

На правах рукописи

БЫЧКОВ ПЕТР НИКОЛАЕВИЧ

**ВЛИЯНИЕ ИОНИЗИРУЮЩЕГО ИЗЛУЧЕНИЯ
НА ЭЛЕКТРИЧЕСКОЕ СТАРЕНИЕ ПОЛИЭТИЛЕНА
И ПОЛИМЕТИЛМЕТАКРИЛАТА**

Специальность 05.09.02 – электроизоляционная и кабельная
техника

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени
кандидата технических наук

Томск 1995

Работа выполнена в НИИ высоких напряжений при Томском политехническом университете.

Научные руководители: доктор технических наук, профессор
В.Я.Ушаков
доктор физико-математических наук,
профессор С.Г.Боев

Официальные оппоненты: доктор технических наук, профессор
Г.А.Воробьев
кандидат технических наук, доцент
В.И.Меркулов

Ведущая организация: Сибирский научно-исследовательский
институт энергетики (г.Новосибирск)

Защита диссертации состоится 21 июня 1995 года в 15.00 часов на заседании диссертационного совета К 063.80.05 при Томском политехническом университете по адресу: 634034, г.Томск, пр.Ленина, 30.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке ТПУ.

Автореферат разослан 20 мая 1995г.

Ученый секретарь
диссертационного совета

А.А.Дульзон

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность работы. Интерес к исследованию поведения полимерных диэлектриков в условиях воздействия ионизирующего излучения обусловлен широким применением их в качестве изоляции в ядерно - физических, электрофизических установках, в космических аппаратах и других объектах, работающих в условиях воздействия радиации на Земле и в космосе. Поведение полимерной изоляции, подвергнутой облучению, при длительном воздействии электрического поля, особенно импульсного, изучено недостаточно. В то же время многоимпульсный режим является основным режимом работы таких устройств как ускорители, передатчики и приемники радиолокационных станций, аппаратура систем связи и др.

Известно, что электрическая прочность различных по структуре и свойствам материалов практически не изменяется в процессе воздействия ионизирующего излучения пока структурные изменения в материале незначительны и обратимы. Известно также, что в ряде полимеров, в частности в полиэтилене, до определенных значений поглощенных доз ионизирующего излучения происходит структурирование материала, при этом улучшаются некоторые свойства материалов - механическая прочность, термическая стойкость и т.п. Несколько возрастает и электрическая прочность, как кратковременная, так и длительная. Однако при поглощенных дозах свыше 10^5 Гр в полимерах возникают необратимые нарушения структуры, при этом основным продуктом радиационной деструкции являются газы. Влияние инструктирующих доз на многоимпульсную электрическую прочность полимерных материалов практически не исследовано. В частности, не рассмотрен вопрос о влиянии на ресурс полимеров в сильных импульсных электрических полях газообразных продуктов радиолиза.

Исследование электрического старения облученных полимеров необходимо для определения рабочих градиентов напряжения в изоляции, прогнозирования ее ресурса и решения ряда других инженерных задач.

Цель работы. Исследование закономерностей старения полимерных диэлектриков в импульсном электрическом поле после деструктирующего воздействия ионизирующих излучений и разработка на основе полученных результатов рекомендаций по выбору и проектированию электрической изоляции, подвергаемой воздействию ионизирующего излучения.

Объекты и методы исследования. Для экспериментальных исследований выбраны два полимера - полиэтилен низкой плотности (ПЭНП), представляющий класс материалов с большой газовой проницаемостью ($5,7 \cdot 10^{-8}$ м²·с⁻¹·Па⁻¹ для водорода), в которых накопление газообразных продуктов радиолиза в условиях облучения не происходит, и полиметилме-

такрилат (ПММА), представляющий класс материалов с малой газовой проницаемостью ($7,4 \cdot 10^{-12} \text{ м}^2 \cdot \text{с}^{-1} \cdot \text{Па}^{-1}$ для водорода и $5,3 \cdot 10^{-12} \text{ м}^2 \cdot \text{с}^{-1} \cdot \text{Па}^{-1}$ для двуокиси углерода), облучение которых приводит к накоплению в их объеме продуктов радиационной деструкции. Исследования выполнены на образцах ПЭНП с системой электродов "плоскость - плоскость" и ПММА с системами электродов "плоскость-плоскость", "полусфер - полусфер" и "полусфер - плоскость". Во всех случаях в образцах создавалось однородное или близкое к однородному (коэффициент неоднородности не более 1,05) электрическое поле.

В литературе электрическое старение диэлектриков связывают с накоплением объемного заряда и с нарушением структуры материала. Поэтому наряду с измерением многоимпульсной электрической прочности материалов исследованы их структурные изменения и накопление объемного заряда. Накопление объемного заряда исследовано методами акустического и протонного зондирования. Структурные изменения в ПЭНП контролировались методом инфракрасной спектроскопии, в ПММА - методом светорассеяния.

