UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

INSTITUTO DE FÍSICA E QUÍMICA DE SÃO CARLOS

ESTUDO DA CONDUTIVIDADE INDUZIDA PELA RADIAÇÃO EM TEFLON IRRADIADO POR RAIOS - X.

ROBERTO MENDONÇA FARIA

(Trabalho apresentado ao Instituto de Física e Química de São Carlos, USP, para a obtenção do título de Mestre em Física)

Orientador:
Prof. Bernhard Gross

DEPARTAMENTO DE FÍSICA E CIÊNCIA DOS MATERIAIS

São Carlos - 1980

USP / IFQSC / SBI
8-2-000517

Este trabalho foi realizado com apoio financeiro da *FAPESP*, *CNPq*, *CNEN* e da *FINEP*.

Ao meu pai, à memória de
minha mãe e à minha irmã,

Toda minha gratidão....

MEMBROS DA COMISSÃO JULGADORA DA DISSERTAÇÃO DE MESTRADO DE

ROBERTO MENDONÇA FARIA

APRESENTADA AO INSTITUTO DE FÍSICA E QUÍMICA DE SÃO CARLOS, DA UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO, EM 03 DE JUNHO DE 1980.

COMISSÃO JULGADORA:

Dr. Guilherme Fontes Leal Ferreira p/- Orientador

Dr. Luiz Ernesto Carrano de Almeida

Dr. Renê Armando Moreno Alfaro

Í N D I C E

AGRADECIMENTOS ..... *I*

RESUMO ..... *II*

ABSTRACT ..... *III*

CONTRIBUIÇÕES ORIGINAIS ..... *IV*

I - INTRODUÇÃO *1*

1. Histórico 1

1.1. Primeira fase - até 1930 1

1.2. Segunda fase - 1930 até hoje 3

- Surgimento dos polímeros sintéticos.....

2. Condutividade Induzida Em Gases..... 10

3. Modelo De Rose-Fowler 12

3.1. Introdução..... 12

3.2. Modelo de Rose 14

3.3. Materiais amorfos e origem das armadilhas... 15

3.4. Valor estacionário da condutividade induzida 17

3.5. Componente atrasada da condutividade induzida 22

3.6. Resultados experimentais 23

II - RESULTADOS RECENTES SOBRE TEFLON FEP *28*

1. TSC Em Amostras Previamente Irradiadas..... 28

2. Relação Entre As Mobilidades Dos Buracos E Dos Elétrons 29

2.1. Técnica do tempo de vôo 32

2.2. Técnica corona 34

III - MEDIDAS DE RADIAÇÃO 35

1. Câmara De Ionização..... 35

2. Corrente Fotônica 37

2.1. Modelo teórico para a fotocorrente 38

2.2. Cálculo da corrente fotônica 43

IV - AMOSTRAS E SISTEMA DE MEDIDA 45

1. Amostras E Contatos 45

2. Sistema De Medidas 47

V - RESULTADOS EXPERIMENTAIS..... 50

1. Absorção Dielétrica 51

2. Medidas Da RIC Para Diferentes Contatos 55

3. Corrente Induzida Como Função Do Tempo 58

4. Recuperação 60

5. Ausência De Polarização 62

6. Variação Da RIC Contra $\dot{X}$ 64

7. Variação Da RIC Contra O Campo 67

8. Componente Atrasada Da Condutividade Induzida... 69

VI - DISCUSSÃO E TEORIA 73

1. Primeiras Interpretações..... 74

2. Estrutura Das Armadilhas 74

3. Parâmetros 76

4. Equação De Balanço 79

4.1. Casos limites 81

4.2. Período de transiente 82

VII - RESULTADOS E CONCLUSÕES 84

1. Crescimento Da RIC 84

2. Transiente 84

3. Componente Atrasada Da RIC 86

4. Condutividade Estacionário 91

5. Absorção Dielétrica 92

BIBLIOGRAFIA 94

AGRADECIMENTOS

Fazer Física neste país não é uma coisa fácil. Porém quem tiver a mesma sorte que eu terá chance de ir em frente.

Tive a sorte de encontrar dois excelentes orienta - dores. Pela compreensão e disposição em ajudar, devo a eles todo o sucesso deste trabalho. Me refiro aos Profs. Bernhard Gross e Guilherme Fontes Leal Ferreira.

Tive a sorte também de conviver com um grupo de pes- soas amigas e solidárias, prontas para qualquer discussão.São elas os professores José Alberto Giacometti, Dr. Milton Soa - res de Campos, Sérgio Mergulhão, Mariangela Tassinari e o Dr. Luís Ernesto Carrano de Almeida.

Ao Prof. René Armando Moreno Alfaro meus agradecimen tos especiais por ter sido quem guiou meus primeiros passos no laboratório.

Agradeço ao Prof. Sérgio Mascarenhas de Oliveira pe- lo apoio dado desde minha primeira pesquisa em Iniciação Cien tífica.

À Yvone pelo esforço e gentileza com que datilogra - fou esta tese.

Também ao amigo Paulinho pela confecção das figuras.

Enfim, a todos professores e funcionários do Departa mento de Física e Ciência dos Materiais.

RESUMO

Neste trabalho obtivemos curvas de corrente induzida por raios-X no teflon FEP que apresentou as seguintes características.

a) Inicialmente a corrente subiu, atingindo um máximo em torno dos 10s; b) Decaiu lentamente durante aproximadamente meia-hora, e; c) Atingiu um estado estacionário dai por diante. Ao se desligar a radiação, registrou-se a componente atrasada desta corrente. Usamos amostras de 25μm de espessura e a área irradiada foi de 12,5cm^2; o campo aplicado da ordem de 10^4 V/cm e a taxa de exposição da ordem de 10^2 R/S. Verificamos que depois de completada uma medida da corrente induzida numa amostra, esta não voltava a se repetir se realizada depois de algumas horas; a corrente então não apresentava um máximo, indo diretamente ao valor estacionário; porém se recuperava com o tempo, repetindo a primeira medida depois de algumas semanas. Para mostrar que esta subida e descida da corrente induzida não era devido a um efeito de campo, realizamos uma medida onde aplicamos o campo intermitentemente por curtos períodos de tempo, enquanto a amostra era irradiada. O resultado se mostrou igual aos realizados com tensão aplicada permanentemente.

Estudamos ainda a dependência da condutividade induzida com a taxa de exposição e com o campo. Finalmente construímos um modelo teórico para o material que permitiu a obtenção de parâmetros do mesmo concordantes com o esperado. Acrescentamos a este trabalho uma curva que mostra o efeito da variação da temperatura sobre uma medida longa da absorção dielétrica.

ABSTRACT

In this work we measured X-ray induced currents in teflon FEP wich show the following features: a) At the beginning the current increases and reaches a maximum at about 10s, b) It decays slowly during 30 minutes, when a steady state is reached the delayed conductivity was also measured. The sample were 25μm thick and the irradiated area was 12,5 cm^2; the applied field was of the order of 10^4 V/cm and the dose rate of the order of 10^2 R/S. It was observed that a new measurement of the induced conductivity does not duplicate the first one, but after a few hours it come backs to the original one.

In order to show that the increase and the deacrease of the current is not caused by an electric field effect we realized a measurement where we polled the sample intermitently while it was irradiated. The current thus obtained had about the same values of the first measurement, when the voltage was applied all the time during the measurement.

We also measured the absortion current of a teflon sample wich shows after some days the effect of its variation due the variation of the ambiental temperature.

CONTRIBUIÇÕES ORIGINAIS

1. Observação de um pico na corrente induzida pela radiação em teflon irradiado por raios-X.

2. Elaboração de uma pequena teoria que explicou muito bem os resultados observados.

3. Obtenção de uma curva de absorção dielétrica que alcançou mais de 350 horas e atingiu correntes da ordem de 10^{-15}A. Nesta medida foi observado a variação da corrente devido as oscilações da temperatura ambiente.

I. INTRODUÇÃO

Desde há muito tempo os efeitos de radiação sobre materiais isolantes vem sendo pesquisados e geralmente os resultados destes trabalhos tem aplicação tecnológica em curto prazo.

O assunto desta tese é uma contribuição a mais ao estudo da condutividade induzida pela radiação (RIC) em polímeros, no caso o teflon. O interesse neste tipo de problema, surgiu originalmente dos efeitos nocivos sob influência das radiações X e gama, nos isolantes utilizados em câmaras de ionização, capacitores e cabos coaxiais, necessários para monitorar e controlar equipamentos associados com intensas fontes de radiação.

Logo a seguir faremos um breve histórico que tem dois objetivos; o primeiro, de simplesmente fazer um pouco de história; e segundo, situar nosso trabalho dentro dos problemas até agora encontrados no campo, visando comparar os resultados por nós encontrados com os demais, sempre alertando para as diferenças das condições experimentais de cada um.

1.1. HISTÓRICO

1.1.1. PRIMEIRA FASE - ATÉ 1930

Os primeiros trabalhos realizados sobre os efeitos da radiação em dielétricos, apareceram já no final do século passado e início deste, isto é, logo após o descobrimento dos raio-X.

J.J.Thomson e Mac Clelland[1](1896) encontraram que a condutividade elétrica da cera de parafina, aumentava quando era

irradiada com raios-X e que ela obedecia à lei de Ohm.

Perreau[2] (1899) mostrou que a resistência intrínseca do selênio aumentava apreciavelmente sob a aplicação de raios-X durante seis dias seguidos, e recuperava rapidamente seu valor sob o efeito de luz visível.

A condutividade da cera de parafina depois da irradiada com raios-γ foi observada por Becquerel[3] (1903), e apresentava um decaimento rápido no início, e mais lentamente em seguida obedecendo uma lei hiperbólica.

Joffé[4] (1906) estudou a condutividade induzida pela radiação em quartzo, encontrando que este efeito persistia por muito tempo depois de cessada a irradiação, confirmando a existência da componente atrasada da condutividade induzida.

Jaffé[5] (1908) (não confundir com Joffé), num trabalho muito cuidadoso, usando parafina líquida, cera de parafina, ebonite e vaselina, e usando como fonte de radiação o rádio produtor de raios γ, demonstrou também a condutividade induzida nestes materiais. Ele distinguiu dois tipos de portadores de cargas tendo mobilidades muito diferentes, que pensou serem íons e elétrons.

Novamente Joffé[6] (1923) encontrou que a condutividade do quartzo aumentava devido às radiações alfa, beta, gama e X, e também por luz ultravioleta, e recuperava seu valor inicial vários meses depois de desligada a radiação.

Em 1927, Neumann[7] verificou que, tanto para enxofre rômbico quanto para o prismático, a curva logarítmo da corrente in-

duzida contra logarítmo do tempo, depois de cessada a irradiação, era uma linha reta.

Nasledow e Scharansky[8] (1929) encontraram que a condutividade induzida na cera de caresina por raios-X, rapidamente alcançava um máximo e caía lentamente ainda durante a radiação (figura 1). Verificaram também que esta condutividade aumentava proporcionalmente à raiz quadrada da taxa exposta; eles explicaram este último comportamento, assumindo que a geração de portadores e a recombinação no dielétrico irradiado segue as mesmas leis dos gases.

