

О влиянии электронно-дырочной рекомбинации и частичных разрядов на долговечность полимерных диэлектриков в переменном электрическом поле

ПАХОТИН В.А.¹, СЕМЕНОВ С.Е.^{1,2}, СУДАРЬ Н.Т.²

¹ФТИ им. А.Ф. Иоффе, Санкт-Петербург, Россия

²СПбПУ, Санкт-Петербург, Россия

Электронно-дырочная рекомбинация, возникающая в полимерных диэлектриках в сильных электрических полях, и слабые частичные разряды в этих материалах рассматриваются как возможные дополнительные факторы, ускоряющие процесс старения полимеров в переменном электрическом поле по сравнению с постоянным. Выполнены оценки влияния данных факторов на скорость образования дефектов (разрывов макромолекул). Показано, что в полимерных диэлектрических пленках при концентрации микропор 10^4 – 10^5 см⁻³ и интенсивности частичных разрядов $\sim 0,01$ нКл основным фактором, определяющим снижение электрической долговечности в переменном электрическом поле, следует считать процессы электронно-дырочной рекомбинации, приводящие к разрыву связей в возбужденных макромолекулах, а не эрозию полимера в результате воздействия частичных разрядов. В предположении, что пробой происходит при достижении критической концентрации дефектов, возникающих в полимерном диэлектрике за счет электронно-дырочной рекомбинации, получено соотношение для расчета полевой зависимости долговечности на переменном напряжении. Показано, что результаты расчетов согласуются с известными экспериментальными данными.

К л ю ч е в ы е с л о в а: полимеры, электронно-дырочная рекомбинация, частичные разряды, переменное напряжение, электрическая долговечность

Проблема электрической прочности и работоспособности полимерных диэлектриков в сильных электрических полях привлекает внимание исследователей ввиду ее несомненной научной и практической значимости. Процессы электрического разрушения и пробоя изучаются в условиях воздействия на полимерные диэлектрики постоянных, переменных и импульсных электрических полей. Долгое время старение полимеров как в постоянных, так и в переменных электрических полях связывали исключительно с воздействием частичных разрядов (ЧР), возникающих в порах материала или в зазорах полимер–электрод. Однако совершенствование технологии изготовления полимерных изоляционных материалов, в частности пленок и экспериментальных методов изучения их свойств, позволило снизить интенсивность ЧР до уровня 10^{-15} – 10^{-14} Кл. Это привело к значительному возрастанию электрической долговечности (времени от момента приложения напряжения до пробоя) диэлектрика, которая в переменном электрическом поле все же оказалась меньше, чем в постоянном [1, 2].

Следует отметить, что большее внимание всегда уделялось изучению в условиях подавления ЧР электрической прочности полимерных диэлектриков в постоянном электрическом поле. Ситуация с изучением в этих условиях электрической прочности полимеров

на переменном напряжении оказалась более сложной, и публикаций по данной теме заметно меньше. Существует несколько точек зрения о причинах ускоренного старения полимеров в переменном электрическом поле. Высказывается мнение, что несмотря на подавление ЧР до низкого уровня, старение полимеров все же происходит именно под их воздействием, по крайней мере, ЧР можно рассматривать как дополнительный фактор, ускоряющий процесс электрического старения этих диэлектриков [3–7]. В качестве другой причины, ускоряющей электрическое старение полимеров в переменном электрическом поле, рассматривают выделение энергии при рекомбинации инжектированных в полимерный диэлектрик электронов и дырок [8–10]. Полагают при этом, что безызлучательная релаксация электронных возбужденных состояний вызывает разрывы связей в макромолекулах и образование свободных радикалов, что приводит к образованию в полимерном диэлектрике глубоких электронных ловушек. В результате увеличиваются скорость ионизации макромолекул за счет перехода электронов на эти ловушки и последующий термофлуктуационный распад образующихся молекулярных ионов. Следствием этих процессов и является снижение электрической прочности полимеров [9].

Представляет интерес сопоставить эффективность воздействия указанных факторов на процесс электрического старения полимеров в переменном электрическом поле. Статья посвящена выяснению вопроса о том, в какой мере ЧР низкого уровня и электронно-дырочная рекомбинация способны снизить электрическую долговечность полимеров в переменном электрическом поле.

Постановка задачи. Существование зависимости электрической долговечности полимеров от напряженности как постоянного, так и переменного электрического поля в условиях подавления ЧР [2, 11, 12] позволяет утверждать, что их электрическое старение обусловлено процессом накопления дефектов (разрывов макромолекул), а пробой происходит при достижении некоторой критической концентрации дефектов N_{cr} . Значение N_{cr} по данным работ [11–13] составляет 10^{17} – 10^{18} см⁻³. Скорость накопления дефектов зависит от напряженности электрического поля и в переменном поле (вследствие реализации дополнительного механизма распада макромолекул) она выше, чем в постоянном. Учитывая это, скорость накопления дефектов в единице объема полимера в переменном поле можно представить как $w[F(t)] = w_+[F(t)] + \Delta w[F(t)]$. Здесь $w_+[F(t)]$ и $\Delta w[F(t)]$ – зависящая от напряженности электрического поля скорость накопления дефектов в изменяющемся со временем, но постоянном по знаку электрическом поле и дополнительная к ней скорость накопления дефектов в изменяющем знак переменном поле. Тогда

$$N_{cr} = \int_0^{t_{br}} w_+[F(t)] dt = \int_0^{t_{br}} [w_+[F(t)] + \Delta w[F(t)]] dt, \quad (1)$$

где t_{br} – электрическая долговечность.

