

电介质材料辐射感应电导率的模型研究*

全荣辉^{1,2)†} 韩建伟¹⁾ 黄建国¹⁾ 张振龙¹⁾

1) 中国科学院空间科学与应用研究中心, 北京 100080)

2) 中国科学院研究生院, 北京 100049)

(2007 年 3 月 14 日收到, 2007 年 6 月 9 日收到修改稿)

在传统的 Rose-Fowler-Vaisberg (RFV) 模型基础上引入辐射激发项, 解释了辐射感应电导率与辐射剂量率的指数关系及范围. 利用改进后的模型分析了不同辐射条件下材料感应电导率的变化情况, 其结果表明, 辐射剂量率主要影响感应电导率的大小, 对感应电导率的整体变化趋势无显著影响, 决定感应电导率长时间衰减的是材料载流子复合率.

关键词: Rose-Fowler-Vaisberg 模型, 辐射感应电导率, 辐射效应, 电导率

PACC: 7280S, 7280T, 7700

1. 引 言

辐射感应电导率 (radiation induced conductivity, RIC) 发现于上世纪初^[1], 主要特征是在辐射条件下, 电介质材料的电导率会明显增加几个量级, 增加的这部分电导率 (RIC) 与辐射剂量率成指数关系, 其指数值通常认为在 0.5 至 1 之间^[2-4]. 目前 RIC 实验涉及的材料主要有聚乙烯, 聚四氟乙烯, 聚酯薄膜, 氧化铝以及氦气等^[5-7], 在核反应堆材料绝缘, 航天材料的深层充放电防护^[8,9] 及辐射医疗器械制造等方面都有广泛的应用.

RFV 模型现在广泛应用于解释脉冲辐射和长期辐射下电介质材料 RIC 的变化过程^[10,11], 该模型揭示了辐射停止后 RIC 的长时间衰减过程, 衰减时间可以达到 10^5 s 以上, 与实验观察结果基本一致. 但是 RFV 模型在解释辐射剂量率的作用上存在不足, 无法解释 RIC 与辐射剂量率的指数变化关系^[12,13].

在载流子跳动传导模型 (hopping model) 观点启发下^[14-16], 本文引入辐射激发项, 与辐射剂量率相关联, 进而改进了 RFV 模型. 改进后的模型不仅阐明了 RIC 的长时间衰减特征, 而且体现了辐射剂量率与材料载流子复合指数对 RIC 的影响, 同时解释了 RIC 随辐射剂量率的指数关系及范围.

2. RFV 模型的改进

RFV 模型是上世纪 50 年代发展起来的, 广泛应用于描述 RIC 在辐射条件下的变化过程, 其主要方程如下^[11]:

$$\begin{aligned} \frac{dN}{dt} &= g_0 - k_r N_0 N, \\ \frac{\partial \rho(E, t)}{\partial t} &= k_c N_0 [M(E) - \rho(E, t)] \\ &\quad - \nu_0 \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \rho(E, t), \\ N &= N_0 + \int_0^\infty \rho(E, t) dE, \end{aligned}$$

式中 N 为总载流子浓度, N_0 为迁移率为 μ_0 的载流子浓度, g_0 为材料载流子激发率, k_r 为载流子复合系数, k_c 为载流子俘获率, $M(E)$ 是能量为 E 的能穴 (trap) 分布, $\rho(E, t)$ 为 t 时刻能穴 (energy trap) 中电子分布, ν_0 为跃迁频率因子, k 为波尔兹曼常数. 方程的初始条件为 $N(0) = N_0(0) = \rho(E, t) = 0$. RFV 模型中辐射效应通过 g_0 取不同的值而引入, RIC 表达式为 $\sigma_{ric} = \mu_0 N_0 e$, 由 $M(E)$, k_r 和 k_c 体现不同材料的影响. 由于 g_0 与辐射剂量率关系没有给出, 因而无法解释辐射剂量率与 RIC 的关系.

