

05;12

Влияние длительности переднего фронта импульса напряжения на электрический пробой монокристаллов перхлората аммония

© И.Г. Ханефт, А.В. Ханефт

Кемеровский государственный университет,
650043 Кемерово, Россия

(Поступило в Редакцию 1 декабря 1998 г.)

Представлены экспериментальные результаты исследования влияния длительности переднего фронта импульса напряжения (τ) на электрический пробой монокристаллов перхлората аммония. Эксперименты показали, что при $\tau < 1.5 \mu\text{s}$ происходит увеличение пробивного поля с уменьшением τ . При $\tau > 1.5 \mu\text{s}$ электрическая прочность перхлората аммония не зависит от τ . Показано, что электрический пробой перхлората аммония происходит в результате ударного размножения электронов. Оценены коэффициент ударного размножения электронов от электрического поля и диаметр сквозного канала, образующегося в перхлорате аммония при электрическом пробое.

Перхлорат аммония (ПХА) относится к числу соединений, обладающих большим избытком кислорода. Применение перхлората аммония в качестве окислительного компонента смесевых твердых ракетных топлив [1,2] требует всестороннего изучения действия различных факторов, в том числе и электрического поля [3], влияющих на его термическую устойчивость. В работах [4,5] изучалась электрическая прочность как монокристаллов, так и поликристаллических прессованных образцов ПХА в зависимости от межэлектродного расстояния L и плотности ρ при длительности переднего фронта импульса напряжения $\tau = 1.5 \mu\text{s}$. Причем электрическая прочность монокристаллов ПХА при $L < 0.04 \text{ cm}$ значительно превышала электрическую прочность прессованных таблеток перхлората аммония. Это естественно, так как электрический пробой прессованных поликристаллических образцов начинается в воздушных порах [6,7]. В работе [4] было показано, что электрический пробой кристаллов перхлората аммония не является тепловым. В данной работе представлены экспериментальные результаты по влиянию длительности переднего фронта импульса напряжения на электрическую прочность кристаллов перхлората аммония. Для исследования электрической прочности монокристаллов ПХА использовались образцы, выращенные из пересыщенного водного раствора перхлората аммония. Выращенные кристаллы представляли собой бесцветные прозрачные пластинки. Электрическое поле прикладывалось к кристаллу перпендикулярно плоскости (210). В монокристалле под микроскопом предварительно высверливались лунки с двух противоположных сторон диаметром $d = 0.7 \text{ mm}$, глубина которых определялась необходимым межэлектродным расстоянием. Насыщенный раствор ПХА (электролит), находящийся в лунках, служил электродом. Поляризационная микроскопия показала, что остаточных механических напряжений в межэлектродном промежутке кристалла нет [4]. Зависимость напряжения пробоя диэлектрика U^* определялась на фронте импульса напряжения амплитудой $U_0 = 10 \text{ kV}$. Длительность переднего фронта импульса напряжения τ определялась при

холостом ходе генератора. В зависимости от разброса напряжения пробоя ПХА на каждую экспериментальную точку бралось порядка 11–20 образцов. При пробое в объеме образца наблюдалась электрическая искра. Изучение кристаллов ПХА после электрического пробоя под микроскопом показало, что электрический пробой "тонких" образцов ($L < 0.02 \text{ cm}$) приводит к выгоранию образцов с образованием сквозного канала. Причем диаметр выгоревшего канала увеличивается примерно от 3 до $5 \mu\text{m}$ при уменьшении L от 0.02 до 0.005 cm соответственно. Для "толстых" образцов ($L > 0.02 \text{ cm}$) сквозной канал пробоя виден не был. Возможно, это связано с недостаточной разрешающей способностью используемого микроскопа (цена деления окулярного микроскопа $5 \mu\text{m}$). Однако на поверхности кристаллов в точке пробоя наблюдалось желтое пятно, которое свидетельствует об образовании хлора при пробое. Кроме того, для "толстых" образцов больше вероятность самозалечивания канала пробоя вследствие конденсации продуктов распада в канале.