Разделив правую и левую части (1) на N_{cr} , после преобразования получим

$$1 = \int_0^{t_{br}} \frac{dt}{N_{cr} / w_+[F(t)]} + \frac{1}{N_{cr}} \int_0^{t_{br}} \Delta w[F(t)] dt. \quad (2)$$

Пусть $F(t) = F_0 \sin \omega t$ – усредненное по толщине образца d мгновенное значение напряженности электрического поля частотой $f(\omega = 2\pi f)$, F_0 – его амплитудное значение, равное $F_0 = U_0/d$ (U_0 – амплитуда воздействующего на образец переменного напряжения).

Упрощая ситуацию, примем, что и на положительном, и на отрицательном полупериодах напряжения скорость накопления дефектов одинакова. Тогда каждый интеграл в выражении (2) можно представить в виде суммы n интегралов на временном интервале от 0 до $T/2$, где T – период переменного напряжения. Заметим, что отношение $N_{cr} / w_+[F(t)]$ определяет долговечность полимерного диэлектрика при определенном значении постоянного электрического поля напряженностью F .

Экспериментально установлено [2, 9], что в постоянном поле

$$t_{br} = A \exp(-bF), \quad (3)$$

где A и b – константы, зависящие от температуры и природы полимера, значения которых определяются из экспериментов.

Например, на основе результатов работы [2] для полиэтилентерефталата (ПЭТФ) при комнатной температуре были определены $A \approx 2,3 \cdot 10^8$ с и $b = 3,0$ см/МВ. Учитывая (3) и полагая, что $t_{br} = n\pi/\omega$, выражение (2) может быть преобразовано к виду

$$1 = \left[\frac{1}{A} \int_0^\pi \exp(bF_0 \sin x) dx + \frac{\omega}{N_{cr}} \int_0^{T/2} \Delta w[F(t)] dt \right] \frac{t_{br}}{\pi}. \quad (4)$$

Из соотношения (4) следует, что

$$t_{br} = \frac{\pi A}{\left[J(F_0) + \omega N_{cr}^{-1} A \int_0^{T/2} \Delta w[F(t)] dt \right]}. \quad (5)$$

Здесь обозначено $J(F_0) = \int_0^\pi \exp(bF_0 \sin x) dx$, причем $J(F_0)$ зависит только от амплитуды переменного электрического поля и не зависит от частоты. Зависимости $J(F_0)$ соответствует кривая 1 на рис. 1.

В выражении (5) интеграл $\int_0^{T/2} \Delta w[F(t)] dt$ определяет число дефектов, возникающих в единице объема полимера за полупериод напряжения вследствие существования в переменном электрическом поле какого-либо дополнительного фактора, ускоряющего электрическое старение. Поэтому для оценки долговечности полимерного диэлектрика в переменном поле с использованием (5) следует воспользоваться известными из литературы экспериментальными данными о долговечности полимеров в постоянном поле в условиях подавления ЧР, а также данными либо об электролюминесценции (ЭЛ) полимеров в переменном электрическом поле, либо об эрозии полимеров в переменном поле при воздействии на них слабых ЧР.

Влияние электронно-дырочной рекомбинации.

Рассмотрим в качестве причины ускорения старения полимеров в переменном электрическом поле выделение энергии при электронно-дырочной рекомбинации. Этот процесс в переменном электрическом поле всегда приводит к возникновению достаточно интенсивной электролюминесценции [14–17]. Примем, что при ее регистрации число квантов $L(F_0, f)$, фиксируемых в единицу времени, пропорционально числу дефектов, возникающих за счет рекомбинационных процессов, т. е.

$$L(F_0, f) = 2V_b \beta f \int_0^{T/2} \Delta w[F(t)] dt, \quad (6)$$

где V_b – объем области полимера, из которой регистрируется свечение; β – внешний квантовый выход ЭЛ,