为了分析辐射剂量率在 RIC 产生过程中的作

* 中国科学院知识创新工程重要方向 (批准号 2527A5S 和 2520A1S) 资助的课题.

† E-mail: quansilin@sina.com

用,我们将电介质材料的载流子分为自激发载流子和辐射激发载流子.自激发载流子为材料在辐射前产生的本底载流子,这部分载流子与材料内能穴及电子分布有关,可由如下方程求得:

$$n_1 = \int_{-\infty}^{+\infty} N(E, u) f(E) dE,$$

$$N(E, u) = \frac{4\pi}{3} \left(\frac{u}{2\eta} \right)^3 \int_E^{E+KTu} g(\xi) \left(1 - \frac{\xi - E}{kTu} \right)^3 d\xi,$$

式中 n_1 为自激发载流子浓度, $N(E, u)$ 为跃迁概率参数小于 u 的材料能穴密度分布^[17], $f(E)$ 为 Fermi-Dirac 函数^[18], $g(E)$ 为材料内电子能量分布函数, η 为不同能穴之间标准距离参数.

在恒定电场和温度条件下,假设自激发载流子产生率 κ 在辐射前后不变.此时,在辐射期间增加的载流子称为辐射激发载流子.根据载流子跳动传导模型观点,只要电子周围存在足够多相似能量水平的能穴,电子就可以在这些能穴间跳跃形成载流子.而在辐射期间,材料由于辐射激发产生大量二次电子及空穴,我们认为这些二次电子也可以作为载流子,是辐射激发载流子产生的主要原因.由于辐射在固体材料中产生的二次电子与空穴总数只与能量损失有关^[19],因此可以认为辐射激发载流子的产生率与辐射剂量率 D 成正比.

载流子的复合率通常认为与载流子浓度 N 成指数关系,即 $k_r N^\gamma$, k_r 为复合系数, γ 为复合指数,对于一般的电介质材料, γ 的变化范围在 1—2 之间^[20].二次电子作为辐射激发载流子在传输过程中必然不断损失能量,最终的能量状态与材料自激发载流子或材料内束缚电子相同,因此可以假设辐射激发载流子与自激发载流子遵循同样的复合规律.

综合以上讨论,可以得到改进后的模型方程为

$$\frac{dn_1}{dt} = \kappa - k_r n_1^\gamma, \quad (1)$$

$$\frac{dn}{dt} = k_r n_1^\gamma + k_1 D(t) - k_r (n + n_1)^\gamma, \quad (2)$$

$$n_1 = \int_{-\infty}^{+\infty} N(E, u) f(E) dE, \quad (3)$$

$$\sigma_{\text{ric}} = \mu e n, \quad (4)$$

式中 n 为辐射激发载流子浓度, κ 为自激发载流子产生率, $k_1 D(t)$ 为辐射激发载流子产生率, k_1 为常数, $D(t)$ 为辐射剂量率随时间变化函数, n_1 为自激发载流子浓度, μ 为载流子迁移率, σ_{ric} 为辐射感应电导率.

3. 改进后模型的分析与计算

3.1. RIC 与辐射剂量率的指数关系

在辐射前,材料内自激发载流子浓度达到平衡时,由(1)式有

$$\kappa - k_r n_1^\gamma = 0,$$

即

$$n_1 = \left(\frac{\kappa}{k_r} \right)^{1/\gamma}. \quad (5)$$

而在辐射期间,当载流子浓度再次达到平衡时有

$$k_r n_1^\gamma + k_1 D - k_r (n + n_1)^\gamma = 0,$$

可得

$$n = \left(\frac{k_1 D + k_r n_1^\gamma}{k_r} \right)^{1/\gamma} - n_1. \quad (6)$$

将(5)式和(6)式代入(4)式则有

$$\sigma_{\text{ric}} = \mu e \left(\frac{k_1 D + \kappa}{k_r} \right)^{1/\gamma} - \mu e n_1. \quad (7)$$

由此得到辐射平衡时, RIC 的表达式(7).