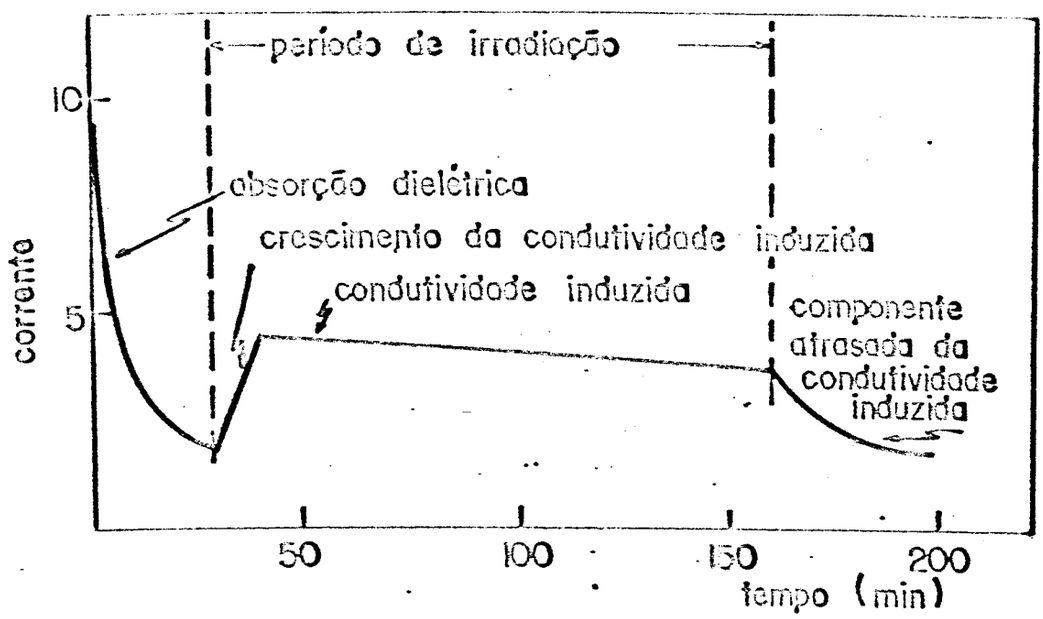


Figura 1

1.1.2. SEGUNDA FASE - 1930 ATÉ HOJE - SURGIMENTO DOS POLÍMEROS SINTÉTICOS

Os primeiros trabalhos sobre efeitos de radiação em polí

meros sintéticos datam do início da década de 40, quando Farmer[9,10,11] publicou artigos tratando do possível uso destes materiais em instrumentos radiológicos. Ele mostrou que sob a irradiação X a condutividade do polistireno aumentava por um fator de 10^8 ou mais, dependendo da quantidade de radiação, e este efeito demorava dias a desaparecer depois de desligada a radiação.

Em 1949, Armstead, Pennock e Mead[12] mediram o comportamento da condutividade induzida por uma fonte de raio-X de 2.5 MeV, em três tipos de polímeros. Eles mantiveram as amostras numa pressão de 1 micron de Hg durante as medidas. Em Okoseal (polivinil clorido) (figura 2) a condutividade cresceu rapidamente logo que se iniciou a radiação, e depressa alcançou um valor de e -

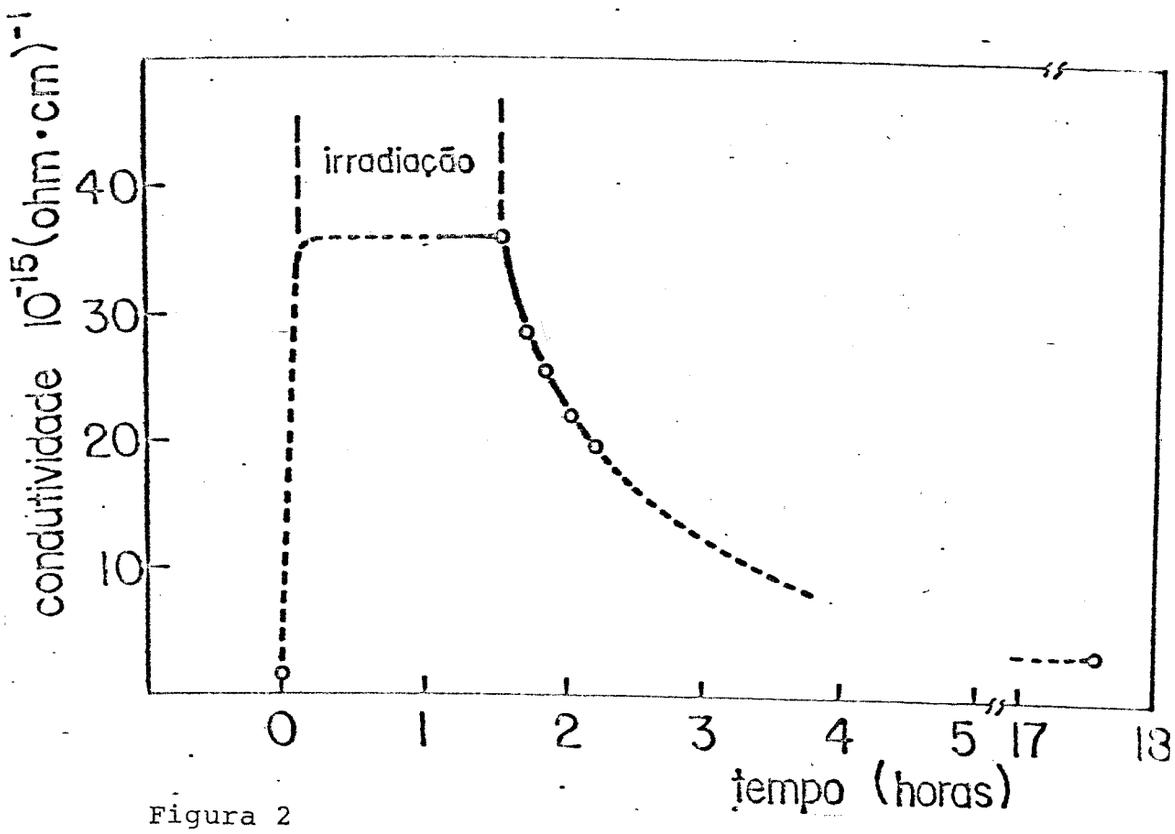


Figura 2

quilíbrio que dependia da taxa de radiação. Este valor era de aproximadamente trinta vezes a condutividade original e a taxa de radiação cerca de 400 R/min. Depois de desligada a radiação, a recuperação de 50% da resistividade se deu em 30 minutos, e de nove décimos em 16 horas. Com Saran (vinilideno clorido) o resultado foi bem diferente. A condutividade cresceu lentamente durante um período de duas horas, com uma taxa de exposição de 2000 R/min. e alcançou três vezes o valor original. A recuperação também se deu de forma bastante lenta, porém foi completa depois de oito horas. Já as medidas com polistireno contradisseram os resultados obtidos por Farmer, visto que para uma taxa de exposição de 1000 R/min., a condutividade aumentou somente por um fator de 10^3. Observamos que apesar de não sabermos o valor da taxa de radiação utilizada por Farmer, sabemos que para um aumento de 10^8 na condutividade do polistireno ele usou uma radiação total de 4000 R, enquanto que no exemplo citado acima utilizou-se 5500 R.

Até aqui os trabalhos citados mostraram um decréscimo na resistividade dos isolantes durante as primeiras horas sob irradiação. Coleman e Bohm[13] em 1953 registraram o efeito contrário. Irradiando vários materiais, tais como: polisturano, polietileno, polimonoclorotrifluoretileno, poliéster e outros, registraram um aumento da resistividade utilizando uma fonte de 25 mC Sr 90 de raios β. As figuras 3 e 4 mostram o resultado obtido em polisturano. Para uma descrição teórica da resistividade induzida, Bohm propôs uma teoria baseada no efeito de armadilhas sobre elétrons e buracos. Os portadores criados pela radiação seriam

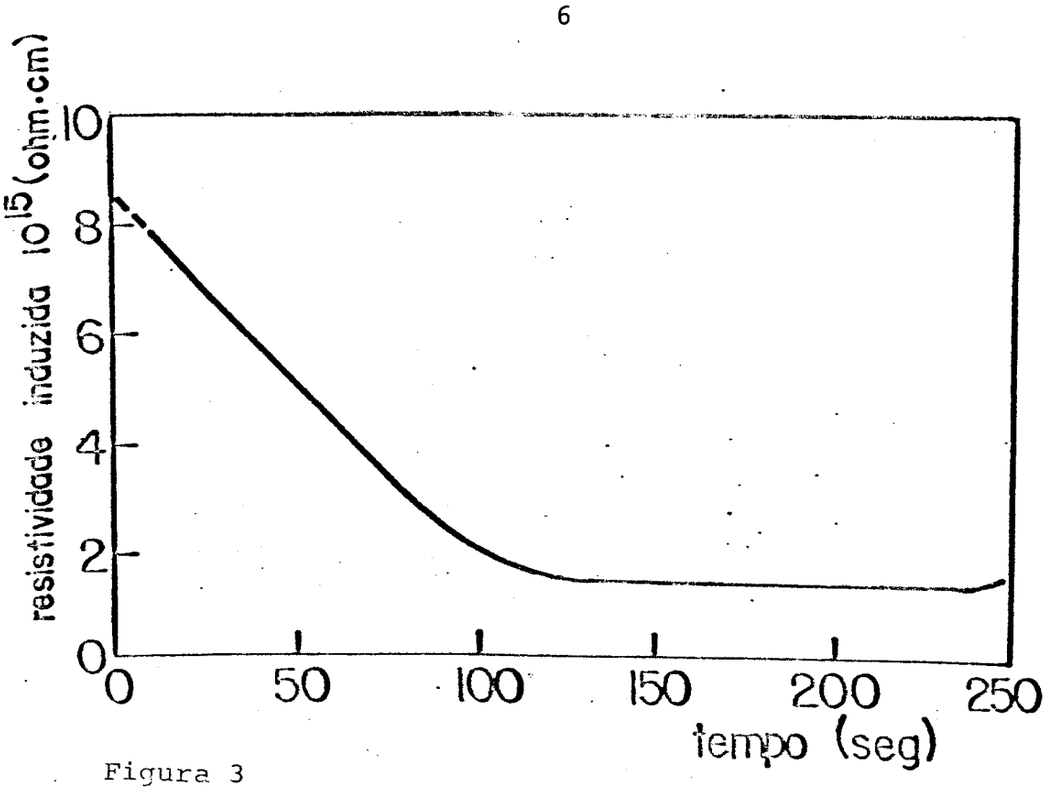


Figura 3

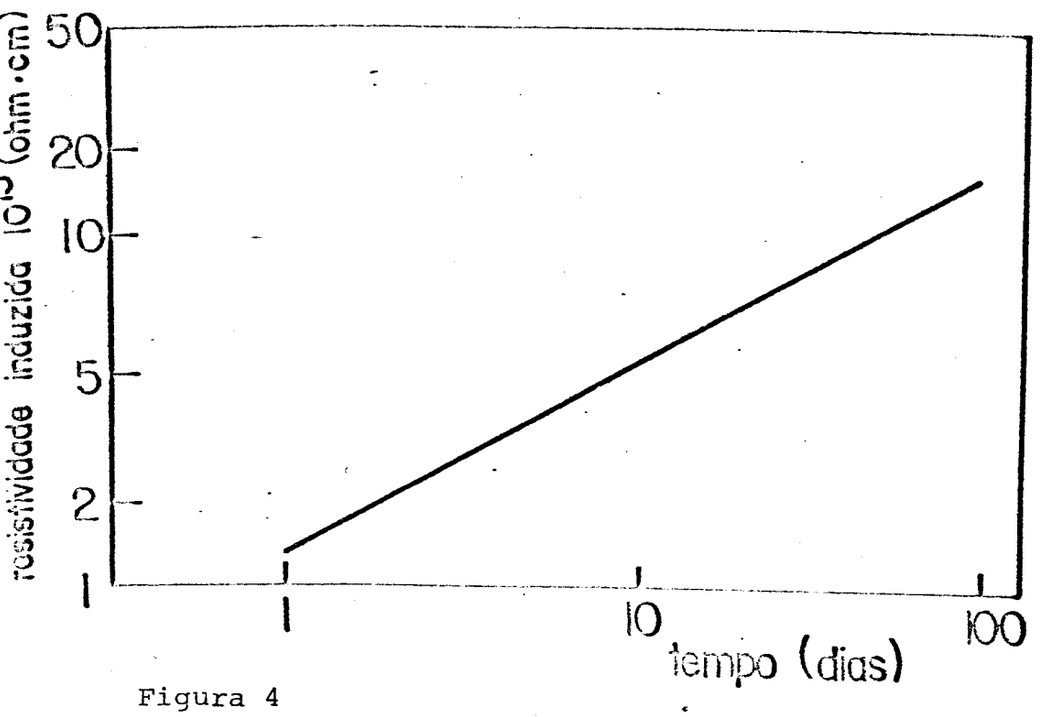


Figura 4

capturados pelas armadilhas num tempo menor que um segundo e liberados depois de aproximadamente 30 segundos. Supõe-se que depois de algum tempo haja um equilíbrio de carga devido ao efeito de recombinação elétron-buraco; isto explicaria o valor mínimo da resistividade apresentada na figura 3. Posteriormente a radiação criaria novas armadilhas no material causando o crescimento da resistividade. Observamos aqui, que Bohm, implicitamente, propõe um modelo baseado na teoria de bandas para estes materiais.