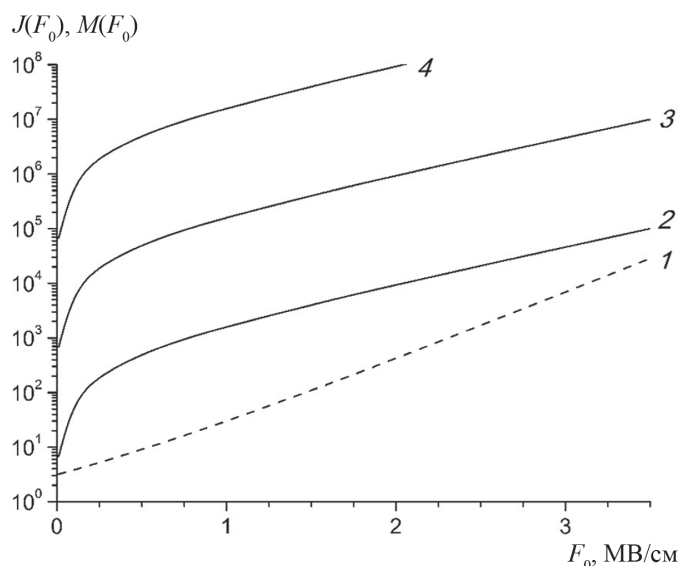


Рис. 1. Зависимости $J(F_0)$ (кривая 1) и $M(F_0)$ при значениях $\beta V_b N_{cr}$, равных 10^3 (кривая 2), 10^5 (кривая 3), 10^7 (кривая 4)

Fig. 1. Dependences of $J(F_0)$ (curve 1) and $M(F_0)$ at values of $\beta V_b N_{cr}$ equal to 10^3 (curve 2), 10^5 (curve 3), and 10^7 (curve 4)

значение которого оценивается авторами [15, 16] в пределах 10^{-6} – 10^{-4} .

Для аппроксимации зависимости $L(F_0)$ воспользуемся, например, данными об ЭЛ пленки ПЭТФ в переменном поле частотой 50 Гц [17]. Зависимость $L(F_0)$ может быть аппроксимирована выражением

$$L(F_0) \approx \gamma \left[\exp \left(\lambda \frac{\sqrt{2}}{2} F_0 \right) - 1 \right], \quad (7)$$

где $\gamma = 6 \text{ с}^{-1}$; $\lambda = 2,2 \text{ см/МВ}$.

С учетом соотношений (6) и (7) второе слагаемое в знаменателе (5) примет вид

$$M(F_0) = \frac{\pi \gamma A}{N_{cr} V_b \beta} \left[\exp \left(\lambda \frac{\sqrt{2}}{2} F_0 \right) - 1 \right]. \quad (8)$$

Для численной оценки (8) необходимо определить размеры активной области вблизи электродов V_b , т. е. области, где развиваются процессы рекомбинации зарядов и в которой регистрируется свечение. Авторы [6] отмечают, что ЭЛ на переменном напряжении возникает в приповерхностной области полимера, глубина которой не превышает глубину прорастания наименее подвижного инжектированного полимер заряда. Подвижность электронов и дырок в полимерах мала, например, в ПЭТФ наиболее подвижными являются электроны, причем даже в сильных электрических полях их дрейфовая подвижность μ составляет $\sim 2 \cdot 10^{-9} \text{ см}^2/(\text{В} \cdot \text{с})$ [19]. Поэтому в переменном электрическом поле частотой 50 Гц и амплитудой $\sim 5 \text{ МВ/см}$ глубина прорастания заряда за время, равное полупериоду действующего напряжения, не превысит 10 мкм [10].

Изображение поверхности полимерной пленки, в которой на переменном напряжении возникает ЭЛ

[6], показывает, что в переменном электрическом поле свечение наблюдается на многочисленных локальных участках поверхности пленки, т. е. светится лишь часть площади образца. По мнению авторов [6], свечение возникает в областях локального усиления электрического поля, где интенсивно происходит инжекция носителей заряда. Поскольку в дальнейшем в одной из таких областей происходит пробой, то линейный размер локальной области свечения можно считать сопоставимым с диаметром канала пробоя, размеры которого в полимерных пленках составляют 1–10 мкм. Учитывая большое количество таких локальных участков, распределенных по поверхности пленки, объем активной области V_b можно оценить в 10^{-8} – 10^{-7} см^3 .

На рис. 1 (кривые 2–4) представлены зависимости $M(F_0)$, рассчитанные при различных значениях произведения $\beta V_b N_{cr}$ и указанных выше значениях A , γ и λ . Сравнение величин $J(F_0)$ и $M(F_0)$, представленных на рис. 1, дает основание утверждать, что во всей области изменения F_0 выполняется условие $J(F_0) \ll M(F_0)$, т. е. распад макромолекул в переменном электрическом поле в основном будет обусловлен рекомбинационными процессами, поэтому выражение (5) для расчета электрической долговечности в переменном электрическом поле может быть представлено в виде

$$t_{br}(F_0) = \frac{\beta V_b N_{cr}}{\gamma \left[\exp \left(\sqrt{2} \lambda F_0 / 2 \right) - 1 \right]}. \quad (9)$$

Соотношение (9) может быть использовано для моделирования зависимости t_{br} от амплитуды переменного поля. Очевидно, что для оценки долговечности полимеров в переменном электрическом поле необходимо проанализировать экспериментальные данные об интенсивности ЭЛ и ее зависимости от напряжения.