Результаты эксперимента и их обсуждение

На рис. 1 приведены экспериментальные результаты измерения зависимости электрической прочности кристаллов перхлората аммония от длительности переднего фронта импульса напряжения при $L = 0.01$ (кривая 1) и 0.03 cm (кривая 2). Зависимость пробивного электрического поля E^* от τ равносильна зависимости электрической прочности от обратной величины скорости подъема напряжения на образце $(U_0/\tau)^{-1}$. Из рис. 1 видно, что при $\tau < 1.5 \mu\text{s}$ электрическая прочность ПХА возрастает с уменьшением длительности переднего фронта электрического импульса. При $\tau > 1.5 \mu\text{s}$ E^* перестает зависеть от длительности переднего фронта импульса напряжения. Причем время τ , при котором электрическая прочность кристаллов перхлората аммония перестает зависеть от τ , практически не зависит

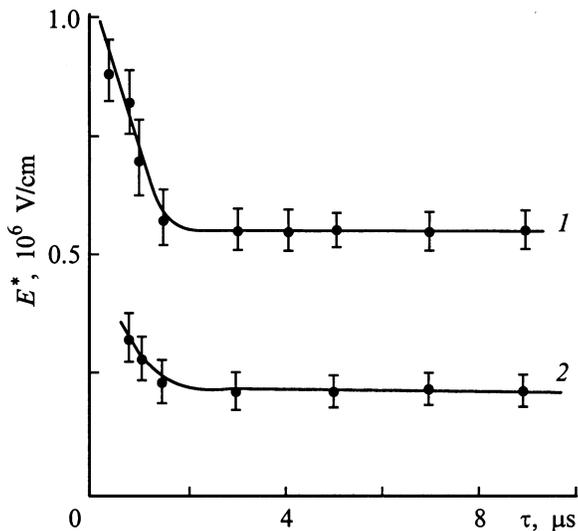


Рис. 1. Зависимость электрической прочности перхлората аммония от длительности переднего фронта электрического импульса при $L = 0.01$ (1) и 0.03 см (2).

от межэлектродного расстояния. Согласно работе [8], эффект немонотонной зависимости напряжения пробоя диэлектрика от обратной величины скорости подъема напряжения обусловлен поляризационной релаксацией диэлектрика. При этом, согласно [8], зависимость напряжения пробоя $U^* = f(\tau/U_0)$ должна иметь вид кривой с минимумом, который с увеличением толщины диэлектрика должен смещаться влево. Следовательно, в нашем случае поляризационная релаксация не влияет, а если и влияет, то незначительно на напряжение пробоя ПХА. Согласно [9], увеличение пробивного напряжения диэлектрика с уменьшением времени воздействия напряжения обусловлено запаздыванием развития электрического разряда. Время запаздывания электрического разряда включает в себя время формирования пробоя t^* и время статистического запаздывания t_s . Независимость напряжения пробоя от τ при больших τ , согласно [9], может являться следствием формирования объемного заряда, электрическое поле которого направлено против внешнего.

Определим качественную зависимость электрической прочности диэлектрика от скорости нарастания напряжения на образце. При этом будем полагать, что в ПХА, как и в щелочно-галлоидных кристаллах, время $t^* \gg t_s$ [9]. Будем считать в первом приближении, что напряжение на образце нарастает линейно $U(t) = ht$, где $h = U_0/\tau$ — скорость изменения напряжения на образце. Рост концентрации электронов в диэлектрике определяется ударной ионизацией. Тогда время формирования пробоя t^* определится из уравнения [10]

$$qv(t^*)n_0S \exp\left(\int_0^{t^*} \alpha v dt\right) = 0.1ht^*/r, \quad (1)$$

где n_0 — начальная концентрация электронов, инициирующих лавинную ионизацию; v — скорость дрейфа

электронов; r — сопротивление внешней электрической цепи; t^* — время, за которое ток достигнет 10% своего максимального значения; S — площадь электродов.

Учитывая, что $v(t^*) = \mu ht^*/L$, преобразуем уравнение (1) к виду

$$\exp\left(\mu \int_0^{t^*} \alpha E dt\right) = 0.1R/r, \quad (2)$$

где μ — подвижность электронов; $R_0 = L/(q\mu n_0 S)$ — сопротивление образца при $t = 0$.