Научная новизна. Выявлены основные процессы и механизмы старения облученной полимерной изоляции в сильном импульсном электрическом поле. Экспериментально установлены следующие закономерности:

- Распределение времен жизни ПЭНП в сильном импульсном электрическом поле двухмодально. Ионизирующее излучение приводит к снижению среднего ресурса полимера более чем на порядок. При этом мода, соответствующая меньшим временам жизни (10^3 - 10^4 импульсов), с увеличением поглощенной дозы излучения растет, а мода, соответствующая большим временам до пробоя (10^6 - 10^8 импульсов), уменьшается вплоть до полного ее исчезновения. При поглощенной дозе, превышающей 700 кГр плотность распределения числа импульсов до пробоя становится одномодальной и близкой к нормальному закону с центром моды в области меньших чисел импульсов до пробоя. Такое изменение плотности вероятности пробоя ПЭНП после облучения обусловлено снижением энергии активации процесса разрушения вследствие увеличения концентрации слабых связей в макромолекулах.

- Ресурс ПММА в импульсном электрическом поле увеличивается на несколько порядков с увеличением поглощенной дозы ионизирующего излучения D от 0 до 400 - 500 кГр вследствие накопления в межглобулярном пространстве полимера и микропустотах газообразных продуктов радиолиза. Возрастание давления газов с увеличением поглощенной дозы (до 2 МПа при $D = 400$ кГр) способствует увеличению как кратковременной, так и длительной электрической прочности диэлектрика. Превышение поглощенной дозой уровня 400 - 500 кГр приводит к

снижению ресурса материала. При 650 кГр ПММА выдерживает до пробоя лишь несколько импульсов, что обусловлено падением механической прочности полимера вследствие радиационной деструкции и увеличением давления газов до значений, близких к пределу прочности материала на разрыв.

- Ресурс исследованных материалов определяется в основном интенсивностью процессов деструкции на молекулярном уровне и лишь на последней стадии старения наблюдается развитие макродефектов.

- В исследованных полимерах накопление объемного заряда в импульсном электрическом поле незначительно и практически не влияет на процессы электрического старения.

Практическая значимость. Получены новые экспериментальные данные о закономерностях старения полимерной изоляции в импульсном электрическом поле после воздействия ионизирующих излучений, сформулированы рекомендации по прогнозированию поведения, выбору уровня и режимов эксплуатации полимерной изоляции для электрофизических установок, работающих в условиях воздействия ионизирующего излучения.

Положения, выносимые на защиту.

1. Повышение концентрации слабых ненасыщенных связей в основной цепи и концевых группах макромолекул ПЭНП и вызванное этими процессами снижение энергии активации процесса разрушения в результате облучения протонами и γ -квантами приводит к снижению среднего ресурса и перераспределению мод двухмодальной плотности распределения времен жизни ПЭНП в импульсном электрическом поле вплоть до полного исчезновения моды, соответствующей большим числам импульсов до пробоя. При достижении поглощенной дозы уровня порядка 700 кГр плотность распределения числа импульсов до пробоя становится одномодальной и близкой к нормальному закону с центром моды в области меньших чисел импульсов до пробоя. Положение центров мод при этом от поглощенной дозы практически не зависит.

2. Газообразные продукты радиолиза, накапливаясь в объеме ПММА, обуславливают рост ресурса этого полимера в импульсном электрическом поле с увеличением поглощенной дозы ионизирующего излучения до значения 400 - 500 кГр. Возрастание давления газов с увеличением поглощенной дозы (до 2 МПа при $D = 400$ кГр) способствует увеличению как кратковременной, так и длительной электрической прочности диэлектрика. Снижение механической прочности полимера вследствие радиационной деструкции и увеличение давления газов до значений, близких к пределу прочности материала на разрыв, приводит к быстрому уменьшению времени жизни диэлектрика до единиц импульсов при дальнейшем увеличении поглощенной дозы.

3. В исследованных полимерах в импульсном электрическом поле объемный заряд не влияет на процесс старения, поскольку накопление ОЗ незначительно. В случае ПЭНП отсутствие накопления ОЗ объясняется экстракцией носителей заряда за время паузы между импульсами вследствие высокой дрейфовой подвижности носителей заряда в этом материале и большой скважности импульсов высокого напряжения. В случае ПММА, напротив, вследствие чрезвычайно низкой дрейфовой подвижности инжектированные носители заряда за все время воздействия импульсного напряжения, составляющее от начала нагружения до пробоя порядка сотен секунд, способны продвинуться в объем материала лишь на микроскопическую глубину.

Апробация работы. Основные материалы диссертации опубликованы в 6 работах и докладывались на областной научной молодежной конференции (Томск, 1986 г.) и на VI Всесоюзной конференции по физике диэлектриков (Томск, 1988 г.).

Структура и объем диссертации. Диссертация состоит из введения, четырех глав и заключения. Во введении рассмотрены актуальность проблемы, цель исследований, научная новизна и практическая ценность полученных результатов, приведены сведения об апробации и публикации основных результатов работы. В первой главе дан общий анализ современных - представлений о процессах и механизмах электрического старения полимерной изоляции и факторов, влияющих на старение. Во второй главе описываются методики исследования структуры полимеров, объемного заряда, а также технология изготовления, облучения и высоковольтных испытаний образцов. В третьей главе приводятся результаты исследования электрического старения ПЭНП подвергнутого воздействию ионизирующего излучения. В четвертой главе приводятся результаты исследования электрического старения ПММА после воздействия протонного, электронного и γ -излучений. Сформулированы рекомендации по повышению ресурса полимерной изоляции в импульсном электрическом поле путем радиационной модификации структуры и выбору режимов эксплуатации изоляции, подвергаемой воздействию ионизирующего излучения. Диссертация включает 129 страниц машинописного текста, 30 страниц иллюстраций, список цитируемой литературы из 179 наименований.

ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

В процессе эксплуатации изоляции длительное воздействие рабочего напряжения, а также ряд других факторов (температура, механические нагрузки, окружающая среда, радиация и пр.) приводят к ее старению.

Взаимосвязанность и взаимообусловленность воздействия старящих факторов затрудняют исследование старения изоляции. Множество работ посвящено исследованию воздействия этих факторов на полимерную изоляцию как каждого в отдельности, так и в комплексе. Значительно меньше изучено электрическое старение полимерных диэлектриков после воздействия ионизирующих излучений. В частности, не исследовано влияние продуктов радиолиза на электрическую прочность и ресурс полимерной изоляции.

На основании анализа литературных данных о процессах и механизмах электрического старения полимерной изоляции и влиянии на него ионизирующих излучений при выполнении данной работы были поставлены следующие основные задачи:

- Исследовать закономерности электрического старения полимеров различной структуры и газопроницаемости в импульсном электрическом поле после деструктирующего воздействия ионизирующего излучения.
- Исследовать влияние продуктов радиолиза на ресурс полимерной изоляции в сильном импульсном электрическом поле в зависимости от газопроницаемости материалов.
- Определить роль объемного заряда в старении полимерной изоляции при воздействии импульсов высокого напряжения микросекундного диапазона длительностей.
- Исследовать роль в электрическом старении облученных полимеров структурных нарушений на молекулярном и надмолекулярном уровнях.

МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Облучение образцов протонами проводилось на циклотроне U-120 НИИ ядерной физики при Томском политехническом университете. Энергия протонов $T_p = 10$ МэВ, плотность тока пучка $j = 2,5 \cdot 10^{-8}$ А/см².

Облучение образцов электронами проводилось на установке ЭЛУ- 4 НИИ интроскопии при Томском политехническом университете. Энергия электронов $T_e = 4$ МэВ, плотность тока $j = 1$ мкА/см². γ -облучение проводилось в Томском государственном университете на установке К-60000 с ⁶⁰Со в качестве источника излучения. Мощность экспозиционной дозы составляла 1,5 МР/час, энергия γ -квантов - 1,33 МэВ.

Поскольку процессы электрического старения диэлектриков во многих работах связываются с накоплением объемного заряда, при выполнении данной работы была поставлена задача проверить эту гипотезу. Накопление объемного заряда исследовано методами акустического и протонного зондирования. Методика акустического зондирования основана на возбуждении электрического тока в электризованном диэлектрике при прохождении через него импульса акустического давления. Акустический импульс, представляющий собой плоскую волну с произвольной формой изменения амплитуды во времени, направляется в образец через одну из его поверхностей и перемещается к противоположной поверхности. На измерительном электроде регистрируется потенциал, пропорциональный интегралу полного тока в образце.

Установка, реализующая данный метод, разработана и изготовлена в НИИ высоких напряжений. Она обеспечивает измерение и регистрацию электрических полей напряженностью порядка 10^2 В/см с разрешающей способностью не хуже 30 мкм.

Разработанный в НИИ ВН метод зондирования электрического поля в твердых диэлектриках ускоренными ионами основан на влиянии электрического поля диэлектрика на токи, протекающие в его объеме при облучении потоком заряженных частиц с регулируемым пробегом.

Исследования распределения напряженности электрического поля и объемной плотности заряда выполнены с использованием циклотрона У - 120 НИИ ядерной физики при Томском политехническом университете. При измерениях на образцы воздействовали протонами с максимальной энергией $T_p = 10$ МэВ и плотностью тока пучка $j \approx 5 \cdot 10^{-9}$ А/см².

Максимальная толщина зондируемых образцов определяется максимальным пробегом ионов в материале образца и для ПЭНП при энергии протонов 10 МэВ составляет 1,1 мм а для ПММА - 0,9 мм. Изменение энергии протонов, падающих на образец, осуществлялось с помощью поглотителей излучения. Методика обеспечивает разрешающую способность менее 10 мкм; чувствительность - порядка 10^3 В/см.

Погрешность измерений обеими методиками не превышает 7 %.

Не менее важным фактором электрического старения является исходная структура материала как на молекулярном, так и на надмолекулярном уровне, а также ее изменение в процессе электрического старения. Структурные изменения в исследуемых материалах в результате облучения и электрического старения наблюдались при помощи методики инфракрасной спектроскопии, оптической микроскопии (ПЭНП) и методики светорассеяния (ПММА).

Метод светорассеяния, примененный в ФТИРАН им. А.Ф.Иоффе для изучения разрушения полимеров и других прозрачных тел при механическом нагружении и адаптированный в НИИ ВН к исследованию электрического старения, был нами усовершенствован и дополнен.