Рассчитаем зависимость $t_{br}(F_0)$ при различных значениях параметров β , V_b и N_{cr} и сравним результаты расчетов с известными экспериментальными данными о долговечности пленки ПЭТФ толщиной 50 мкм на переменном напряжении той же частоты 50 Гц и температуре 293 К при подавлении ЧР до уровня $\sim 10^{-14}$ Кл [2]. Расчеты были выполнены для указанных выше значений параметров A , b , γ , λ и при различных значениях произведения $\beta V_b N_{cr}$.

Результаты расчета представлены на рис. 2, где темные точки соответствуют экспериментальным данным, заимствованным из [2]. В полулогарифмических координатах результаты эксперимента могут быть аппроксимированы ломаной линией 1, состоящей из трех линейных участков. Кривые 2–4 рис. 2 соответствуют рассчитанным по (9) зависимостям $t_{br}(F_0)$ при $\beta V_b N_{cr}$, равным $2,5 \cdot 10^4$, $2,5 \cdot 10^5$ и $2,5 \cdot 10^6$. Видно, что наилучшее согласие экспериментальных и расчетных данных наблюдается для кривой 2 в области второго линейного участка, т. е. при напряженности электрического поля 0,8–2,5 МВ/см. В полях, меньших 0,8 МВ/см (на первом участке ломаной), эксперимент демонстрирует быстрое возрастание электрической долговечности при уменьшении напряженности электрического поля. Отметим, что расчеты для этой области электрического поля приводят к качественно схожим результатам, но заметное возрастание $t_{br}(F_0)$ для расчетной кривой наблюдается при существенно меньшей напряженности поля. Можно предположить, что данное расхож-

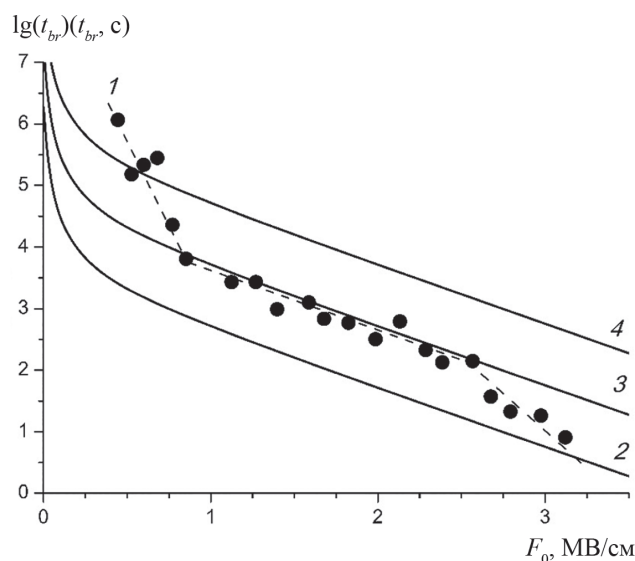


Рис. 2. Зависимость долговечности от напряженности электрического поля ПЭТФ при $f = 50$ Гц: 1 – экспериментальная зависимость, построенная по данным [2]; 2–4 – расчетные зависимости $t_{br}(F_0)$, выполненные по (9) при $\beta V_b N_{cr}$, равным $2,5 \cdot 10^4$, $2,5 \cdot 10^5$ и $2,5 \cdot 10^6$

Fig. 2. The dependence of durability on the electric field strength of PET at $f = 50$ Hz: 1 – experimental dependence constructed according to the data of [2]; 2–4 – calculated dependences $t_{br}(F_0)$, performed according to (9) with $\beta V_b N_{cr}$ equal to $2,5 \cdot 10^4$, $2,5 \cdot 10^5$ and $2,5 \cdot 10^6$

дение экспериментальных и расчетных зависимостей $t_{br}(F_0)$ связано с упрощенной аппроксимацией полевой зависимости яркости ЭЛ ПЭТФ, поскольку в данных расчетах предполагалось равномерное снижение яркости ЭЛ при уменьшении напряженности электрического поля согласно (8). Авторы [6], например, обращают внимание на тот факт, что в слабых переменных электрических полях основной вклад в светоотдачу вносит уже не возбуждение центров люминесценции материала со спектральными характеристиками, характерными для самого полимера, а возбуждение поверхностных плазмонов за счет инжекционного тока с типичным излучением в красной части оптического спектра (700–800 нм). Изменение основного механизма светоотдачи приведет к уменьшению доли энергии, затрачиваемой на деструкцию макромолекул, снижению $\Delta w[F(t)]$ и, как следствие, к возникновению излома на зависимости $\lg[t_{br}(F_0)]$.

При $F_0 > 2,5$ МВ/см для кривой 2 также наблюдается расхождение результатов расчета с экспериментом. Расчеты приводят к большим значениям долговечности, причем на экспериментальной зависимости $\lg[t_{br}(F_0)]$ наблюдается излом, а расчетная зависимость $t_{br}(F_0)$, изображенная в полулогарифмических координатах, в этой области электрических полей практически линейна.