O trabalho mais elaborado e mais completo que apareceu até hoje, sobre o efeito da radiação na condutividade de materiais altamente isolantes, foi feito por Fowler[14]. Ele também construiu um modelo para estes materiais que permite ajustar muito bem os resultados teóricos com os experimentais, e também calcular alguns parâmetros físicos para cada material. Não nos deteremos muito neste momento no trabalho de Fowler, porque logo mais iremos detalhá-lo melhor e, posteriormente, compararemos nossos resultados com o dele. Anotaremos simplesmente que ele observou que em vários isolantes, principalmente polietileno, a condutividade aumentou em várias ordens de grandeza sob o efeito da radiação X, utilizando uma taxa de exposição da ordem de 10 R/min.

Quase que simultaneamente com Fowler, três pesquisadores da Califórnia, Mayer, Bouquet e Alger[15] (1956), publicaram um artigo tratando do mesmo assunto, utilizando amostras de teflon e polietileno. Anotaram que até aquela data, só existiam resultados detalhados sobre condutividade induzida para taxas de radiação inferiores a 100 rad/min. Eles foram os primeiros que levaram em conta a corrente criada na direção do feixe de radiação inciden

te, subtraindo-a da corrente induzida com campo aplicado.Esta corrente, que aparece sem campo, é devido à interação Compton ou fotoelétrica com os átomos constituintes do material. Mais adiante, apresentaremos um modelo teórico elaborado pelo professor Gross para este efeito[31]. Estes pesquisadores verificaram que para uma taxa de centenas de rad/min., a condutividade alcança um equilíbrio em aproximadamente $10^{-14}(ohm.cm)^{-1}$ entre 20 e 40 segundos, e permanece constante durante o período de irradiação. E quando desligada a radiação, a condutividade cai imediatamente por um fator de 100 e então gradualmente retorna a seu valor inicial. Encontraram também que a relação entre a condutividade e a taxa de radiação é aproximadamente linear, e anotaram que para o polietileno se variou a taxa entre 0.7 a 1200 rad/min. Discutiram também considerações sobre o modelo teórico calcado na teoria de bandas, levantando a hipótese da existência de armadilhas rasas e profun - das.

Martin e Hirsch[16] em 1971, realizaram um trabalho sobre RIC em polietileno, polistireno e polietileno teraftalato com pulsos de radiação eletrônica da ordem de nanosegundos. As amostras utilizadas foram da ordem de 10μm de espessura, e a energia do feixe 5 keV contendo em cada pulso $10^{-12}C/m^2$, o que equivale a uma taxa de aproximadamente 10^9 rad/seg. Seus resultados estão em concordância com os anteriores em relação à dependência da RIC com a taxa de radiação. Porém chamam atenção de que não fica claro se um verdadeiro estado estacionário é alcançado. Dizem que se o pulso persistir por mais tempo, a corrente induzida começa a cair.

O professor Gross, juntamente com G.M. Sessler e J.E. West[12] realizaram um trabalho onde mostram que a RIC em teflon é grandemente reduzida, depois de um maciço bombardeamento eletrônico. Este fenômeno já foi observado por Bohm e Coleman em outros polímeros, e apesar das taxas de radiação aplicadas serem diferentes, as taxas totais são da mesma ordem. No trabalho agora citado, a taxa total de radiação foi cerca de 50 Mrad.

Chamamos agora a atenção para o resultado de um trabalho sobre irradiação gama em teflon FEP, realizado recentemente por B. Gross e J.E.West[18]. Trabalhando com amostras de espessura de 25μm e taxa de radiação de 120 R/seg., e campo $3,6 \times 10^4$ V/cm, obtiveram a curva de corrente induzida contra tempo mostrada na figura 5. Com a radiação aplicada a corrente cresce, alcança um pico no valor de $4,6 \times 10^{-10}$ A/cm^2 em 5 segundos, e então decai. Depois de aproximadamente 12 minutos alcança um aparente estado estacionário, onde a corrente vale $1,7 \times 10^{-10}$ A/cm^2. Um resultado parecido com este foi observado a 50 anos por Nasledow e Scharansky[8].

Por último, apresentamos o trabalho dos japoneses H.Maeda, M.Kurashige e T, Nakakita[19], publicado no início deste ano. Trabalhando com polietileno-teraftalato e com radiação gama, eles observaram basicamente três novas informações: a) que a RIC e o valor de Δ dependem do campo elétrico, quando este varia entre os valores de 10^4 a 10^6 V/cm; b) que a RIC e Δ dependem da espessura da amostra; e c) um lento crescimento da corrente com o tempo aparece para voltagens acima de 10^6 V/cm.

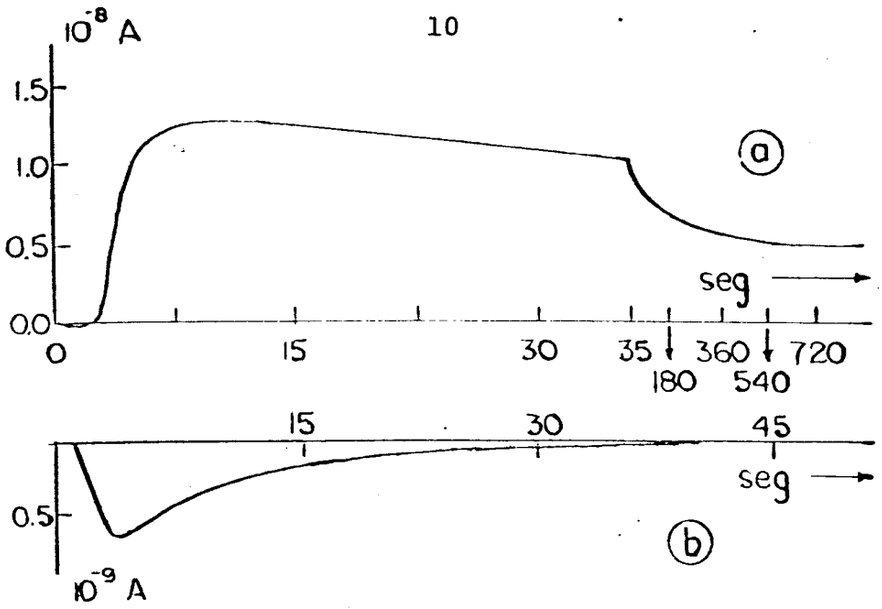


Figura 5

1.2. CONDUTIVIDADE INDUZIDA EM GASES

Até a década de trinta, era comum utilizar-se dos resultados teóricos da condutividade induzida em gases densos para explicar os resultados da condução induzida em isolantes. E com certa razão, visto que os dois fenômenos têm muitos pontos comuns. Passamos então a descrever tal modelo, já que pela sua simplicidade nos ajudará muito a compreender o que acontece nos sólidos dielétricos.

Em primeiro lugar vamos definir as grandezas que aqui aparecem e que serão encontrados ao longo deste trabalho.

p.... poder de ionização, isto é, número de portadores criados por unidade de volume e por unidade de tempo devido à irradiação $[cm^{-3}.seg^{-1}]$

α.... coeficiente de recombinação, isto é, número de portadores que desaparecem numa unidade de volume por unidade de tempo, devido à recombinação de portadores de cargas contrárias. $[cm^3.seg^{-1}]$

μ.... mobilidade dos portadores, isto é, coeficiente resultado da relação entre a velocidade dos portadores e o campo elétrico aplicado. $[cm^2.V^{-1}.seg^{-1}]$

Vamos supor um condensador plano, cujo recheio dielétrico é um gás. Quando se irradia o gás, há uma criação de portadores positivos e negativos em igual número. Para estudar a condutividade induzida aplica-se uma voltagem neste condensador, e para campos fracos despreza-se a perda de cargas através dos eletrodos. Assim, podemos escrever a equação de balanço iônico:

$$\frac{dn}{dt} = p - \alpha n^2 \qquad \text{I.1}$$

onde n é o número de portadores de cada sinal.

Resolvendo-se esta equação diferencial, encontramos que o crescimento de n durante a irradiação segue a lei,

$$n = n_o \frac{e^{2\sqrt{\alpha p}t} - 1}{e^{2\sqrt{\alpha p}t} + 1} \qquad \text{I.2}$$

Mas, num determinado momento, alcança-se o equilíbrio, isto é, dn/dt = 0, e daí tira-se que o valor do número de portadores neste estado vale,

$$n_o = \sqrt{\frac{p}{\alpha}} \qquad \text{I.3}$$

Desligando-se a irradiação, p = 0, obtém-se a lei de queda de n com o tempo,

$$n = \frac{n_o}{1 + \alpha n_o t} \qquad I.4$$

CONCLUSÕES:

a) Na aproximação de campos fracos, vale a lei de Ohm, e portanto que a condutividade é proporcional a n,

$$\sigma = 2\mu ne$$

b) Sendo p diretamente ligado à taxa de radiação X, a condutividade no equilíbrio será proporcional à raiz quadrada da taxa de radiação,

$$\sigma \sim \dot{X}^{1/2}$$

c) A componente atrasada da condutividade induzida decresce no tempo, obedecendo nesta relação, uma lei hiperbólica.

1.3. MODELO DE ROSE-FOWLER

1.3.1. INTRODUÇÃO

O modelo que passamos a discutir agora foi um marco no

estudo da condutividade induzida em isolantes devido a radiação ionizante[14]. Foi desenvolvido por Fowler a partir do modelo de bandas para fotocondutores, brilhantemente elaborado por Rose[20,21].

Iniciamos a descrição com as assunções escritas por Fowler: "É assumido que a radiação ionizante produz elétrons livres (e igual número de buracos positivos) através do volume da substância. Desde que 1 em 10^3 destes serão elétrons rápidos produzidos por ionização primária, é assumido que a maioria dos elétrons livres tem energia térmica. O arrastamento destes elétrons (ou buracos), quando um campo elétrico é aplicado, é medido como uma "corrente induzida". Elétrons de condução podem, e é assumido, serem capturados por armadilhas eletrônicas de natureza não especificada, das quais mais tarde serão libertadas termicamente, originando uma constante de tempo que pode ser muito longa. Condução iônica é assumida ser desprezível , porque energias de ativação muito altas seriam necessárias para movimentar um portador de carga tão grande quanto um átomo através de substâncias amorfas".

Elétrons de condução quer dizer elétrons que estão nos níveis de condução. As armadilhas estariam situadas num intervalo de energia localizada entre os elétrons ligados (banda de valência) e os elétrons livres (banda de condução).

Para uma melhor compreensão deste modelo se faz necessário explicá-lo de maneira detalhada. De forma alguma isto é irrelevante, visto que durante este trabalho raciocinaremos sempre tendo esta representação teórica em mente.

1.3.2. MODELO DE ROSE

A figura 6 nos dá uma visão muito boa do modelo proposto por Rose que serve tanto para semicondutores como para isolantes. Nele vemos a banda de condução, onde elétrons são livres para se mover sob a ação de um campo elétrico, e a banda de valência, onde são livres os buracos. No intervalo de energia proibido, entre as bandas de valência e de condução, encontram-se os centros de recombinação e as armadilhas para elétrons e buracos. Se não existirem armadilhas podemos considerar que o nível de Fermi está próximo dos centros de recombinação. Designamos P_r a densidade de cen

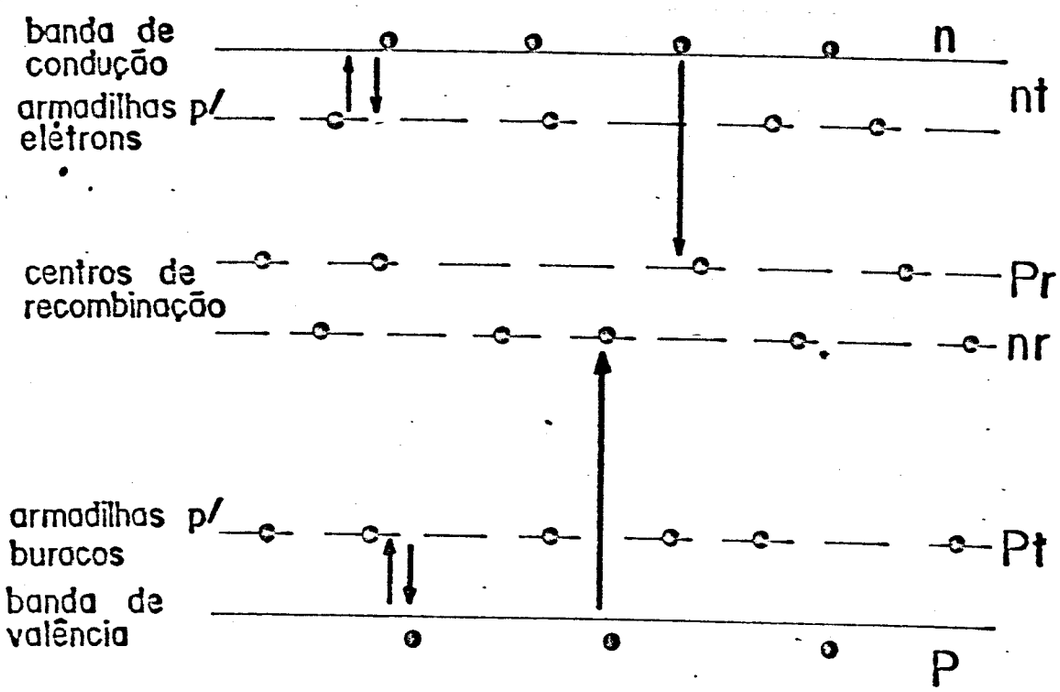


Figura 6

tros desocupados por elétrons e n_r a densidade de centros ocupados por elétrons. Os estados p_r e n_r são chamados estados de recombinação porque um elétron livre capturado num dos estados p_r (portanto convertendo-o num estado n_r) capturará um buraco livre antes de ser termicamente reexcitado para a banda de condução. O mesmo acontece com os buracos que serão capturados por estados n_r.