在辐射平衡时,材料的温度和内部电场不变,而此时自激发载流子产生率 κ 及复合系数 k_r 基本不变,因而(7)式表明了辐射感应电导率 σ_{ric} 随着辐射剂量率 D 以 $1/\gamma$ 为指数变化,且由于 γ 在 1—2 间,指数范围应在 0.5—1 之间,这一结论符合了现有的实验结果.

3.2. RIC 的延迟效应

当 γ 值为 1 或 2 且 $D(t)$ 为常数时(1)式可以求出其解析解.考虑当 $\gamma = 1$ 时情况,由(2)式有

$$\frac{dn}{dt} = k_r n_1 + k_1 D - k_r (n + n_1).$$

若假设 n_1 在辐射期间变化不大,则有

$$n_1 = \frac{\kappa}{k_r}.$$

可以求得当材料开始辐射时,辐射激发载流子变化过程如下式:

$$n = k_1 D (1 - \exp(-k_r t)),$$

而当辐射截止时有

$$n = n_0 \exp(-k_r t), \quad (8)$$

n_0 为辐射截止时辐射激发载流子浓度,当 t 较小时,由于式中 k_r 量级在 10^{-8} 左右, $k_r t \ll 1$, 采用泰勒一级近似(8)式可以化为

$$n = \frac{n_0}{1 + k_r t'}$$

该式与文献 [20] 中 Fowler 公式一致, 阐明辐射停止后感应电导率的延迟效应^[21].

3.3. 模型与实验结果比较分析

辐射感应电导率现象是一个十分复杂的物理过程, 一方面它受到材料种类、温度、电场、辐射剂量等条件的影响, 另一方面由于辐射在材料内部造成缺陷和电子激发, 载流子浓度和复合率等参数在同时发生变化. 在分析中通常假设材料处于恒温 and 恒定电场条件下, 在载流子浓度 n_1 , 复合系数 k_r , 辐射剂量率 D 及复合指数 γ 等制约着 RIC 变化的量中, 我们只分析某个量对 RIC 的影响而保持其他量不变.

实验中一般通过测量感应电流来推导 RIC 大小, 它主要有两种不同的变化过程, 如图 1 所示^[22]. 一种是当材料受到辐射时, 感应电流迅速上升达到饱和(图 1(a)所示), 同时随着辐射的截止, 感应电流急剧下降后缓慢衰减; 另一种是在辐射期间感应电流缓慢达到饱和(图 1(b)所示), 而且在辐射截止后感应电流也是缓慢衰减.

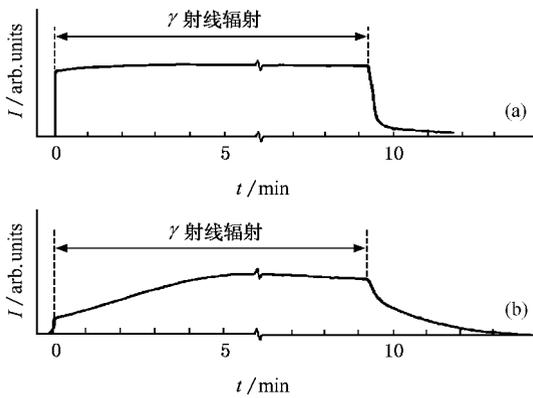


图 1 辐射感应电流变化^[22]

图 2(a) 给出了在辐射起始时刻感应电导率随辐射剂量率变化的模拟结果, 辐射剂量率从 2.5 Gy/s 到 2.5×10^3 Gy/s. 图 2(b) 为 RIC 在辐射剂量率为 2.5 Gy/s 下的模拟变化过程, 对应于感应电导率的缓慢变化情况. 图 2(c) 为实验中 2.5 Gy/s 辐射剂量下测量到的感应电流变化过程, 数据来源于文献 [23]. 在保持电场恒定条件下, 图 2(c) 反应了感应电导率的变化. 计算中 $n_1 = 10^6 \text{ cm}^{-3}$, $k_r = 10^{-12} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$, $k_1 = 10^4 \text{ Gy}^{-1} \text{ cm}^{-3}$, $\mu = 10^{-2} \text{ cm}^2 \text{ v}^{-1} \text{ s}^{-1}$, $\gamma = 2$.