Зададимся степенной зависимостью коэффициента ударного размножения электронов от электрического поля $\alpha = AE^m$ [11]. Тогда, интегрируя левую часть уравнения (2), получим после преобразований

$$t^* = B(\tau L/U_0)^{(m+1)/(m+2)}, \quad (3)$$

где

$$B = \left\{ [(m+2)/\mu A] \ln(0.1R_0/r) \right\}^{1/(m+2)}.$$

Константа B слабо зависит от L . Учитывая, что $E^* = t^*U_0/\tau L$, из выражения (3) получим

$$E^* = B(U_0/\tau L)^{1/(m+2)}. \quad (4)$$

Таким образом, из уравнения (4) следует, что чем меньше τ , тем больше электрическая прочность диэлектрика E^* , а чем меньше L , тем круче ведет себя зависимость E^* от τ . Данные выводы качественно согласуются с экспериментальными результатами, приведенными на рис. 1 в области $\tau < 1.5 \mu\text{s}$.

Ранее, в работе [4], путем анализа экспериментальных данных по электрическому упрочнению кристаллов перхлората аммония с уменьшением межэлектродного расстояния из условия электрического пробоя [11]

$$\alpha L = 1 \quad (5)$$

была проведена оценка коэффициента ударного размножения электронов α . При этом коэффициент ударного размножения электронов аппроксимировался следующей эмпирической зависимостью от электрического поля E [12,13]

$$\alpha = A \exp[-(b/E)^\gamma] \quad (6)$$

при $A = 1.82 \cdot 10^3 \text{ cm}^{-1}$, $b = 8.4 \cdot 10^6 \text{ V/cm}$ и $\gamma = 0.39$ [4]. Значение параметра $\gamma < 1$ для α теоретически предсказано в работе [14] для ионных кристаллов в случае рассеяния электронов на полярных оптических колебаниях решетки. Следует заметить, что типичные значения коэффициента ударного размножения электронов в твердых телах при электрическом пробое составляют порядка $10^3 - 10^4 \text{ cm}^{-1}$ [13], т.е. на порядок больше, чем это следует из критерия (5) в случае применения его для кристаллов перхлората аммония. Рассмотрим на примере каменной соли, насколько правомочно

определение параметров A , b и γ для коэффициента ударного размножения электронов из условия электрического пробоя диэлектриков (5). Для кристалла NaCl известны экспериментальные данные по зависимости электрической прочности от межэлектродного расстояния и коэффициент ударного размножения электронов $\alpha = 2 \cdot 10^5 \exp(-1.1 \cdot 10^7/E) \text{ cm}^{-1}$ [15]. Проведенная нами обработка этих данных показала, что на интервале $10^{-2} \geq L \geq 5 \cdot 10^{-4} \text{ cm}$ имеется следующая взаимосвязь между α и L для NaCl:

$$\alpha L = K, \quad (7)$$

где константа $K \approx 10.9$.

Критерий электрического пробоя (7) качественно похож на известное условие лавино-стримерного (искрового) пробоя Мика для газов при атмосферном давлении $\alpha L \approx 20$ [16]. Таким образом, из сопоставления условий пробоя (5) и (7) следует, что критерий пробоя (5) позволяет правильно определить функциональную зависимость α от электрического поля (параметры b и γ), однако он занижает в K раз предэкспонент ударного размножения электронов A . Следовательно, для перхлората аммония истинное значение предэкспонента A будет примерно на порядок больше, чем полученное из условия электрического пробоя (5), т.е.

$$\alpha \approx 2 \cdot 10^4 \exp[-(8.4 \cdot 10^6/E)^{0.39}], \text{ cm}^{-1}. \quad (8)$$