Nos estados de armadilhas, um elétron livre capturado por um estado desocupado, será termicamente reexcitado para a banda de condução antes de capturar um buraco livre. O elétron no estado de armadilha é dito estar em "contato térmico" com a banda de condução. O mesmo acontece com os buracos que estão nas armadilhas e a banda de valência.

1.3.3. MATERIAIS AMORFOS E ORIGEM DAS ARMADILHAS

Neste momento aparece uma dúvida que é necessário dissipar: Podemos aplicar o modelo de teoria de bandas para materiais amorfos? São de Rose as palavras que seguem:

"A descrição detalhada da "banda de condução" em materiais amorfos pode ser duvidosa, mas o fato de que existe energias nas quais os elétrons são móveis e outras nas quais eles não são móveis é irrefutável. Em breve, uma pura existência da estrutura de bandas poderá ser derivada da proximidade dos átomos e de suas propriedades atômicas, não necessariamente requerendo um arranjo periódico dos átomos".

A origem de armadilhas em materiais amorfos foi propos-

ta por Fröhlich em 1945 e sintetizada por Simpson em 1949[22]. É importante registrar que não existem materiais com estrutura só puramente amorfa ou só puramente cristalina. Muitos polímeros são constituídos de regiões cristalinas, sendo randomicamente embebidas numa massa amorfa. Citamos abaixo possíveis tipos de armadilhas eletrônicas.

a) Aquelas devido à ausência de íons negativos num ponto regular da rede.
b) Aquelas devido a íons intersticiais de um dos constituintes da rede ou de substâncias estranhas a ela.
c) Aquelas devido a substituição de um constituinte da rede por um íon ou átomo estranho.
d) Aquelas devido a descontinuidades na estrutura da rede, tais como deslocamentos, fronteiras entre regiões cristalinas, etc.

Este último tipo é considerado o que existe em maior número nos amorfos e aparece distribuído continuamente em energia, desde a banda de condução até um valor fixo, não muito profunda.

Fowler utilizou-se dessas proposições, e idealizou seu modelo, contendo uma distribuição contínua de armadilhas, e propôs dois tipos: a) uniforme, e, b) decrescendo exponencialmente com a profundidade. Estas distribuições são mostradas na figura 7. Em seu trabalho, considerou que só os elétrons podiam se mover livremente sob a ação de um campo elétrico. Isto vale, em boa aproximação, para materiais onde a mobilidade eletrônica é bem maior que a mobilidade dos buracos. O mesmo vale colocando buracos móveis e elétrons fixos.

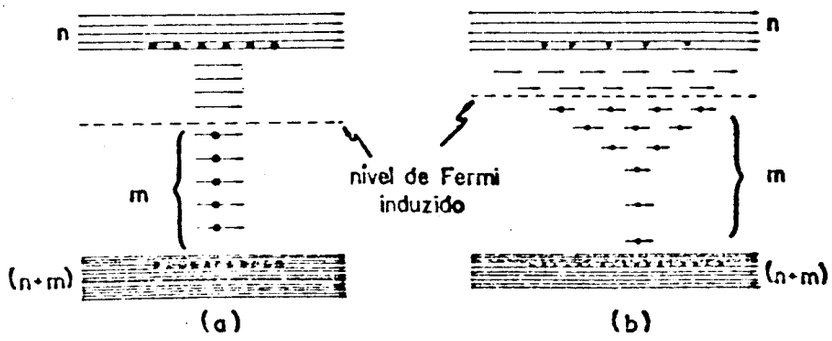


Figura 7

1.3.4. VALOR ESTACIONÁRIO DA CONDUTIVIDADE INDUZIDA

Definimos as grandezas que serão úteis daqui em diante.

p .... número de elétrons por cm^3 por segundo liberados para os níveis de condução devido à radiação ionizante.

n .... número de elétrons por cm^3 na banda de condução (BC).

m .... número de elétrons por cm^3 presos nas armadilhas.

n+m .... número de buracos por cm^3 na banda de valência (BV).

α .... coeficiente de recombinação entre elétrons na BC e buracos na BV. $|cm^3/seg|$

O coeficiente de recombinação é dado por $\alpha = vq$.

v .... velocidade média dos elétrons na BC.

q .... seção de choque para recombinação de um elétron e um buraco.

A corrente induzida numa amostra é diretamente proporcional à densidade de portadores de condução, e considera-se válida a relação

$$\vec{J} = ne\mu\vec{E} \qquad \text{I.5}$$

$\vec{J}$ .... densidade de corrente

$\vec{E}$ .... campo elétrico aplicado na amostra.

Define-se a condutividade induzida σ como,

$$\sigma = ne\mu \qquad \text{I.6}$$

Sabendo então o valor de n, tira-se o valor de σ. Assume-se durante a irradiação a igualdade entre a taxa de criação de portadores livres e seu desaparecimento por recombinação. Escrevendo este balanço numa forma algébrica, tem-se:

$$p = \alpha n(n + m) \qquad \text{I.7}$$

Postula-se que haja um equilíbrio térmico entre os elétrons presos e os livres, e assume-se que a densidade de elétrons presos nas armadilhas, m, é aproximadamente igual ao número de buracos; isto implica que $m >> n$.

Em primeiro lugar considera-se a distribuição uniforme de armadilhas em energia, isto é, $m(E) = K$. Pode-se então escrever,

$$dm = cte\ dE \qquad \text{I.8}$$

Integra-se o primeiro membro de zero a m, enquanto o segundo vai de E_F a E_V, onde E_F é a energia de Fermi e E_V a energia

no topo da BV. Obtém-se o seguinte resultado,

$$m = cte.(E_V - E_F) \qquad I.9$$

Para calcular o valor de cte., integra-se a equação I.9 de E_C a E_V. E_C é a energia no fundo da BC e é considerado zero. Isto dá o número total de armadilhas M no material.

$$cte = \frac{M}{E_V} \qquad I.10$$

Daí,

$$m = M \frac{E_V - E_F}{E_V} \qquad I.11$$

Vê-se então, que para $E_F = E_V$, o número de elétrons nas armadilhas é zero, e se $E_F = E_C$, todas as armadilhas estão recheadas de elétrons.

Substituindo I.11 em I.7, fica,

$$p = \alpha n M \frac{E_V - E_F}{E_V} \qquad I-12$$

α, M e E_V são valores constantes e dependem do material em questão. E_F é constante para uma certa quantidade de elétrons aprisionados, e no estado estacionário considera-se que este número varia muito pouco. Então n varia linearmente com p. Por sua vez, p é diretamente proporcional a taxa de radiação exposta $\dot{X}$. Conclui-se que,

$$\sigma \sim \dot{x}$$

Consideramos agora a distribuição exponencial de armadilhas. O número de armadilhas entre E e E + dE é dado por,

$$dm = Ae^{-E/kT_1}\, dE \qquad \text{I.13}$$

onde T_1 é uma constante do material e vale a relação $T < T_1$.

Calculando m da mesma forma anterior,

$$m = AkT_1 e^{-E_F/kT_1} \qquad \text{I.14}$$

já que $e^{-E_F/kT_1} >> e^{-E_V/kT_1}$

O número total de armadilhas agora vale,

$$M = A \int_0^{E_V} e^{-E/kT_1}\, dE \qquad \text{I.15}$$

donde,

$$M = AkT_1$$

Finalmente,

$$m = Me^{-E_F/kT_1} \qquad \text{I.16}$$

A aproximação clássica para o número de elétrons na banda de condução é dada por

$$n = N_c e^{-E_F/kT} \qquad \text{I.17}$$

e,

$$e^{-E_F/kT_1} = \left(\frac{n}{N_c}\right)^{T/T_1} \qquad \text{I.18}$$

Substituindo em I.7, na aprox. de m >> n obtem-se,

$$p = \alpha \frac{M}{N_c^{T/T_1}} n^{\frac{T + T_1}{T_1}} \qquad \text{I.19}$$

ou então,

$$n = \left(\frac{\alpha M}{N_c^{T/T_1}} \right)^{-\Delta} p^{\Delta} \qquad \text{I.20}$$

onde $\Delta = \dfrac{T_1}{T + T_1}$

Da maneira anterior, concluímos que,

$$\sigma \sim \dot{X}^{\Delta}$$

e vê-se que para T = o, temos $\Delta = 1$, e para $T = T_1$, $\Delta = 0.5$. Portanto Δ varia entre 0.5 e 1.

1.3.5. COMPONENTE ATRASADA DA CONDUTIVIDADE INDUZIDA

Durante uma medida da condutividade induzida, ao se cortar a irradiação, seu valor não vai imediatamente a zero, senão que, inicialmente aparece uma queda abrupta, e logo em seguida passa a decair mais lentamente. Fowler se importou em explicar detalhadamente esta queda mais lenta.

O postulado do equilíbrio térmico entre os elétrons presos e os de condução que Fowler utilizou para o cálculo anterior continua válido para o decaimento da condutividade.

Supõe-se agora um equilíbrio entre o número de portadores que se recombinam e aqueles que são liberados das armadilhas por efeito térmico. Não existindo mais a produção de pares, a população eletrônica na BC irá diminuir substancialmente, e portanto o número de elétrons nas armadilhas também irá diminuir à medida que são excitados para a BC.

O número de portadores, dependentes do tempo, na BC, segundo os cálculos de Fowler vale,

$$n = \frac{n_o}{1 + \alpha n_o \frac{T_1}{T} t} \qquad \text{I.21}$$

Esta última equação mostra que a queda de corrente é tanto menor quanto menor for T_1/T, isto é, quanto menor for o coeficiente Δ.

A queda rápida no início que citamos acima, deve ser, dentro deste modelo proposto por Fowler, devido ao fato de que o equilíbrio térmico entre o escape das armadilhas e a recombinação não

se estabelece imediatamente, já que no início esse escape é menor do que a taxa inicial de recombinação.

Chamando S a "frequência para tendência de escape" a probabilidade para o escape de uma armadilha de energia E será:

$$p = Se^{-E/kT} \qquad \text{I.22}$$

onde S é da ordem de 10^{10} seg^{-1}. O tempo de vida na armadilha será:

$$\tau = \frac{1}{S} e^{E/kT} \qquad \text{I.23}$$

Não haverá queda inicial se $S > \alpha N_c \frac{T + T_1}{T}$ e $S \geq \alpha N_c \frac{E_F - E_V}{kT}$, para distribuições exponencial e uniforme respectivamente. O importante é que estas previsões são confirmadas experimentalmente.

1.3.6. RESULTADOS EXPERIMENTAIS

Apresentamos agora, alguns resultados experimentais publicados no artigo de Fowler, todos eles realizados com polietileno. Em forma tabular, Fowler sumariza resultados obtidos com vários outros materiais.