Так, для более точной установки углов измерения (φ и θ) в качестве основы установки использован гониометр Г5, на алидаде которого, наряду с фотоприемником, установлена микрофотоприставка, позволяющая визуализировать дефекты микроструктуры образцов и идентифицировать сигналы на диаграммах и индикатрисах рассеяния. В разработанном и осуществленном нами «Способе контроля состояния изоляции» (рис.1), признанном изобретением и защищенном авторским свидетельством, измерение интенсивностей рассеянного света под передним и задним углами производятся одновременно и измеренные сигналы подаются на схему деления.

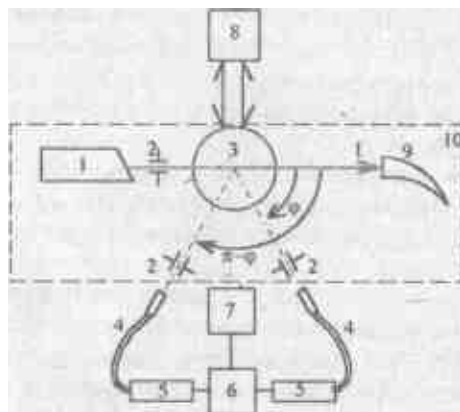


Рис. 1. Способ контроля состояния изоляции по а.с. № 1622854.

1 - лазер; 2 - коллиматор; 3 - образец; 4 - световод; 5 - фотоприемник; 6 - схема деления; 7 - регистрирующий прибор; 8 - синхронный привод вращения образца; 9 - светоловушка; 10 - светозащитная камера.

Регистрирующая аппаратура, в качестве которой может быть использован любой самописец, фиксирует не абсолютные значения интенсивностей рассеянного света, а их отношение $\eta = I_{\varphi} / I_{\pi-\varphi}$ по изменению которого судят об изменении размеров неоднородностей.

Для контроля структурных нарушений методом светорассеяния использовали специально подготовленные цилиндрические образцы, выточенные из блочного ПММА. По оси симметрии образцов формировались сферические лунки под электроды. Для снятия остаточных механических напряжений и окончательного формирования лунки для плотного прилегания электродов образцы подвергались отжигу при температуре 125 °С. Боковая поверхность образцов, являющаяся, по сути, частью оптической системы установки, подвергалась после отжига тщательной полировке. Перед установкой стальных электродов на электродные лунки наносилась специально приготовленная суспензия

мелкодисперсной газовой сажи в эпоксидной смоле. Такое покрытие позволяет избежать бликов при зондировании межэлектродного промежутка лазерным излучением, а также дает дополнительную гарантию отсутствия частичных разрядов.

Образцы для протонного облучения изготавливались из ПЭНП и ПММА. Образцы из ПЭНП изготавливались методом горячего прессования в специальных пресс-формах. Образцы из ПММА вырезались из листового материала, а лунка под электрод высверливалась специально профилированным сверлом с последующей полировкой и отжигом. Таким образом формировалась система электродов «плоскость - плоскость». Режим отжига аналогичен режиму отжига образцов для исследований методом светорассеяния. Прессование полиэтиленовых образцов производилось при температуре 120°C. Поскольку пробег протонов с энергией 10 МэВ в ПЭНП и ПММА составляет 1,1 и 0,9 мм соответственно, величина межэлектродного промежутка d выбиралась в этих пределах для исключения заряжения образцов в процессе облучения. Края лунок скруглялись для уменьшения влияния краевого эффекта.

Образцы для β - и γ -облучения вырезались из листового ПММА. Поскольку электроны с энергией 4 МэВ имеют пробег, превышающий толщину листового ПММА (3 мм), для электрического нагружения была выбрана система электродов полушар- плоскость. Такая система электродов создает практически однородное электрическое поле при отношении межэлектродного расстояния к радиусу шара, не превышающем 0,5. Краевой эффект при этом отсутствует. После высверливания лунок образцы отжигались в описанном выше режиме заодно с шаровыми электродами, в качестве которых служили стальные шарики от подшипников. Диаметр шариков - 5,5 мм.

Величина межэлектродного расстояния d выбиралась из соображений приемлемости размеров образцов по напряжению перекрытия и составила 0,2-0,5 мм.

Структурные нарушения в полиэтилене, непрозрачном в оптической области спектра, контролировались по инфракрасным спектрам (ИКС), которые снимались до и после облучения образцов на спектрометре UR - 20 в области 400 - 4000 см^{-1} при скорости сканирования 400 $\text{см}^{-1}/\text{мин}$.

Известно, что в диапазоне длительностей импульсов 10^{-6} - 10^{-5} с имеет место аномальное снижение как кратковременной, так и длительной электрической прочности большинства диэлектриков, в том числе и полимерных. В то же время эти длительности - рабочий диапазон многих электрофизических импульсных устройств. Поэтому для испытаний образцов на многоимпульсную электрическую

прочность был выбран именно этот диапазон времен воздействия. Длительность импульса составила 10^{-5} с при длительности фронта $2 \cdot 10^{-6}$ с, частота следования импульсов - 500 с^{-1} . Высоковольтная установка собрана по стандартной схеме генератора импульсов с формирующей линией и тиратронным коммутатором. Нагрузкой формирующей линии является высоковольтный импульсный трансформатор. На выходе трансформатора для подавления обратного выброса напряжения установлена колонка диодов. Сигнал на осциллограф и счетчик импульсов подается с делителя Флетчера.