Рассмотрим возможность применения выражения (4) для количественных оценок зависимости E^* от τ в перхлорате аммония. На рис. 2 представлена функциональная зависимость α от E для ПХА, рассчитанная по выражению (8). Из этого рисунка видно, что при $E > 200 \text{ kV/cm}$ коэффициент ударного размножения электронов α удовлетворительно аппроксимируется линейной зависимостью от электрического поля $\alpha \sim E$, т.е. $m = 1$. Таким образом, согласно (4), имеем для ПХА следующую взаимосвязь между двумя точками на кривой $E^* = f(\tau)$ в области $\tau < 1.5 \mu\text{s}$ при $L = \text{const}$

$$E_1^*/E_2^* = (\tau_2/\tau_1)^{1/3}. \quad (9)$$

Согласно рис. 1, для кривой 1 ($L = 0.01 \text{ cm}$) при $\tau_1 = 0.4 \mu\text{s}$ имеем $E_1^* = 905 \text{ kV/cm}$, при $\tau_2 = 1.5 \mu\text{s}$ имеем $E_2^* = 570 \text{ kV/cm}$. Отношения $E_1^*/E_2^* \approx 1.59$ и $(\tau_2/\tau_1)^{1/3} \approx 1.55$ близки и хорошо согласуются с равенством (9). Для кривой 2 ($L = 0.03 \text{ cm}$) равенство (9) выполняется несколько хуже. Так, при $\tau_1 = 0.8 \mu\text{s}$ и $E_1^* = 327 \text{ kV/cm}$, $\tau_2 = 1.55 \mu\text{s}$ и $E_2^* = 233 \text{ kV/cm}$ имеем $E_1^*/E_2^* \approx 1.44$, а $(\tau_2/\tau_1)^{1/3} \approx 1.25$. Возможно, это связано с тем, что при $\tau_1 = 0.8 \mu\text{s}$ и $L = 0.03 \text{ cm}$ напряжение пробоя перхлората аммония близко к амплитудному, т.е. в этом случае аппроксимация нарастания напряжения на образце линейной зависимостью является слишком грубым приближением.

Оценим диаметр сквозного канала d_k , который образуется при электрическом пробое перхлората аммония.

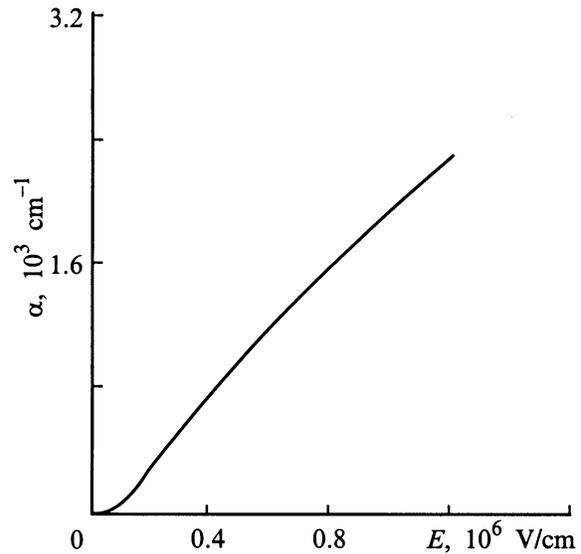


Рис. 2. Зависимость коэффициента ударного размножения электронов в перхлорате аммония от электрического поля.

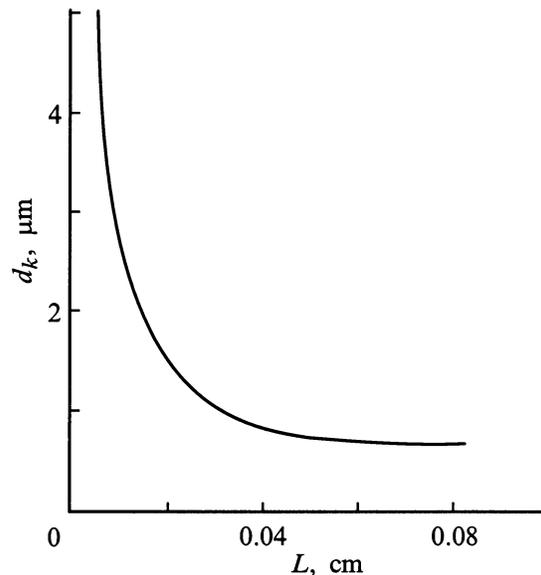


Рис. 3. Зависимость диаметра сквозного канала, образующегося в перхлорате аммония при электрическом пробое от межэлектродного расстояния (расчет).