As figuras 8 e 9 mostram o aparecimento da RIC durante a irradiação com raios-X e a componente atrasada depois de desligada a radiação, para duas temperaturas diferentes, 80,5°C e 20°C respectivamente. Nelas vemos claramente o rápido aumento da cor-

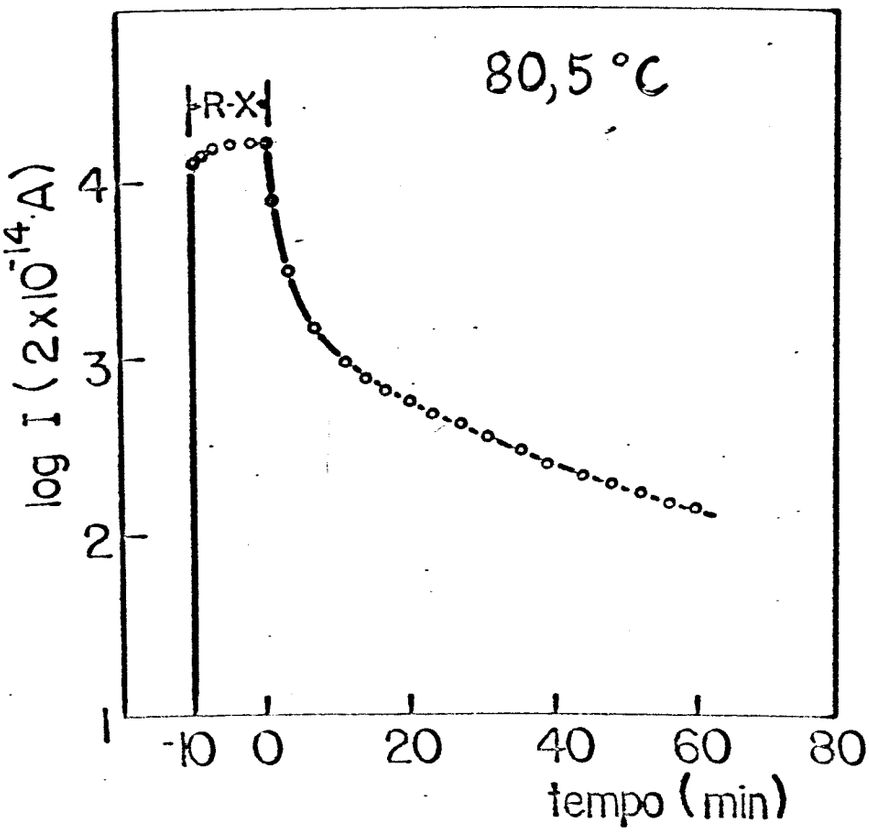


Figura 8

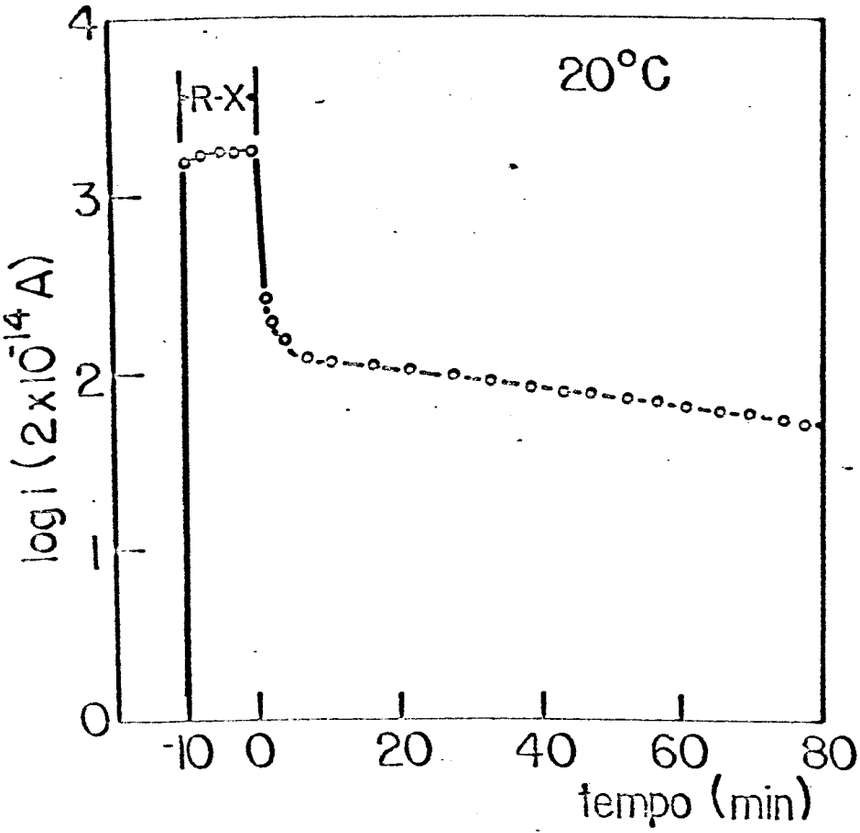


Figura 9

rente, o valor estacionário durante o período de radiação, a rápida queda seguida de uma mais lenta depois de desligada a radiação.

Na figura 10, confirma-se a variação $\sigma \sim \dot{X}^{\Delta}$ no gráfico log i contra log $\dot{X}$ para várias temperaturas. $\dot{X}$ variou de 0.05 a 60 R/min e o valor de Δ encontrado foi de aproximadamente 0.81 dentro, portanto, do previsto teoricamente.

Já na figura 11, tem-se a configuração do decaimento hiperbólico no tempo da componente atrasada da condutividade. A uma temperatura de 81,5°C e para taxas de radiação variando entre

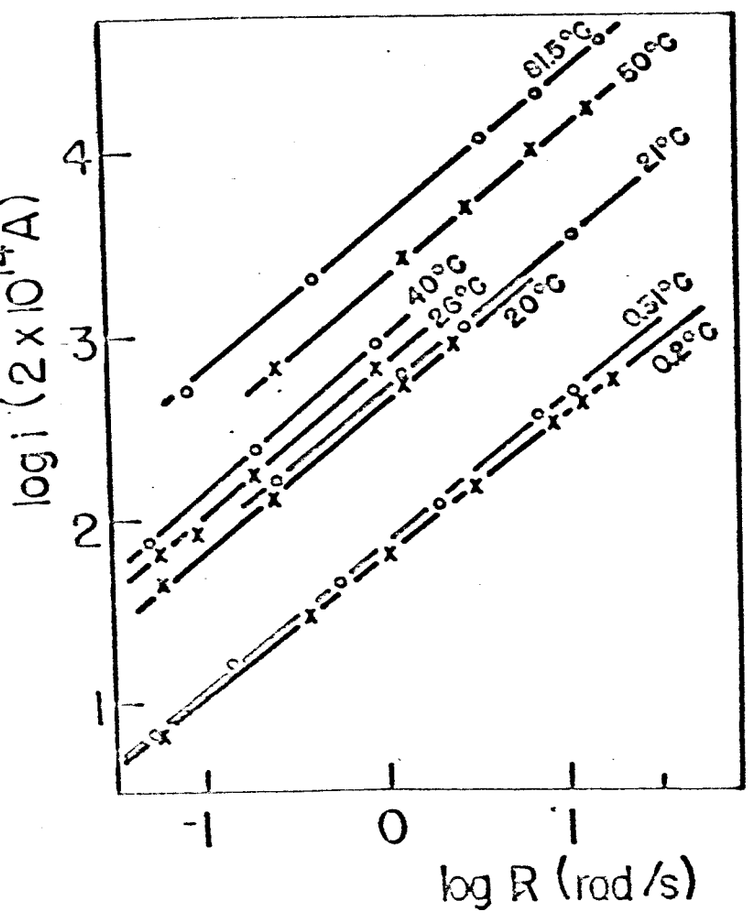


Figura 10

0.05 R/min e 15 R/min, construiu-se o gráfico da figura 12 de n_o/n contra t. Todas as curvas são retas o que está de acordo com a teoria. Os valores entre parêntesis indicam o coeficiente angular de cada reta.

A tabela abaixo contém dados e informações tirados da teoria e dos resultados experimentais para muitos materiais.

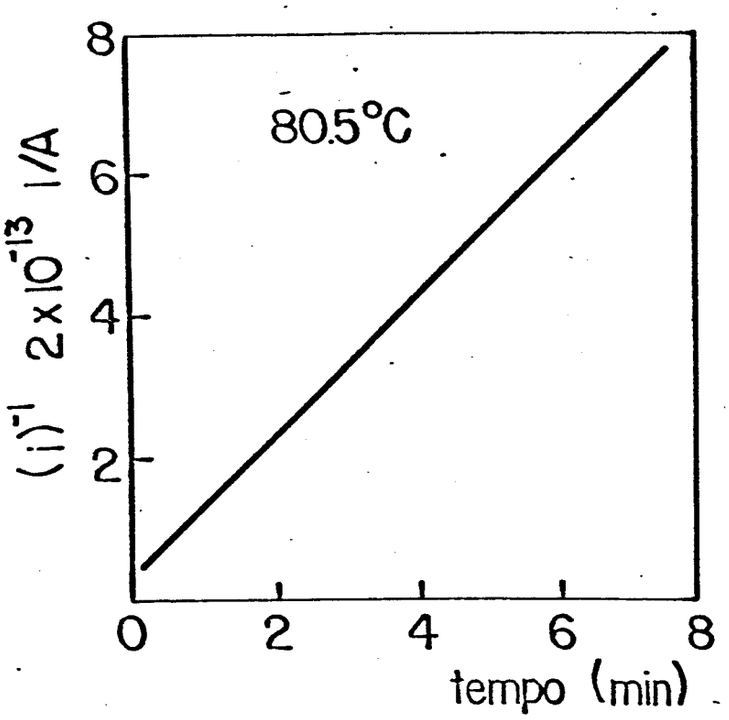


Figura 11

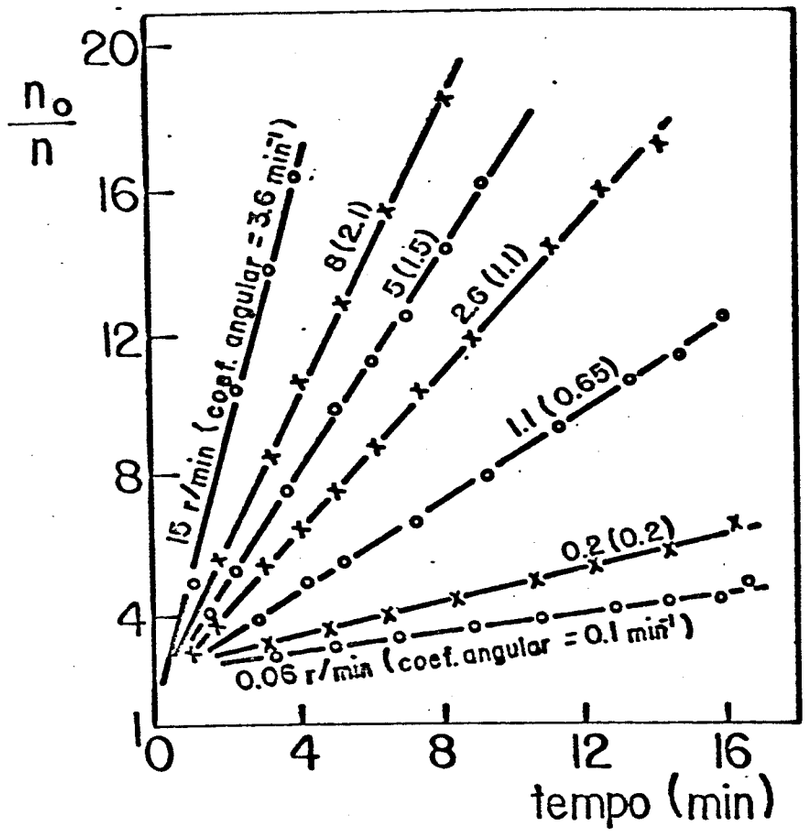


Figura 12

TABELA DE PARÂMETROS PARA CADA MATERIAL

Material	Δ	E(eV)	σ a 20°C 8 R/min $(\Omega cm)^{-1}$
Polietileno teraftalato	0.83	0.18	6×10^{-20}
Polietileno	0.81	0.35	9×10^{-17}
Polistireno	0.75	0.18	1×10^{-18}
Teflon PTFE	0.63	0.5	8×10^{-17}

II. RESULTADOS RECENTES SOBRE TEFLON FEP

Neste capítulo descreveremos alguns trabalhos realizados recentemente e que revelam importantes informações a respeito do teflon FEP. Estas informações darão subsídios para o desenvolvimento teórico que iremos propor e também serão úteis para os nossos cálculos.