При электрическом нагружении образцов с контролем структурных нарушений методом светорассеяния испытывается один образец, который устанавливается на предметный столик гониометра. Плоские образцы испытываются одновременно по 20 шт., при этом каждый из них устанавливается в отдельной ячейке и пробой любого образца вызывает срабатывание общей схемы отключения и индивидуальной сигнализации.

СТАРЕНИЕ ОБЛУЧЕННОГО ПЭНП В ИМПУЛЬСНОМ ЭЛЕКТРИЧЕСКОМ ПОЛЕ

Накопление объемного заряда в образцах в результате облучения их протонами практически не происходило, поскольку толщина образцов (0,5 мм) выбиралась меньше пробега протонов (1,1 мм).

Объемный заряд также не был обнаружен в образцах, подвергнутых воздействию γ -излучения. Результат объясняется сравнительно низкими значениями мощности дозы γ -излучения (1,5 МР/час) и величины поглощенной дозы (до 700 кГр). недостаточных для накопления заряда за счет комптоновского и фотоэффекта.

При акустическом и протонном зондировании образцов после воздействия импульсного напряжения накопления объемного заряда не обнаружено.

Это непротиворечиво объясняется результатами оценочных расчетов. Пусть импульс напряжения подается на образец в момент времени $t=0$ и заканчивается в момент времени t_1 . В момент времени t_2 подается следующий импульс, $\tau_n = t_2 - t_1$ - пауза между импульсами. Допустим, что на фронте импульса в момент t_u в образец инжектировался электрон. С момента инжекции до окончания импульса электрон пройдет расстояние $l_1 = \int_{t_u}^{t_1} \mu(t) E(t) dt$, где μ - дрейфовая подвижность электрона.

Известно, что подвижность электрона сравнительно медленно уменьшается со временем и в течение 10^{-3} с сохраняется выше $10^{-6} \text{ см}^2/\text{В} \cdot \text{с}$. То есть после прекращения воздействия импульса напряжения микросекундной

длительности электрон в течение сравнительно большого времени сохраняет высокую подвижность и перемещается в электрическом поле объемного заряда E_q к электроду. Расстояние l_2 , которое может пройти электрон за время паузы, определяется выражением $l_2 = \int_{t_1}^{t_2} \mu(t) E_q(t) dt$.

При длительности импульсов напряжения в единицы и десятки микросекунд и длительности паузы в миллисекунды и выше справедливо $l_2 > l_1$ уже при $E_q = 10^4$ В/см. То есть при $E_q \ll E$ инжектированный в образец при воздействии импульса напряжения электрон экстрагируется за время паузы между импульсами за счет большой дрейфовой подвижности и незначительной первоначальной глубины проникновения заряда. Следует отметить, что в постоянном электрическом поле и при воздействии импульсов миллисекундной длительности объемный заряд n ПЭНП эффективно накапливается и значения E_q и E сравнимы по порядку.

Проведенные нами совместно с сотрудниками Технического Университета Дрездена исследования влияния параметров импульса (длительность, полярность) на триингообразование в сшитом полиэтилене показали, что эффект полярности, связываемый в литературе с действием объемного заряда, на микросекундных импульсах отсутствует, а начинает сказываться лишь при длительностях импульсов порядка единиц и десятков миллисекунд.

Ресурсные испытания показали, что распределение времен жизни ПЭНП в сильном импульсном электрическом поле двухмодально. Ионизирующее излучение приводит к снижению среднего ресурса полимера более чем на порядок, одновременно происходит перераспределение мод плотности распределения его времени жизни в импульсном электрическом поле. Мода, соответствующая меньшим временам жизни ($10^3 \div 10^4$ импульсов), с увеличением поглощенной дозы излучения растет, а мода, соответствующая большим временам до пробоя ($10^6 \div 10^8$ импульсов), уменьшается. При этом положение центров мод от поглощенной дозы практически не зависит (рис.2). При поглощенной дозе 700 кГр плотность распределения числа импульсов до пробоя становится одномодальной и близкой к нормальному закону с центром моды в области меньших чисел импульсов до пробоя. Изменение плотности вероятности пробоя образцов ПЭНП после облучения обусловлено изменением плотности распределения энергии активации процесса разрушения, вид которой определяется количеством слабых связей в макромолекулах. С ростом поглощенной дозы концентрация слабых связей в основной цепи и концевых группах макромолекул ПЭНП увеличивается, о чем свидетельствует увеличение интенсивности полос $970 \div 1000 \text{ см}^{-1}$, обусловленных образованием транс-виниленовых групп, и $1700 \div 1750 \text{ см}^{-1}$, связанных с карбонилсодержащими соединениями, в спек-

трах облученных образцов (рис.3). Обе эти атомные группировки характеризуются наличием в их составе слабых ненасыщенных связей. Наблюдается практически линейная корреляция между интенсивностью полосы поглощения ИКС в области $970 - 1000 \text{ см}^{-1}$ и значениями мод распределения числа импульсов до пробы образцов (рис. 4).