Будем полагать, что в момент выгорания ПХА не происходит подвода значительной энергии в канал пробоя от генератора и выделяющаяся в канале пробоя энергия в основном обусловлена энергией, запасенной на геометрической емкости образца. В этом случае [17]

$$CU^{*2}/2 = \pi d_k^2 \rho LQ/4, \quad (10)$$

где C — геометрическая емкость образца; Q — количество теплоты, необходимое для нагрева и сублимации единицы массы вещества; ρ — плотность кристалла.

В случае диссоциативной сублимации ПХА в канале пробоя теплота $Q = 3394 \text{ kJ/kg}$ [2]. В выражении (10) остаточным напряжением после пробоя пренебрегли. Учитывая, что емкость образца $C = \epsilon\epsilon_0\pi d^2/4L$ из (10) получим выражение для d_k

$$d_k = dE^*(\epsilon\epsilon_0/2\rho Q)^{1/2}. \quad (11)$$

По формуле (11) рассчитана зависимость диаметра сквозного канала от пробивного электрического поля $E^*(L)$ при $\tau = 1.5 \mu\text{s}$ и $\rho = 1.95 \cdot 10^3 \text{ kg/m}^3$. На рис. 3 приведена зависимость d_k от межэлектродного расстояния. Как видно, диаметр сквозного канала с увеличением межэлектродного расстояния уменьшается, что качественно согласуется с результатами наблюдения. Для тонких образцов теоретическое значение d_k численно близко к экспериментальным значениям d_k . Следовательно, предположение, что в момент электрического пробоя образца выделяется энергия, запасенная на его геометрической емкости, верно.

Таким образом, качественное и количественное объяснения закономерностей электрического пробоя монокристаллов перхлората аммония от межэлектродного расстояния и длительности переднего фронта импульса напряжения с единых позиций позволяют сделать вывод, что электрический пробой монокристаллов ПХА обусловлен размножением электронов вследствие ударной ионизации.

Список литературы

- [1] Хайретдинов Э.Ф., Мулина Т.В., Болдырев В.В. // Механизм термического разложения перхлората аммония. Черноголовка: ИХФ АН СССР, 1981. С. 101–103.
- [2] Гусаченко Л.К., Зарко В.Е., Зырянов В.Я., Бобрышев В.П. Моделирование процессов горения твердых топлив. Новосибирск: Наука, 1985. 182 с.
- [3] Лаптенков Б.К., Раевский А.В., Манелис Г.Б., Абрюков С.А. // ДАН СССР. 1980. Т. 250. № 1. С. 1185–1187.
- [4] Ханефт И.Г., Ханефт А.В. // ЖТФ. 1995. Т. 65. Вып. 6. С. 200–203.
- [5] Сухушин Ю.Н., Ханефт И.Г. // ЖПМТФ. 1990. № 3. С. 12–15.
- [6] Сканава Г.И. Физика диэлектриков (область сильных полей). М.: Физматгиз, 1958. 908. с.
- [7] Стенгач В.В. // ПМТФ. 1972. № 1. С. 128–132.
- [8] Вершинин Ю.Н., Плешанов А.С. // Электричество. 1988. № 12. С. 54–57.
- [9] Воробьев А.А., Воробьев Г.А. Электрический пробой и разрушение твердых тел. М.: Высшая школа, 1966. 224 с.
- [10] Гейман В.Г., Генкин С.А., Клименко К.А. // ЖТФ. 1985. Т. 55. Вып. 12. С. 2347–2353.
- [11] Франц В. Пробой диэлектриков. М.: ИЛ, 1961. 208 с.
- [12] Грехов И.В., Сережкин Ю.Н. Лавинный пробой $p-n$ -перехода в полупроводниках. Л.: Энергия, 1980. 152 с.
- [13] Капассо Ф. // Техника оптической связи: Фотоприемники. / Под ред. У. Тсанга. М.: Мир, 1988. С. 17–207.
- [14] Чуенков В.А. // ФТТ. 1967. Т. 9. Вып. 1. С. 48–58.

- [15] Воробьев Г.А. // Изв. вузов. Физика. 1972. № 10. С. 158–160.
- [16] Райзер Ю.П. Физика газового разряда. М.: Наука, 1987. 592 с.
- [17] Воробьев Г.А., Мухачев В.А. Пробой тонких диэлектрических пленок. М.: Сов. радио, 1977. 70 с.