2.1. TSC EM AMOSTRAS PREVIAMENTE IRRADIADAS

Através de medidas de TSC em teflon FEP, amostras de 25μm de espessura, previamente irradiado, Gross, Sessler e West[23], obtiveram importantes dados a respeito deste material. As primeiras medidas foram feitas com amostras não irradiadas, e o resultado aparece na figura 13. A curva I dá o aumento da corrente devido ao aumento constante da temperatura, já a curva II mostra a diferença entre a curva I e a medida da corrente devido ao decréscimo da temperatura. O pico nesta curva, que aparece em torno de 195ºC, indica a existência de portadores presos em armadilhas. Concluem também os autores que deve existir portadores de ambos os sinais em número aproximadamente igual, visto que medidas de indução de carga realizada em amostras metalizadas num só lado mostraram pouco excesso de carga.

O campo aplicado na amostra durante esta medida foi de $3{,}6 \times 10^{4}$ V/cm, e a 200ºC o valor calculado da condutividade intrínseca foi de $7 \times 10^{-17} (\Omega cm)^{-1}$, e da constante dielétrica 2×10^{-13}F/cm.

Utilizando o circuito da figura 14, batizado em inglês de "Split-Faraday-cup"[24] e irradiando a amostra pelo eletrodo da frente com um feixe eletrônico de energia 40KeV, os autores obtiveram os termogramas da figura 15. A voltagem tem sua polaridade aplicada no eletrodo frontal, enquanto que o eletrodo de trás é ligado à terra. Os elétrons não são transpassantes, e atingem uma profundidade que é uma fração da espessura do filme.

Na região irradiada aparece uma condutividade induzida, e na região não irradiada o material permanece com sua condutividade intrínseca. Ao se aplicar uma tensão na amostra, o campo empurra portadores criados pela ionização da região ionizada para a não ionizada. Com tensão positiva, os portadores empurrados são os buracos, e com tensão negativa, são os elétrons que abandonam a região irradiada, e sob o efeito do campo aplicado atravessam a região não irradiada. Na figura 15, com a amostra polarizada positivamente (curva IV), aparecem dois picos de corrente, um em torno de 90ºC e outro em torno de 160ºC. Isto prova que existe uma região de armadilhas rasas e outra de armadilhas profundas para os buracos.

2.2. RELAÇÃO ENTRE AS MOBILIDADES DOS BURACOS E DOS ELÉTRONS

Utilizando o circuito da figura 14, Gross e outros[23], mostraram que a mobilidade dos buracos é maior que a mobilidade eletrônica. Este resultado está em concordância com os já obtidos por Sessler e West[25]. O gráfico da figura 16, mostra as correntes registradas nos medidores colocados nos eletrodos da fren

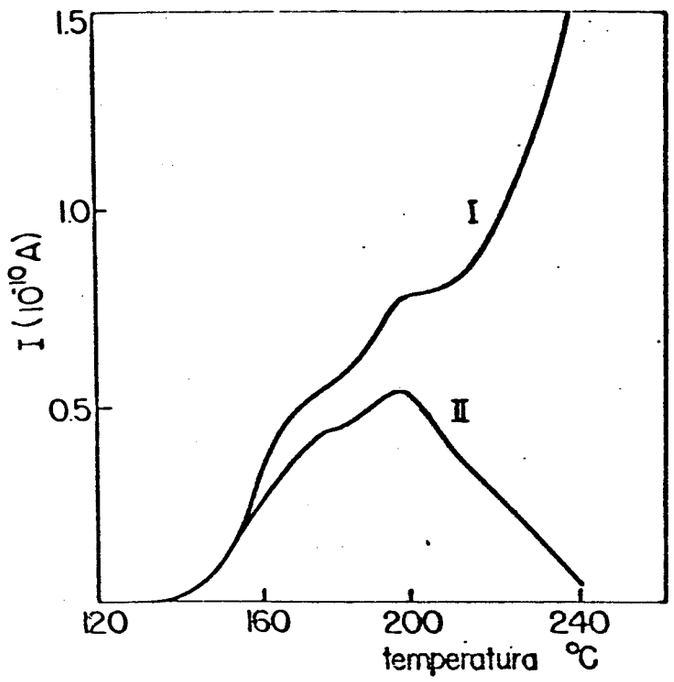


Figura 13

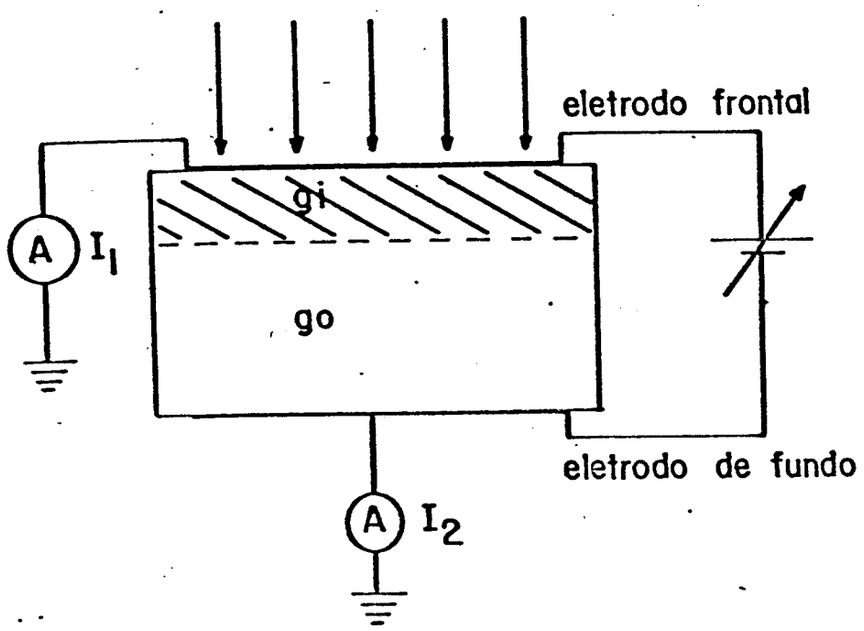


Figura 14

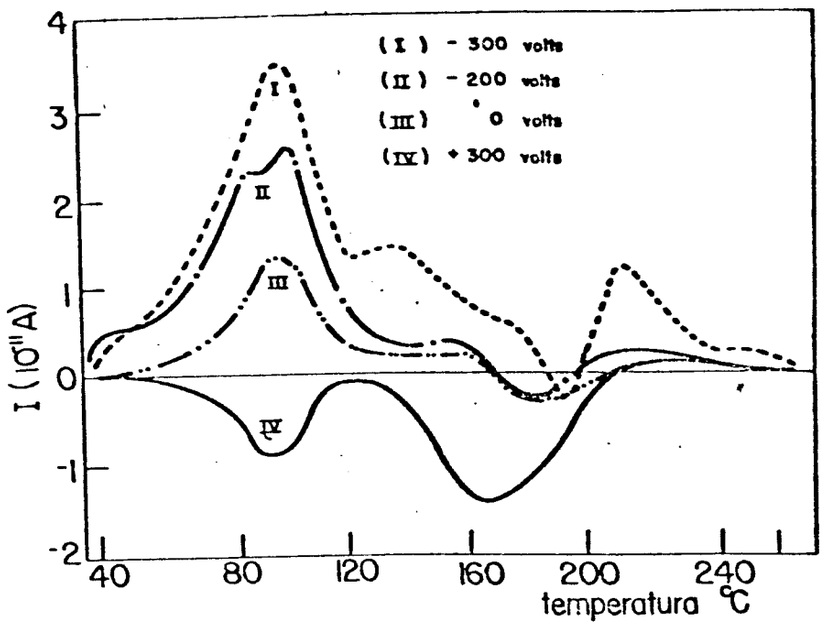


Figura 15

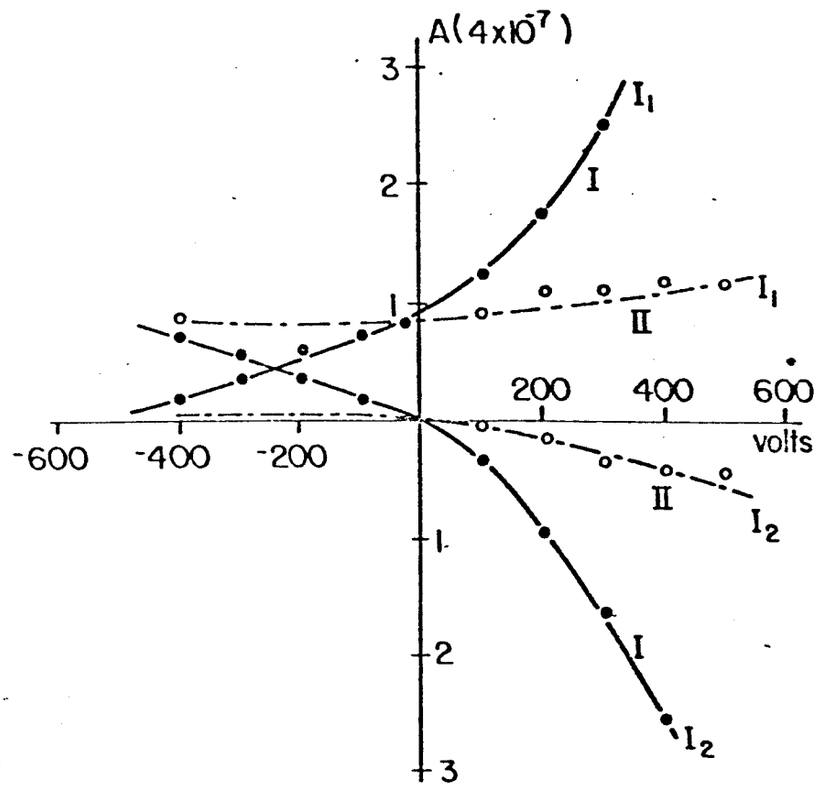


Figura 16

te (I_1) e de trás (I_2). Para esta experiência, a amostra é irradiada com um feixe eletrônico de corrente igual a 10^{-7}A e energias de 40KeV e 50KeV. A polaridade no eletrodo frontal variou entre -600V e 600V, enquanto se irradiava a amostra. Com o feixe de menor energia, a corrente de fundo (I_2) permanecem zero para voltagens negativas, e cresceu lentamente para voltagem positivas, alcançando um valor aproximadamente igual a $7,0 \times 10^{-8}$ A , quando a tensão era máxima. Com o feixe de energia maior(50KeV), observou-se o fluxo de corrente para ambas polaridades, porém as correntes que aparecem com a polarização positiva são maiores comparadas com as correntes devido a polarização negativa.

Cálculos mostrando um valor aproximado para a mobilidade dos buracos numa região não irradiada, foram feitos por Gross e Nunes[26], e encontraram o valor de $1.3 \times 10^{-9} \frac{cm^2}{v.seg.}$. Em seguida mostraremos dois trabalhos que nos permite avaliar o valor da mobilidade dos buracos no teflon FEP, que estão em concordância com este valor.

2.2.1. TÉCNICA DO TEMPO DE VÔO

Este trabalho foi publicado em meados deste ano[27], e se utiliza da técnica do trânsito de excesso de cargas através de materiais de baixa condutividade. Para introduzir esse execesso de carga, irradiou-se o teflon com pulsos de elétrons de baixa energia e de 1 segundo de duração. Aplicou-se uma voltagem medindo a corrente que flui através da amostra. A amostra tem 25μm de espessura, e repetiu-se a medida para várias tensões. O circuito

utilizado está mostrado dentro da figura 17. O alcançe dos elé - trons, devido sua baixa energia, é muito menor que a espessura da amostra. O campo devido ao execesso de cargas é considerado muito menor que o campo externo aplicado. Na figura 17 vê-se a variação de corrente no tempo devido a um pulso de elétrons para algumas tensões aplicadas. A corrente cresce durante o período de irradiação devido deslocamento dos buracos. Cessada a irradiação, a corrente cai rapidamente devido a recombinação na região irradiada diminuindo o número de portadores livres. Daí a corren-

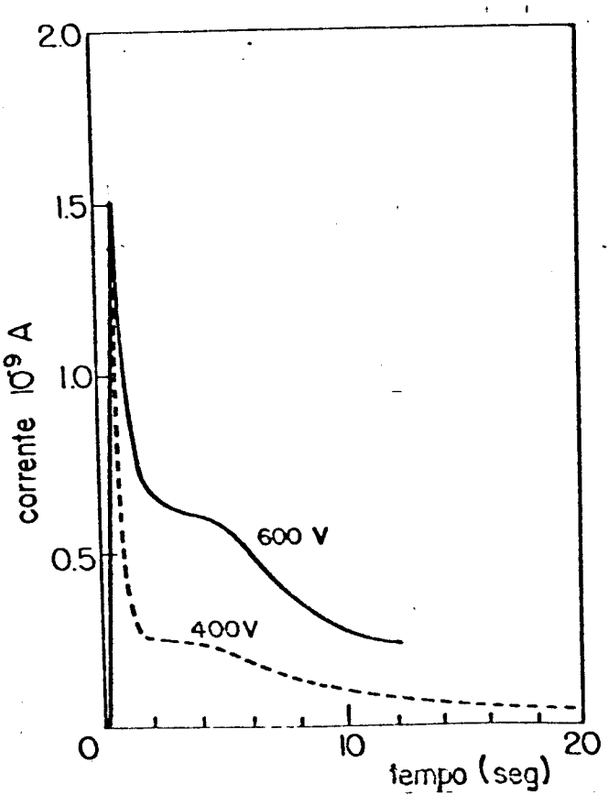


Figura 17

te tende a se estabilizar permanecendo quase constante por alguns segundos. Isto se deve ao arrastamento de um pacote de buracos , prevenientes da região irradiada, na região não irradiada. Esse pacote se mantém devido a falta de recombinação na região que não sofreu o efeito da radiação. Quando ela atinge o eletrodo traseiro a corrente cai. Esse tempo gasto para atravessar a amostra é denominado tempo de trânsito.