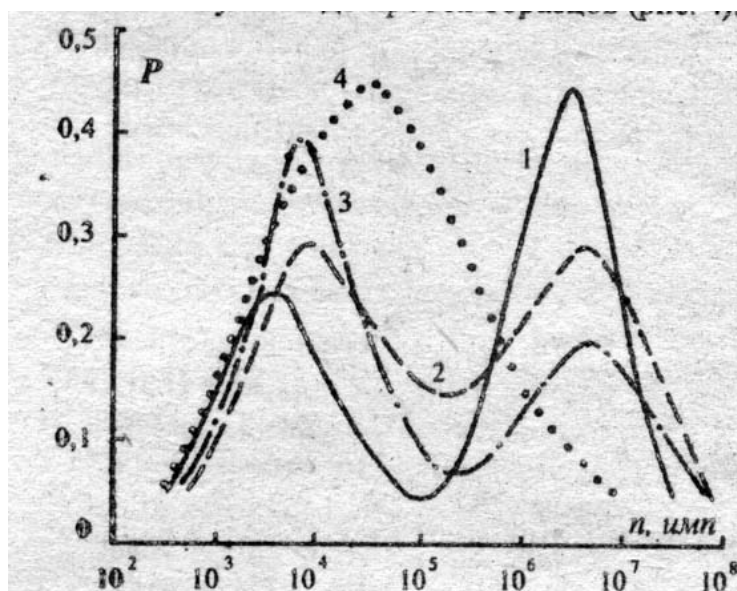


Рис. 2. Плотность распределения ресурса образцов ПЭНП: 1 - необлученных; 2, 3, 4 - облученных дозами 200, 400 и 700 кГр соответственно.

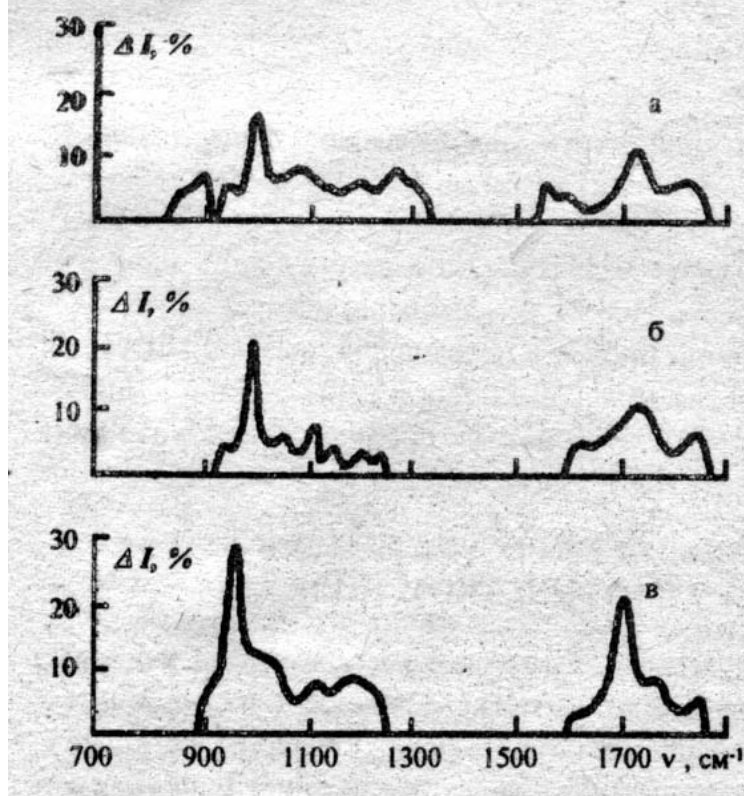


Рис. 3. ИКС образцов ПЭНП после облучения.
а - $D = 200 \text{ кГр}$;
б - $D = 400 \text{ кГр}$;
в - $D = 700 \text{ кГр}$.

Более 95% продуктов радиолиза ПЭНП составляет водород, остальное - легкие олефины. Исходя из довольно высокого выхода деструкции

(2,03 мол./100 эВ) следовало бы ожидать накопления большого количества газообразных продуктов радиолиза в микропустотах и аморфной фазе ПЭНП после облучения. Однако этого не происходит вследствие высокой газопроницаемости ПЭНП. Расчеты показывают, что при γ -облучении с мощностью дозы 15 кГр/час в рабочей зоне образцов каждую секунду образуется порядка 10^{-5} см³ водорода, в то время как газопроницаемость материала позволяет пропустить через объем образца порядка 10^{-1} см³ газа. При протонном излучении, когда мощность дозы неизмеримо выше, образующийся в результате радиолиза водород выходит из образцов в течение нескольких суток.

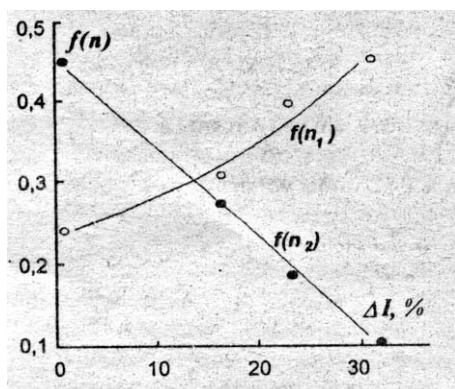


Рис. 4. Зависимости плотности вероятности пробоя образцов ПЭНП $f(n_1)$ и $f(n_2)$ в интервалах ресурса соответственно 10^3 - 10^4 и 10^6 - 10^8 импульсов от интенсивности полосы поглощения ИКС (ΔI) в области 970 - 1000 см⁻¹.

