 1969 г.
В окончательной редакции 21/I 1970 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. Б. Л. Цетлин, Н. Г. Зайцева, В. А. Каргин. «Докл. АН СССР», 143, 380 (1957).
2. А. Б. Таубман, Л. П. Янова. В сб. «Тр. I Всесоюзного совещания по радиационной химии». М., Изд-во АН СССР, 1958, стр. 287.
3. В. G r o s s. J. Polymer Sci., XXVII, 135 (1958).