Utilizando a fórmula do tempo de trânsito, $\frac{\ell^2}{m\ V}$, onde ℓ é a espessura do material, V a voltagem aplicada, encontra-se um valor para a mobilidade, tirando os valores de V e t das curvas, igual a $2 \times 10^{-9} cm^2/v.seg.$ garante-se que nas medidas apresentadas, os tempos de trânsito são proporcionais a 1/V.

2.2.2. TÉCNICA CORONA

Um valor concordante com o encontrado acima foi obtido por nosso grupo utilizando-se da técnica de descarga corona sobre o teflon, e investigando a curva de potencial das amostras carregadas[28,29].

III. MEDIDAS DE RADIAÇÃO

Vamos discutir neste capítulo duas maneiras diferentes que utilizamos para medir o valor da taxa exposta da radiação. Uma utilizando uma câmara de ionização, e outra através da relação existente entre a energia radiante de um fluxo fotônico que atravessa uma substância e a intensidade de corrente criada por este fluxo. O aparato produtor de raios-X, uma unidade Muller MG 150 , produz fótons com energia entre 50 a 100 KeV e a intensidade é dada por uma corrente eletrônica que se choca com um anticatodo de molibdênio. Esta corrente varia entre 2,5 e 20 m A. Cuidados foram tomados para que o feixe de fótons fosse uniforme ao atingir a amostra.

3.1. CÂMARA DE IONIZAÇÃO

No capítulo I, mostramos a dependência da corrente de ionização, numa câmara de ionização de placas paralelas, com a taxa exposta. Foi mostrado que ela atinge um valor estacionário quando o equilíbrio entre o número de portadores criados pela radiação e o número que desaparece pela recombinação é alcançado.

Para encontrar o número total de portadores, fixa-se a intensidade de corrente na unidade de R-X e aumenta-se a tensão na câmara de ionização até que a corrente para de crescer. Nesta situação podemos afirmar que todos portadores criados estão colaborando para a corrente. A figura 18 mostra a corrente em função da tensão. Com auxílio da fórmula empírica dada abaixo (eq.III.1), po

demos calcular o valor da taxa exposta para qualquer intensidade de corrente aplicada na fonte de raios-X.

$$1 \frac{R}{seg} = 2.58 \times 10^{-4} \text{ A/Kg} \ldots\ldots\ldots \text{III.1}$$

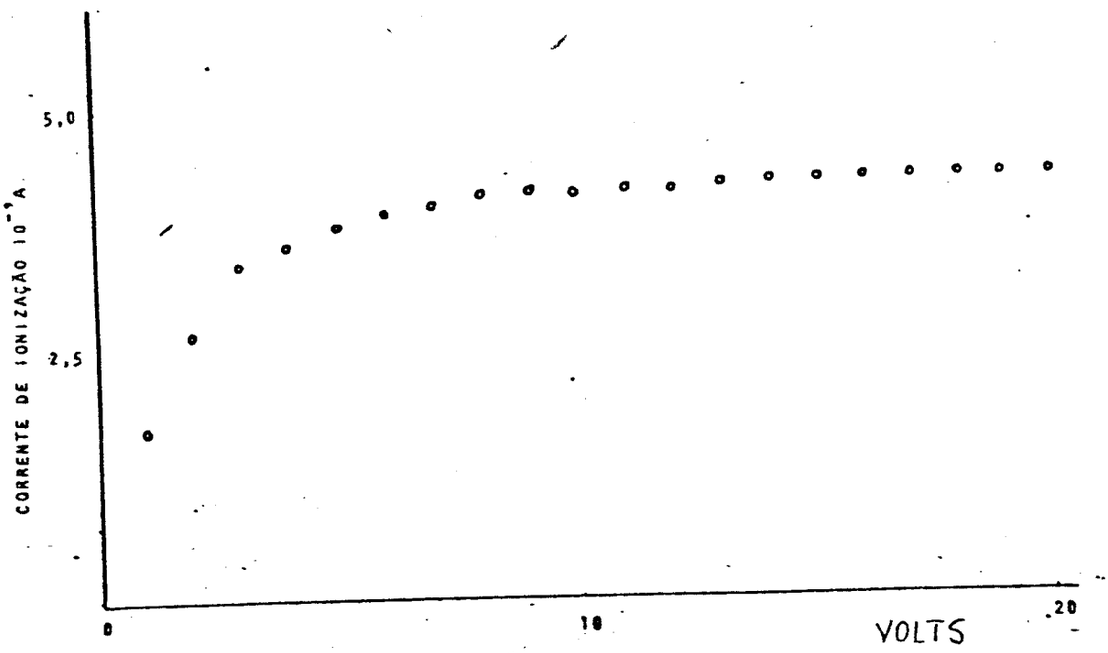


Figura 18

A exposição X, é o quociente dQ por dm onde dQ é o valor absoluto da carga total dos íons de um sinal, produzidos no ar quando todos os elétrons liberados pelos fótons num elemento de volume do ar tendo massa dm estão completamente parados. A taxa de exposição, $\dot{X}$, é o quociente de dX por dt onde dX é o incremento da exposição no intervalo de tempo dt[30].

Com o circuito da figura 19, e uma câmara de ionização de placas planas paralelas, onde a área dos eletrodos vale 12,5 cm^2 e a espessura de 1mm, registramos a corrente de saturação para várias taxas de exposição. Com o auxílio da fórmula III.1., e sabendo a massa de ar contida na câmara ($\delta \simeq 1.3 \times 10^{-6}$ Kg/cm^3), calculamos os valores de $\dot{X}$ para várias correntes aplicadas na unidade produtora de raios-X. O gráfico da figura 20 mostra que a dependência da taxa de radiação sobre a corrente aplicada na fonte é linear. E através deste gráfico saberemos sempre o valor da taxa exposta de radiação que estaremos aplicando na amostra.

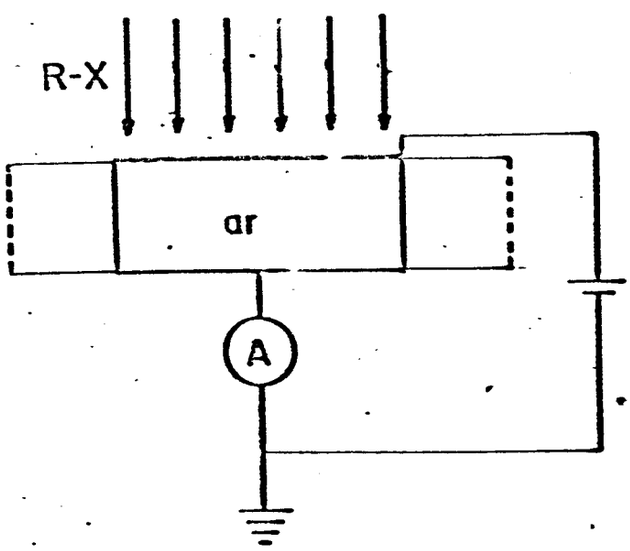


Figura 19

Circuito da câmara de ionização

3.2. CORRENTE FOTÔNICA

Já nos referimos ao aparecimento de uma corrente na direção de um feixe ionizante num sólido dielétrico. Em todas nossas medidas detetamos essa corrente, e passaremos a chamá-la de

corrente fotônica. Esta corrente é mais conhecida quando aparece sob o efeito da radiação γ sem tensão aplicada, e leva o nome de corrente Compton[15,31,32]. A energia dos fótons γ é da ordem de MeVs, energia adequada para o espalhamento Compton, daí o nome corrente Compton. Como as energias utilizadas por nós estão em torno de 50 KeV, a interação fóton-átomo é uma interação fotoelétrica.

A figura 20, nos mostra também uma curva entre a corrente fotônica e a intensidade de corrente aplicada na fonte. Este resultado experimental mostra que a curva foge um pouco da linearidade. E é de se esperar que ela seja linear porque acredita-se que o número de portadores criados no material deve ser diretamente proporcional ao número de fótons que o atravessam. Vamos apresentar um modelo teórico apresentado pelo professor B. Gross[31] que fenomenologicamente encontra uma relação linear entre a corrente produzida e a energia do feixe de fótons. Verificamos que a aplicação deste modelo em nossas medidas, mostra uma boa concordância entre os resultados experimental e teórico.

3.2.1. MODELO TEÓRICO PARA A FOTOCORRENTE

Em primeiro lugar segue algumas aproximações que se fazem necessárias para a simplificação dos cálculos.

a) O alcance dos elétrons secundários é muito pequeno comparado com o alcance do feixe primário, que é definido pelo recíproco do coeficiente de absorção. O alcance do elétron é suposto também ser pequeno comparado com a secção transversal do

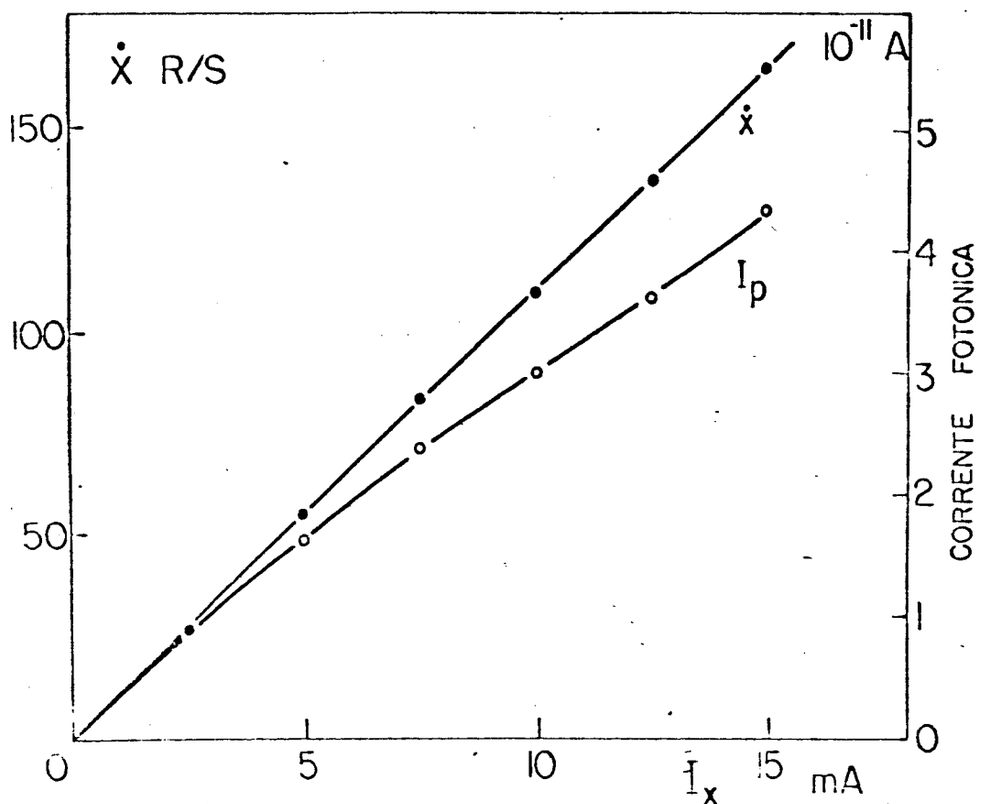


Figura 20

feixe de radiação.

b) É assumido uma relação linear entre o alcance dos elétrons e sua energia. Este efeito está calcado no "breakdown" em sólido dielétricos[33].

c) A emissão dos elétrons Compton é tratado como um problema unidimensional, facilitado pela geometria do aparato experimental. A divergência angular dos elétrons é considerada pela introdução de um coeficiente empírico de redução.