Экспериментально регистрируемый излом на рассматриваемой зависимости свидетельствует о том, что в сильном электрическом поле возникает еще один фактор, ускоряющий распад макромолекул. Например, в качестве такового можно рассматривать возбуждения полимерных молекул при соударении с электронами, ускоренными в межмолекулярных полостях, всегда существующих в полимерных материалах. При этом вероятность полевой ионизации макромолекул возрастет, что приведет и к возрастанию концентрации положительных молекулярных ионов, распадающихся по термофлуктуационному механизму [11, 19].

Влияние слабых частичных разрядов. Рассмотрим теперь ЧР как дополнительный фактор, ускоряющий процессы электрического старения полимеров на переменном напряжении, т. е.

$$\Delta w[F(t)] = w_{PD}[F(t)],$$

где $w_{PD}[F(t)]$ – дополнительная скорость накопления дефектов, обусловленная воздействием ЧР.

Слабые ЧР с кажущимся зарядом 10^{-15} – 10^{-14} Кл связаны с электрическими разрядами, сопровождающимися излучением, вызывающим эрозию полимерного диэлектрика [4]. Будем полагать, что в полимерном диэлектрике в результате технологических факторов возникают поры микронных размеров. В однородном электрическом поле пробивное напряжение поры связано с ее размерами и давлением газа законом Пашена [4, 5], который выполняется для широкого диапазона размеров пор, вплоть до единиц микрон. Известно, что

крупные поры пробиваются при значительно меньших напряженностях поля, чем мелкие. Поры с линейными размерами в направлении поля 1 мкм и менее можно считать «безопасными», поскольку они, по-видимому, не пробиваются в полях, реально используемых в опытах с полимерами [20].

Выражение для расчета долговечности полимеров, учитывающее влияние ЧР в переменном электрическом поле, можно представить в виде

$$t_{br} = \frac{\pi A}{\left[J(F_0) + \omega A N_{cr}^{-1} \int_0^{T/2} w_{PD}[F(t)] dt \right]}. \quad (10)$$

Интеграл $\int_0^{T/2} w_{PD}[F(t)] dt$ в (10) определяет число дефектов в единице объема диэлектрика, возникающих за счет действия ЧР за полупериод воздействующего на полимер электрического поля. Определим данное число дефектов:

$$\int_0^{T/2} w_{PD}[F(t)] dt = n' N N', \quad (11)$$

где n' – число ЧР за время $T/2$; N – число дефектов, возникающих в полимере под действием одного ЧР; N' – число полостей в единице объема, в каждой из которых возникают ЧР (определяется технологией изготовления полимерного диэлектрика).

При условии, что размеры полости d_v существенно меньше толщины диэлектрика d , справедливы соотношения [4]:

$$n' \approx 2F_{vm}/F_i \text{ и } F_{vm} \approx F_0 \varepsilon_D / \varepsilon_v, \quad (12)$$

где F_i – напряженность поля, при которой происходит электрический пробой газовой полости; F_{vm} – амплитуда напряженности электрического поля в полости; ε_D и ε_v – диэлектрические проницаемости полимерного диэлектрика и газа в полости.

Определим

$$N = G_w / 100,$$

где G – радиационный выход деструкции полимеров (число разрывов межатомных связей, возникающих при поглощении 100 эВ энергии ионизирующей частицы); W – энергия, поглощенная полимером, эВ. Полагая, что данная энергия равна энергии, выделяемой при одном ЧР, т.е. $W = F_i d_v q_{PD} / e$, и учитывая соотношение (12), получим

$$N N' = \frac{F_0 \varepsilon_D d_v q_{PD} G}{50 e \varepsilon_v} N'. \quad (13)$$

Соотношение (13) будем использовать при дальнейших расчетах, учитывая, что пробой поры происходит только при $F_{vm} \geq F_i$.

Отметим, что формулы для расчета электрической долговечности в переменном электрическом поле,

учитывающие различные физические механизмы ускорения процесса электрического старения, отличаются только вторыми слагаемыми в знаменателях. Рассмотрим их зависимость от величины F_0 . Обозначим $S(F_0) = 2\pi f A N_{cr}^{-1} n' N N'$. Расчеты $M(F_0)$ и $S(F_0)$ выполним на примере ПЭТФ для различных значений N' при $q_{PD} = 10^{-14}$ Кл. Примем для определенности размеры поры $d_v = 2$ мкм. Для поры таких размеров получим $F_i \approx 3$ МВ/см [20]. Полагая $\varepsilon_D = 3,1$ и $\varepsilon_v = 1$ при $F_0 = 1$ МВ/см, получим $F_{vm} = 3,1$ МВ/см, что согласно [20] превосходит значение F_i в полости указанных размеров. Для ПЭТФ примем значение $G = 0,4$ [21].

Результаты расчетов представлены на рис. 3. Они выполнены при $\beta V_b N_{cr} = 2,5 \cdot 10^5$, когда наблюдается наилучшее согласие расчетных и экспериментальных данных о долговечности полимерной пленки и для трех значений концентраций пор.