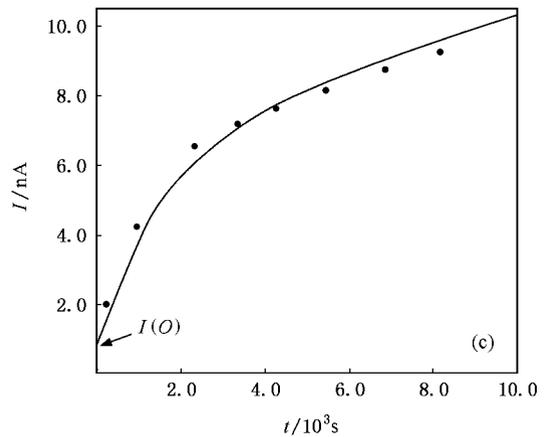
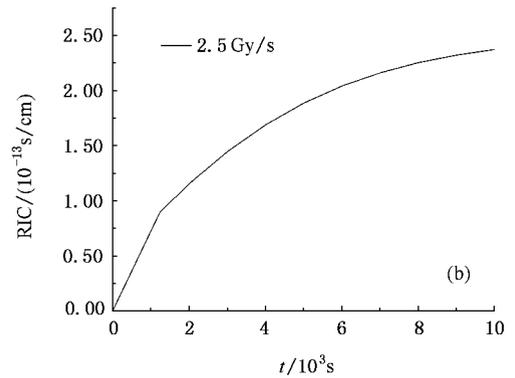
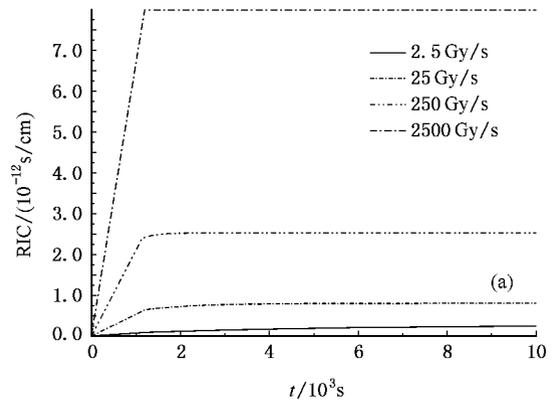


图 2 (a) 初始时刻 RIC 随辐射剂量率的变化 (b) 2.5 Gy/s 辐射下 RIC 的变化 (c) 实验测量感应电流的变化^[23]

从图 2(a) 可以看出, 随着辐射剂量率变大, RIC 也明显变大, 而且其达到平衡时间变短. RIC 达到平衡时间除与辐射剂量率有关外, 还与材料的复合指数 γ , 复合系数 k_r 等密切相关. 当 $\gamma = 2$ 时, 载流子的复合系数 k_r 近似等于 $\frac{1}{n\tau}$, n 为载流子浓度, τ 为其存活时间. 在辐射条件下, $1/\tau$ 可以升高 3 个量级左右^[24, 25], 但介质材料辐射激发载流子浓度变化一般远超过 3 个量级, 因此计算时 k_r 比非辐射状态下

偏小.