Таким образом, изменение микроструктуры оказывает существенное влияние на ресурс ПЭНП в сильном электрическом поле. Повышение концентрации слабых связей приводит к снижению среднего ресурса более чем на порядок при поглощенных дозах излучения, соответствующих началу процесса деструкции макромолекул ПЭНП. Уменьшение ресурса обусловлено снижением энергии активации процесса разрушения, вызванным увеличением концентрации слабых связей как в основной цепи, так и в концевых группах молекул полиэтилена. Газообразные продукты радиолиза на процессы электрического старения ПЭНП не влияют.

ВЛИЯНИЕ ОБЛУЧЕНИЯ НА РЕСУРС ПММА В ИМПУЛЬСНОМ ЭЛЕКТРИЧЕСКОМ ПОЛЕ

Поведение ПММА в импульсном электрическом поле после β - и γ -облучения существенно отличается от ПЭНП. Исходное распределение времен жизни образцов одномодально. Проверка по критерию согласия Колмогорова показала, что оно соответствует распределению Вейбулла с доверительной вероятностью 0,85 при уровне значимости не более 0,1. Облученные образцы также имеют

одномодальное распределение чисел импульсов до пробоя, которое с ростом поглощенной дозы β - и γ -облучения смещается в сторону увеличения числа импульсов до пробоя до достижения поглощенной дозой величины $400 \div 500$ кГр, после чего происходит резкое падение электрической прочности диэлектрика, который пробивается на первых же импульсах. В качестве примера на рис. 5 приведены числа импульсов до пробоя образцов от поглощенной дозы γ -излучения при трех напряженностях электрического поля для квантиля 0,632.

Воздействие на ПММА ионизирующего излучения приводит к его деструкции на молекулярном уровне. Продукты радиолитического разложения ПММА при облучении в присутствии атмосферного кислорода более чем на 99% состоят из простых газов; водорода (18%), оксидов углерода (СО - 36%, СО₂ - 25%), низших олефинов (СН₄ - 15%, С₃Н₈ - 5,3%). Вследствие низкой газопроницаемости ПММА они накапливаются в микропустотах, в большом количестве имеющихся в объеме полимера. Таким образом, облучение ПММА приводит к генерации и накоплению в объеме диэлектрика смеси газов. Несложные расчеты показывают, что с ростом поглощенной дозы **D** давление таких газов линейно возрастает и достигает при **D** = 650 кГр уровня порядка 3 МПа и более.

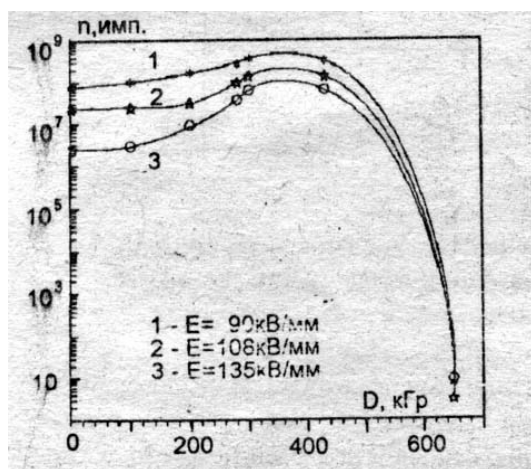


Рис. 5. Зависимость ресурса образцов ПММА от поглощенной дозы γ -излучения. Квантиль 0,632.

Известно, что канал разряда при пробое аморфных диэлектриков проходит по межглобулярному пространству. Растворенные в аморфной фазе ПММА и заключенные в микропустотах под повышенным давлением газы оказывают существенное влияние на пробивное напряжение и время жизни полимера в сильном электрическом поле, способствуя их увеличению с ростом давления. Последующее снижение ресурса образцов при превышении поглощенной дозой величины $400 \div 500$ кГр обусловлено падением механической прочности полимера вследствие радиационной деструкции и увеличением давления газов до значений, близких к пределу прочности материала на разрыв.

Существенно воздействуя на полимер на молекулярном уровне, облучение не приводит к образованию новых дефектов микронных и субмикронных размеров, что подтверждается контролем структурных нарушений образцов методом светорассеяния. В процессе высоковольтных испытаний новые макронеоднородности не возникают до самых поздних стадий старения. Как видно из приведенной на рис. 6 кинетики светорассеяния, изменение интенсивности рассеянного в рабочей зоне образцов света от начала нагружения до пробоя не превышало 10% до выработки ими порядка 90% ресурса. Диаграммы рассеяния и темнопольное микрофотографирование также не зарегистрировали новообразований в межэлектродном промежутке на этих стадиях старения. За несколько сотен импульсов до пробоя наблюдалось резкое возрастание интенсивности светорассеяния, обусловленное агрегацией дефектов молекулярной структуры в макронеоднородности.