Видно, что во всем диапазоне изменения F_0 и при всех рассмотренных значениях N' выполняется соотношение $S(F_0) \ll M(F_0)$, т.е. влияние ЧР малой интенсивности на процессы дефектообразования пренебрежимо мало по сравнению с влиянием распада возбужденных молекул даже при очень высокой концентрации пор.

Выводы. Проведенный анализ влияния рекомбинационных процессов и слабых частичных разрядов на процессы дефектообразования в полимерных диэлектриках в переменном электрическом поле показал, что влияние ЧР малой интенсивности на эти процессы пренебрежимо мало по сравнению с влиянием распада возбужденных при электронно-дырочной рекомбинации молекул даже при очень высокой концентрации пор.

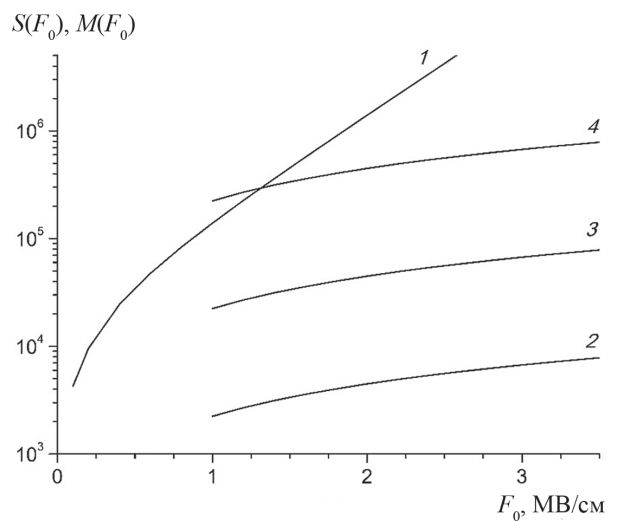


Рис. 3. Зависимость $M(F_0)$ при $\beta V_b N_{cr} = 2,5 \cdot 10^5$ (кривая 1) и зависимости $S(F_0)$ при различных значениях N' , равных: 10^4 см^{-3} (кривая 2), 10^5 см^{-3} (кривая 3), 10^6 см^{-3} (кривая 4)

Fig. 3. Dependence $M(F_0)$ at $\beta V_b N_{cr} = 2,5 \cdot 10^5$ (curve 1) and dependence $S(F_0)$ at different values of N' equal: 10^4 cm^{-3} (curve 2) and 10^6 cm^{-3} (curve 4)

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Борисова М.Э., Койков С.Н., Орос Я.** Закономерности электрического старения полиэтиленовой кабельной изоляции при отсутствии частичных разрядов. – Электричество, 1982, № 12, с. 53–59.
2. **Бережанский В.Б. и др.** Электрическое старение полимерных диэлектриков при подавлении частичных разрядов. – Высокомолекулярные соединения. Серия А, 1986, т. 26, № 10, с. 2163–2169.
3. **Maouix C., Laurent C.** Contribution of partial discharges to electrical breakdown of solid insulating materials. – IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, 1995, vol. 2, No. 4, pp. 641–652, DOI: 10.1109/94.407028.
4. **Кучинский Г.С.** Частичные разряды в высоковольтных конструкциях. Л.: Энергия, 1979, 224 с.
5. **Dissado L.A., Fothergill J.C.** Electrical Degradation and Breakdown in Polymers, Ed. G.C. Stevens. London, Peter Peregrinus Ltd., 1992, 601 p.
6. **Teyssedre G. et al.** AC and DC Electroluminescence in Insulating Polymers and Implication for Electrical Ageing. – Journal Physics D: Applied Physics, 2001, vol. 34, No. 14, pp. 2220–2229, DOI:10.1088/0022-3727/34/14/318.
7. **Danikas M.G.** Small Partial Discharges and their Role in Insulation Deterioration. – IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, 1997, vol. 4, No. 6, pp. 863–867, DOI: 10.1109/94.654733.
8. **Montanari G.C.** Bringing an Insulation to Failure: The Role of Space Charge. – IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, 2011, vol. 18, No. 2, pp. 339–364, DOI: 10.1109/TDEI.2011.5739438.
9. **Закревский В.А., Пахотин В.А., Сударь Н.Т.** Старение и разрушение (пробой) полимерных пленок в переменном электрическом поле. – Физика твердого тела, 2019, т. 61, № 10, с. 1953–1959.
10. **Qiao B., Laurent C., Teyssedre G.** Evidence of Exciton Formation in Thin Polypropylene Films under AC and DC Fields and Relationship to Electrical Degradation. – IEEE Transactions on Fundamentals and Materials, 2016, vol. 136, No. 2, pp. 74–80, DOI: 10.1109/ISEIM.2014.6870725.
11. **Zakrevskii V.A., Pakhotin V.A., Sudar N.T.** Ageing and Breakdown of Thin Insulating Polymer Films. – Journal of Applied Physics, 2014, vol. 115, No. 23, DOI:10.1063/1.4883365.
12. **Liufu D., Kao K.C.** Capacitance Transient Spectroscopy in Metal-Insulator-Metal Systems and Its Application to the Determination of Trap Parameters in Polyimide Films. – Journal of Applied Physics, 1999, vol. 85, No. 2, pp. 1089–1094, DOI:10.1063/1.369233.
13. **Пахотин В.А., Поздняков А.О., Сударь Н.Т.** Летучие продукты, образующиеся при электрическом пробое пленок полиэтилентерефталата и полипропилена в высоком вакууме. – Журнал технической физики, 2022, т. 92, № 10, с. 1556–1562.
14. **Alison J.M. et al.** Dynamic Bipolar Charge Recombination Model for Electroluminescence in Polymer Based Insulation during Electrical Tree Initiation. – Journal Physics D: Applied Physics, 1995, vol. 28, pp. 1693–1701.
15. **Lebey T., Laurent C.** Charge Injection and Electroluminescence as a Prelude to Dielectric Breakdown. – Journal of Applied Physics, 1990, vol. 68, No. 1, pp. 275–282, DOI:10.1063/1.347197.