分析辐射停止时不同载流子浓度下 RIC 的衰减过程,保持其他量不变,可以得到图 3(a)所示结果,辐射激发载流子初始浓度分别取 10^{10} cm^{-3} , 10^9 cm^{-3} 及 10^8 cm^{-3} , 对应于辐射截止前不同的剂量率条件. 图 3(b) 为辐射截止时对比实验结果,截止前最大的辐射剂量率为 $3.0 \times 10^4 \text{ rad/s}$. 从图 3(a) 和 3(b) 都可以看出,虽然初始状态下载流子浓度不同,但随着时间发展, RIC 趋向于同一衰减曲线.

图 3 显示的是 RIC 缓慢衰减过程,时间坐标为 t 的 10 次幂指数形式. 由模型方程可知,当材料的复合系数 k_r 变大时, RIC 将迅速衰减,计算结果如图 4(a) 所示,对比实验结果图 4(b) 可以推知,图 1 中 RIC 的两种不同变化过程是与材料载流子复合系数 k_r 有较大关系的.

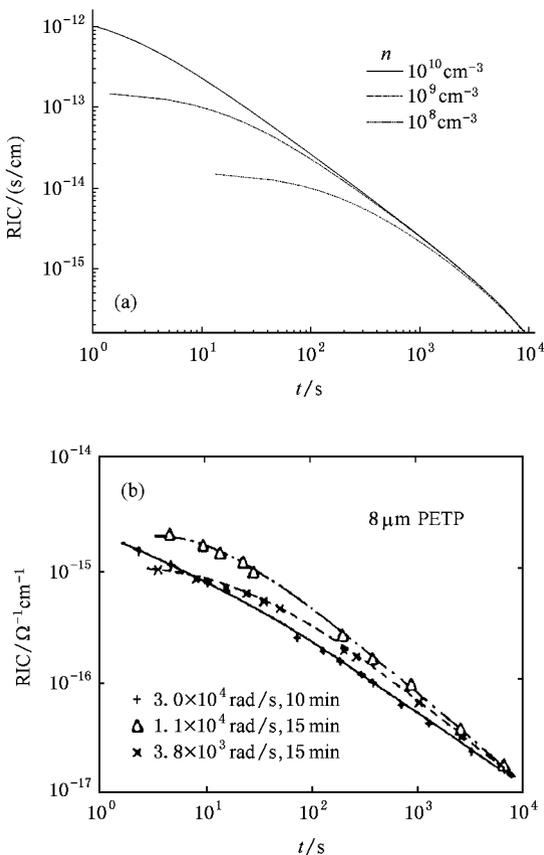


图 3 (a) RIC 的缓慢衰减 (b) RIC 缓慢衰减实验结果^[26]

不同材料在载流子复合系数 k_r , 复合指数 γ 和对辐射的反应上都有较大区别,因此利用改进后的模型直接对实验中 RIC 电流整个变化过程进行准确的预测比较困难. 但通过相应的实验确定具体材料