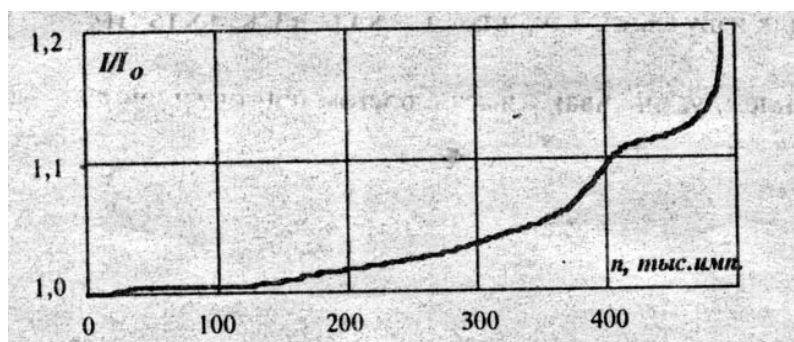


Рис. 6. Кинетика светорассеяния в процессе старения образца ПММА.

$n_{пр} = 457$ тыс. имп. I - текущее значение интенсивности светорассеяния; I_0 - исходное значение интенсивности светорассеяния

На основе результатов исследований был сформулирован ряд практических рекомендаций по применению полимерной изоляции в условиях воздействия ионизирующего излучения, основное содержание которых сводится к следующему. При выборе полимерных диэлектриков для использования в качестве электрической изоляции электрофизических установок, работающих в условиях воздействия радиации наряду с радиационной стойкостью следует учитывать газопроницаемость полимеров. Допустимые дозовые нагрузки для полимеров с низкой газопроницаемостью следует выбирать на восходящей ветви кривой зависимости ресурса диэлектриков от поглощенной дозы излучения. Предельная дозовая нагрузка подбирается для различных полимеров индивидуально. Для ПММА она составляет примерно 400 кГр.

Для механически и радиационно ненагруженной полимерной изоляции с низкой газопроницаемостью возможно повышение длительной электрической прочности путем предварительной обработки материала ионизирующим излучением с дозами, соответствующими максимуму кривой зависимости ресурса от поглощенной дозы излучения.

Эти рекомендации внедрены при разработке и изготовлении стенда "Потенциал", предназначенного для измерения электрофизических характеристик материалов при комплексном воздействии факторов космического пространства в АО "Композит".

ВЫВОДЫ

Основные результаты исследований могут быть обобщены в следующем виде:

1. Газопроницаемость полимеров оказывает существенное влияние на их ресурс в сильном электрическом поле в условиях воздействия ионизирующих излучений. Так, низкая газопроницаемость ПММА обуславливает накопление в нем газообразных продуктов радиолитического разложения под повышенным давлением, увеличивающимся с ростом поглощенной дозы излучения. Это ведет к увеличению ресурса и кратковременной электрической прочности этого полимера при облучении. Ресурс ПЭНП, газопроницаемость которого высока и накопление газообразных продуктов радиолитического разложения в котором не происходит, при облучении уменьшается за счет радиационной деструкции материала.

2. Ресурс исследованных материалов определяется в основном интенсивностью процессов деструкции на молекулярном уровне и лишь на последней стадии старения наблюдается развитие макродефектов.

3. В исследованных полимерах отсутствует значительное накопление объемного заряда при воздействии импульсного электрического поля микросекундного диапазона. В случае ПЭНП это обусловлено экстракцией носителей заряда за время паузы между импульсами вследствие высокой подвижности носителей заряда. В случае ПММА, напротив, инжектированные носители заряда не могут проникнуть в объем полимера вследствие их низкой подвижности.

Основные результаты работы изложены в следующих публикациях:

1. Бычков П.Н., Лопаткин С.А., Никитин В.В. О некоторых особенностях отказов образцов ПММА с различным числом импульсов до пробоя //

Тезисы докладов областной научной молодежной конференции. Томск. 1986. С. 46-48.

2. Устройство для измерения распределения потенциала. / П.Н.Бычков, А.М.Мельников, В.Ф.Бажов, В.Я.Ушаков. А.С.СССР № 1273787, кл. G 01 N 29/00, G 01 R 31/00, приоритет от 2.07.1984, опублик. 30.11.86, бюл. № 44.

3. Бычков П.Н. Влияние деструкции полиметилметакрилата на его электрическое старение // VI Всесоюзная конференция по физике диэлектриков. Томск 23-25 ноября 1988 г. Тезисы докладов. Секция "Пробой и электрическое старение диэлектриков". Томск. 1988.С. 150.

4. Бычков П.Н. Разрушение полимерной изоляции в условиях интенсивных внешних воздействий. // Перенапряжения в электрических сетях и электрическая прочность высоковольтной изоляции. Новосибирск. 1989. С. 111-114.

5. Бычков П.Н., Кузьмин А.Н., Ушаков В.Я. Способ контроля состояния изоляции. А.С. СССР № 1622854. кл. G 01 R, приоритет от 25.07.1988, опубл. 23.01.91, бюл. №3.

6. Влияние микроструктурных нарушений на ресурс полиэтилена в импульсном электрическом поле / П.Н.Бычков, О.С.Гефле, В.П.Суржиков и др. //Электричество. 1991. № 7. С. 70 - 71.