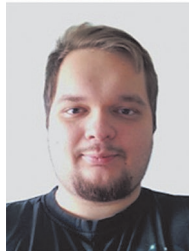
16. **Le Roy S., Teyssedre G., Laurent C.** Charge Transport and Dissipative Processes in Insulating Polymers: Experiments and Model. – IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, 2005, vol. 12, No. 4, pp. 644–654, DOI: 10.1109/TDEI.2005.1511090.
17. **Mary D., Albertini M., Laurent C.** Understanding Optical Emissions from Electrically Stressed Insulating Polymers: Electroluminescence in Poly (Ethylene Terephthalate) and Poly (Ethylene 2, 6-naphthalate) Films. – Journal of Physics D: Applied Physics, 1997, vol. 30, No. 2, pp. 171–184, DOI:10.1088/0022-3727/30/2/004.
18. **Абрамов В.Н. и др.** Подвижность носителей заряда в полимерах. – Высокомолекулярные соединения. Серия А, 1987, т. 29, № 2, с. 260–264.
19. **Семенов С.Е. и др.** Механизм развития импульсного пробоя в полимерных пленках. – Физика твердого тела, 2022, т. 64, № 8, с. 948–954.
20. **Сканави Г.И.** Физика диэлектриков (область сильных полей). М.: Гос. изд-во физико-математической лит-ры, 1958, 907 с.
21. **Боровков В.В. и др.** Радиационная стойкость органических материалов. М.: Энергоатомиздат, 1986, 272 с.

Поступила в редакцию [17.05.2023]
Принята к публикации [29.06.2023]

Авторы:



Пахотин Владимир Александрович – доктор техн. наук, старший научный сотрудник лаборатории физики прочности, Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург, Россия.



Семенов Сергей Евгеньевич – младший научный сотрудник лаборатории физики прочности, Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН; аспирант Высшей школы электроники и микросистемной техники, Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого, Санкт-Петербург, Россия.



Сударь Николай Тобисович – доктор физ.-мат. наук, профессор Высшей школы электроники и микросистемной техники, Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого, Санкт-Петербург, Россия.

About the Influence of Electron-hole Recombination and Partial Discharges on the Durability of Polymer Dielectrics in an Alternating Electric Field

PAHOTIN Vladimir A. (*A.F. Ioffe Institute of Physics and Technology of the Russian Academy of Sciences, St. Petersburg, Russia*) – Senior Researcher at the Strength Physics Laboratory, Dr. Sci. (Phys.-Math.).

SEMENOV Sergey E. (*A.F. Ioffe Institute of Physics and Technology of the Russian Academy of Sciences; Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University, St. Petersburg, Russia*) – Junior Researcher at the Strength Physics Laboratory; Postgraduate Student.

SUDAR' Nikolay T. (*Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University, St. Petersburg, Russia*) – Professor of the Higher School of Electronics and Microsystem Engineering, Dr. Sci. (Physics and Mathematics), Professor.

Electron-hole recombination, which occurs in polymer dielectrics in strong electric fields, and weak partial discharges in these materials are considered as possible additional factors that accelerate the aging process of polymers in an alternating electric field compared to a constant one. The effect of these factors on the rate of formation of defects (ruptures of macromolecules) is estimated. It is shown that in polymer dielectric films at a concentration of micropores of $104\text{--}105\text{ cm}^{-3}$ and intensity of partial discharges of $\sim 0.01\text{ pC}$, the main factor determining the decrease in electrical durability in an alternating electric field should be considered the processes of electron-hole recombination, leading to the breaking of bonds in excited macromolecules, and not erosion of the polymer as a result of partial discharges. Assuming that breakdown occurs when a critical concentration of defects that arise in a polymer dielectric due to electron-hole recombination is reached, a relation is obtained for calculating the field dependence of durability at an alternating voltage. It is shown that the calculation results are consistent with the known experimental data.