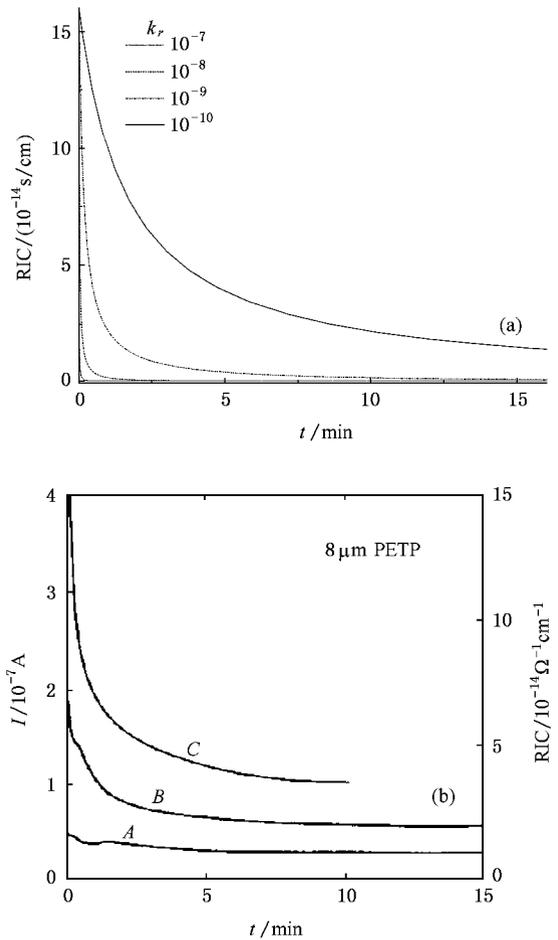


图 4 (a) RIC 的快速衰减 (b) RIC 快速衰减实验结果^[26]

的复合系数 k_r 和复合指数 γ 范围,进而利用模型对整个感应电流变化过程进行模拟可以得到与实验相接近的结果,如图 5 所示. 图 5(a) 的计算过程中电场强度和辐射剂量率取值与图 5(b) 实验条件相同,可以看出改进后模型模拟结果的整体趋势是与实验相符的.

4. 结 论

综合以上讨论,通过引入辐射激发项,改进后的模型能很好地解释 RIC 与辐射剂量率的指数关系. 分析不同辐射条件和载流子复合系数下 RIC 的变化情况,发现辐射剂量率主要影响 RIC 的大小,而对 RIC 整体变化趋势没有较大影响,决定 RIC 长时间衰减特征的是载流子的复合率.

由于缺乏相应的对比实验数据,无法验证在 RIC 变化过程中复合率系数和复合率指数哪个起着更为重要的作用. 若只从模型的模拟结果来看,复合

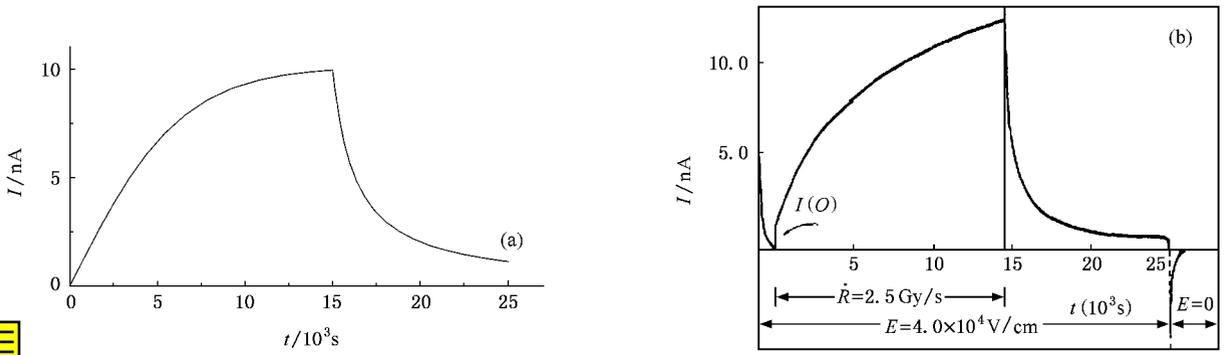


图 5 (a) 模型模拟 RIC 电流变化结果 (b) 实验结果(来源于文献 [23])