Key words: polymers, electron-hole recombination, partial discharges, alternating voltage, electrical durability

REFERENCES

1. Borisova M.E., Koykov S.N., Oros Ya. *Elektrichestvo – in Russ. (Electricity)*, 1982, No. 12, pp. 53–59.
2. Berezhanskiy V.B. et al. *Vysokomolekulyarnye soedineniya. Seriya A – in Russ. (High-Molecular Compounds. Series A)*, 1986, vol. 26, No. 10, pp. 2163–2169.
3. Maoux C., Laurent C. Contribution of partial discharges to electrical breakdown of solid insulating materials. – *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, 1995, vol. 2, No. 4, pp. 641–652, DOI: 10.1109/94.407028.
4. Kuchinskiy G.S. *Chastichnye razryady v vysokovol'tnykh konstruksiyah* (Partial Discharges in High-Voltage Structures). L.: Energiya, 1979, 224 p.
5. Dissado L.A., Fothergill J.C. Electrical Degradation and Breakdown in Polymers, Ed. G.C. Stevens. London, Peter Peregrinus Ltd., 1992, 601 p.
6. Teyssedre G. et al. AC and DC Electroluminescence in Insulating Polymers and Implication for Electrical Ageing. – *Journal Physics D: Applied Physics*, 2001, vol. 34, No. 14, pp. 2220–2229, DOI:10.1088/0022-3727/34/14/318.
7. Danikas M.G. Small Partial Discharges and their Role in Insulation Deterioration. – *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, 1997, vol. 4, No. 6, pp. 863–867, DOI: 10.1109/94.654733.
8. Montanari G.C. Bringing an Insulation to Failure: The Role of Space Charge. – *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, 2011, vol. 18, No. 2, pp. 339–364, DOI: 10.1109/TDEI.2011.5739438.
9. Zakrevskiy V.A., Pahotin V.A., Sudar' N.T. *Fizika tverdogo tela – in Russ. (Solid State Physics)*, 2019, vol. 61, No. 10, pp. 1953–1959.
10. Qiao B., Laurent C., Teyssedre G. Evidence of Exciton Formation in Thin Polypropylene Films under AC and DC Fields and Relationship to Electrical Degradation. – *IEEE Transactions on Fundamentals and Materials*, 2016, vol. 136, No. 2, pp. 74–80, DOI: 10.1109/ISEIM.2014.6870725.
11. Zakrevskii V.A., Pakhotin V.A., Sudar N.T. Ageing and Breakdown of Thin Insulating Polymer Films. – *Journal of Applied Physics*, 2014, vol. 115, No. 23, DOI:10.1063/1.4883365.
12. Liufu D., Kao K.C. Capacitance Transient Spectroscopy in Metal-Insulator-Metal Systems and Its Application to the Determination of Trap Parameters in Polyimide Films. – *Journal of Applied Physics*, 1999, vol. 85, No. 2, pp. 1089–1094, DOI:10.1063/1.369233.
13. Pahotin V.A., Pozdnyakov A.O., Sudar' N.T. *Zhurnal tekhnicheskoy fiziki – in Russ. (Journal of Technical Physics)*, 2022, vol. 92, No. 10, pp. 1556–1562.
14. Alison J.M. et al. Dynamic Bipolar Charge Recombination Model for Electroluminescence in Polymer Based Insulation during Electrical Tree Initiation. – *Journal Physics D: Applied Physics*, 1995, vol. 28, pp. 1693–1701.
15. Lebey T., Laurent C. Charge Injection and Electroluminescence as a Prelude to Dielectric Breakdown. – *Journal of Applied Physics*, 1990, vol. 68, No. 1, pp. 275–282, DOI:10.1063/1.347197.
16. Le Roy S., Teyssedre G., Laurent C. Charge Transport and Dissipative Processes in Insulating Polymers: Experiments and Model. – *IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation*, 2005, vol. 12, No. 4, pp. 644–654, DOI: 10.1109/TDEI.2005.1511090.
17. Mary D., Albertini M., Laurent C. Understanding Optical Emissions from Electrically Stressed Insulating Polymers: Electroluminescence in Poly (Ethylene Terephthalate) and Poly (Ethylene 2, 6-naphthalate) Films. – *Journal of Physics D: Applied Physics*, 1997, vol. 30, No. 2, pp. 171–184, DOI:10.1088/0022-3727/30/2/004.
18. Abramov V.N. et al. *Vysokomolekulyarnye soedineniya. Seriya A – in Russ. (High-Molecular Compounds. Series A)*, 1987, vol. 29, No. 2, pp. 260–264.
19. Semenov S.E. et al. *Fizika tverdogo tela – in Russ. (Solid State Physics)*, 2022, vol. 64, No. 8, pp. 948–954.
20. Skanavi G.I. *Fizika dielektrikov (oblast' sil'nyh poley) (Physics of Dielectrics (the Area of Strong Fields))*. M.: Gos. izd-vo fiziko-matematicheskoy lit-ry, 1958, 907 p.
21. Borovkov V.V. et al. *Radiatsionnaya stoykost' organicheskikh materialov* (Radiation Resistance of Organic Materials). M.: Energoatomizdat, 1986, 272 p.

Received [17.05.2023]

Accepted [29.06.2023]