率指数对 RIC 的影响更为突出些,结合相应的实验 来验证这一点,将是进一步需开展的工作。

- [1] Nasledov D , Scharawsky P 1929 *Ann . Phys .* **3** 63
- [2] Maeda H , Kurashige M , Nakakita T 1979 *J . Appl . Phys .* **50** 758
- [3] Aduiev B P , Aluker É D , Shvalko V N 1997 *Phys . Solid State* **39** 1784
- [4] Sadovnichii D N , Khatipov S A , Tyutnev A P , Militsyn Yu A 2003 *High Energy Chem .* **37** 157
- [5] Mehtaa K , Fuochi P , Lavallo M , Kováca A 2002 *Rad . Phys . Chem .* **63** 745
- [6] Hunn J D , Stoller R E , Zinkle S J 1995 *J . Nucl . Mater .* **219** 169
- [7] Hodgson E R , Moroño A 2002 *J . Nucl . Mater .* **307-311** 1660
- [8] Huang J G , Chen D 2004 *Acta Phys . Sin .* **53** 961 (in Chinese)
[黄建国、陈 东 2004 物理学报 **53** 961]
- [9] Huang J G , Chen D 2004 *Acta Phys . Sin .* **53** 1611 (in Chinese)
[黄建国、陈 东 2004 物理学报 **53** 1611]
- [10] Mingaleev G S , Tyutnev A P , Gerasimov B P , Kulchitskaya I A 1986 *Phys . Stat . Solidi A* **93** 251
- [11] Tyutnev P , Smirnov I A , Saenko S , Pozhidaev E D , Abramov V N 2004 *High Energy Chem .* **38** 131
- [12] Gross B , Seggem H , Berkley D A 1983 *Phys . Status Solidi A* **79** 607
- [13] Tyutnev A P , Saenko V S , Karpeurin A I , Mingaleev G S 1984 *Phys . Status Solidi A* **83** 365
- [14] Kolomeisky A B , Fisher M E 2000 *Physica A* **279** 1
- [15] Chowdhury D , Wolf D E , Schreckenber M 1997 *Physica A* **235** 417
- [16] Fang J H , Liu L W , Kong W J , Cai J Z , Lu L 2006 *Chin . Phys . Lett .* **23** 953
- [17] Arkhipov V I , Reynaert J , Jin Y D , Heremans P , Emelianova E V , Adriaenssens G J , Bäessler H 2003 *Synth . Met .* **138** 209
- [18] Wang D , Shen J 2000 *Synth . Met .* **111** 349
- [19] Wang G H 1988 *Physics of Particles and Solid Interaction* (Beijing : Science Press) (in Chinese) [王广厚 1988 粒子同固体相互作用物理学(北京 科学出版社)]
- [20] Malecki J 2001 *J . Electrostat .* **50** 109
- [21] Fowler J F 1956 *Proc . Roy . Soc . (London) A* **236** 464
- [22] Maeda H , Kurashige M , Nakakita T 1979 *J . Appl . Phys .* **50** 758
- [23] Faria R M 1992 *J . Phys . I France* **2** 1965
- [24] Gaubas E , Vaitkus J , Niaura G , et al 2005 *Nucl . Instrum . Methods Phys . Res . A* **546** 108
- [25] Simoen E , Claeys C , Gaubas E , Ohya H 2000 *Nucl . Instrum . Methods Phys . Res . A* **439** 310
- [26] Yang G M , Sessler G M 1992 *IEEE Trans . Electro . Insul .* **27** 843

Modeling analysis of radiation induced conductivity in electrical insulator^{*}

Quan Rong-Hui^{1,2)†} Han Jian-Wei¹⁾ Huang Jian-Guo¹⁾ Zhang Zhen-Long¹⁾

¹ *Center For Space Science and Applied Research, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080, China*

² *Graduate School of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China*

(Received 14 March 2007; revised manuscript received 9 June 2007)

Abstract

By introducing a new term into the traditional Rose-Fowler-Vaisberg model, The exponential relationship between radiation induced conductivity and dose rate is explained. The evolution of radiation induced conductivity under different radiation conditions are also analyzed. The result indicates that dose rate mainly changes the magnitude of radiation induced conductivity while the long-time decay of radiation induced conductivity is determined by carrier recombination rate of the material.

Keywords : Rose-Fowler-Vaisberg model, radiation induced conductivity, radiation effect, electrical conductivity

PACC : 7280S, 7280T, 7700

^{*} Project supported by the Funds of the Chinese Academy of Sciences for Key Topics in Innovation Engineering (Grant Nos. 2527A5S and 2520A1S).

[†] E-mail : quansilin@sina.com