Vamos definir as grandezas que aparecem nestes cálculos:

x ..... espessura do absorvedor, (cm),

P(x)..... a energia do fluxo radiante $(\frac{erg}{seg})$,

$E(x)$..... a energia máxima dos elétrons produzidos na profundidade s, (erg),

$R(x)$..... o alcance máximo dos elétrons produzidos na profundidade x, (cm),

$i(x)$..... intensidade de corrente eletrônica. (A),

$n(x)$..... fluxo eletrônico, (seg^{-1}),

$f(x,\varepsilon)d\varepsilon$.... espectro diferencial de energia dos elétrons produzidos na profundidade x por unidade de comprimento de tempo, $(cm^{-1}seg^{-1})$,

$g(x,r)dr$.... espectro diferencial de alcance produzido na profundidade x por unidade de comprimento por unidade de tempo, $(cm^{-1}seg^{-1})$,

ν,σ,μ..... coeficiente total, de espalhamento e de absorção do feixe fotônico, (cm^{-1})

O fluxo de energia radiante de um feixe fotônico decresce com a profundidade, de tal forma que,

$$\frac{dP}{dx} = \frac{dP_1}{dx} + \frac{dP_2}{dx} \qquad \text{III.2}$$

onde $\frac{dP_1}{dx}$ é o decréscimo devido a absorção e dP_2/dx devido ao espalhamento. A absorção é a responsável pela criação dos elétrons Compton, ou em nosso caso, dos fotoelétrons. Portanto este termo deve ser igual a energia total dos elétrons.

$$\frac{dP_1}{dx} = -\int_0^E f(x,\varepsilon)d\varepsilon \qquad \text{III.3}$$

O fluxo dos elétrons através de uma secção transversal da amostra numa profundidade x é devido aos elétrons produzidos dentro de um alcance entre x e x - R. O número de elétrons produzidos por segundo na profundidade x - R. O número de elétrons produzidos por segundo na profundidade x - s num intervalo ds é dado por ds vezes a integral sobre g(x-s,r)dr, onde r vai de zero a R. Mas somente elétrons com alcance r > s atinge a profundidade de x. O fluxo total para x > R é a soma da contribuição de todos elementos ds e s variando de zero a R,

$$n(x) = \psi \int_0^R ds \int_0^R g(x-S,r)dr \qquad \text{III.4}$$

Introduziu-se na equação o fator de redução ψ, que é menor que um, como já foi considerado na suposição c.

Já que o alcance dos elétrons é muito pequeno comparado com o alcance dos fótons (em nosso experimento estes últimos são transpassantes), a taxa de produção de elétrons pode ser considerada constante ao longo do material, isto quer dizer que,

$$g(x-A,r) = g(x,r) \quad \text{para} \quad 0 < s < R \qquad \text{III.5}$$

Desprezando, também, a variação de R com x, o número de elétrons produzidos por segundo fica,

$$n(x) = \psi \int_0^R s\ g\ (x,s)ds \qquad \text{III.6}$$

A assunção b) diz respeito a linearidade na relação alcance-energia para os elétrons produzidos. Escrevemos então a relação,

$$s = a\varepsilon \qquad \text{III.7}$$

onde a é uma constante. Estabelece-se agora uma relação única entre o espectro diferencial de energia $f(x,\varepsilon)d\varepsilon$ e o espectro diferencial de alcance $g(x,s)ds$. O número de elétrons produzidos entre os alcances s e s+ds, é igual ao número produzido com energias entre ε e $\varepsilon+d\varepsilon$. Tem-se então,

$$g(x,s)ds = f(x,\varepsilon)d\varepsilon \qquad \text{III.8}$$

Com R = a E, a equação III.6 fica,

$$n(x) = a\,\psi \int_{o}^{E} \varepsilon\, f(x,\varepsilon)d\varepsilon \qquad \text{III.9}$$

A corrente Compton é dada pelo seguinte produto,

$$i(x) = n(x)e \qquad \text{III.10}$$

Substituindo III.3 e III.9 na equação acima temos,

$$i(x) = -a\psi e \frac{dP_1}{dx} \qquad \text{III.11}$$

Considerando que a absorção de um feixe de radiação mono

energético é exponencial,

$$P(x) = P_0 \, e^{-\nu x} \qquad \text{III.12}$$

e

$$\nu = \mu + \sigma \qquad \text{III.13}$$

resulta,

$$\frac{dP_1}{dx} = -\mu \, P(x) \qquad \text{III.14}$$

Com a devida substituição, obtém-se,

$$i(x) = \psi a \, e \, \mu \, P(x) \qquad \text{III.15}$$

Esta expressão dá a intensidade da corrente Compton em função da intensidade do feixe de fótons incidente no absorvedor. O coeficiente ψ tem de ser determinado das condições experimentais, e não foge muito da unidade.

3.2.2. CÁLCULO DA CORRENTE FOTÔNICA

Utilizando a equação III.15 e os valores de μ e P(x) extraídos de nossa experiência, podemos calcular quanto vale a corrente fotônica para uma dada taxa de radiação e confrontá-la com o valor registrado em nossas experiências.

A massa de nossa amostra é cerca de $6x10^{-2}g$, a taxa de radiação 110 R/S e como 1 R/S $\simeq$ 90 $\frac{erg}{g.seg}$, resulta $P(x) \simeq 600 \frac{erg}{s}$.

Como a radiação é praticamente totalmente transparente, a energia do fluxo radiante não depende de x.

Da figura 21, gráfico da variação da intensidade de corrente contra a espessura do material ($I = I_o e^{-\mu x}$), extraímos o valor de μ (coeficiente de absorção), que valeu 2 cm^{-1}.

O valor de a vale $1,65x10^{5} cm.erg^{-1}$.

Substituindo então estes valores na equação da corrente fotônica, encontramos que esta vale,

$$i \simeq \psi\ 3,2x10^{-11} A$$

Como $\psi \leq 1$, este valor setá em torno de $3,0x10^{-11}A$, concordando com o resultado experimental como podemos ver na figura 19.

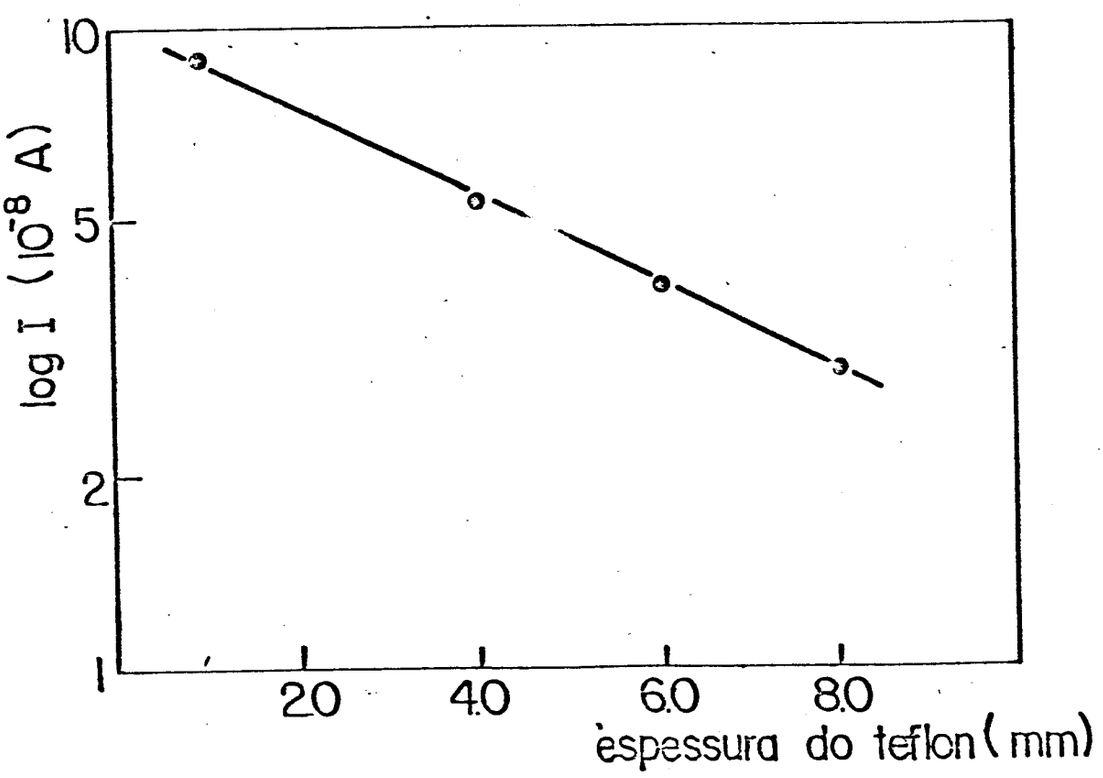
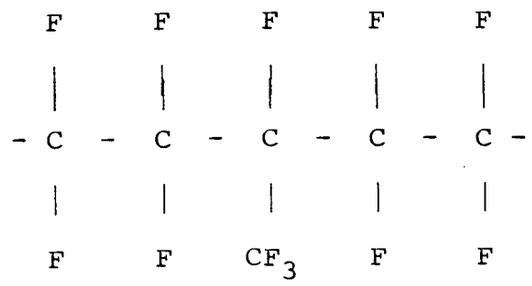


Figura 21

IV. AMOSTRAS E SISTEMAS DE MEDIDA

4.1. AMOSTRAS E CONTATOS

Como já foi citado, utilizamos amostras de Teflon FEP. Esta substância é um copolímero, cientificamente denominada tetra - fluoretileno - hexafluoropropileno, e sua fórmula estrutural é a seguinte,



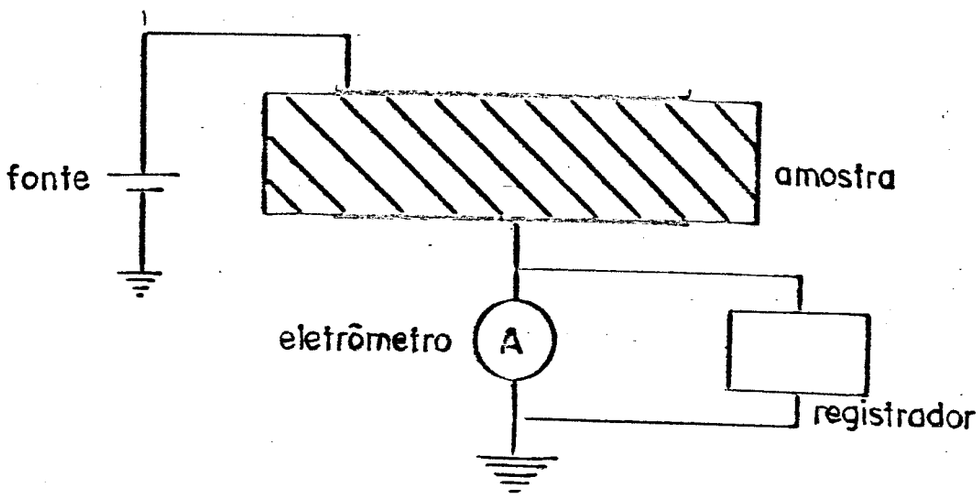
Copolímeros são compostos poliméricos contendo mais de uma unidade monomérica em sua cadeia. No caso, substitui-se alguns átomos de Fluor de Teflon PTFE (politetrafluoretileno) pelo composto CF_3[34].

Nossas amostras foram obtidas de filmes comerciais de 25μm de espessura. Tem a forma circular com diâmetro de 8 cm, e o contato elétrico, estabelecido em ambos os lados, tem também a forma circular, cobrindo a parte central de 4 cm de diâmetro.

Como contato elétrico usamos grafite suspenso em alcool isopropílico (Dag), e também contatos metálicos de alumínio e ouro evaporados. Como justificaremos mais adiante, abandonamos o trabalho que vinha sendo feito com os contatos de grafite, devido a

dificuldade de se conseguir uma boa aderência. As medidas com os contatos de alumínio e ouro foram bastante semelhantes, porém verificamos que o Al difundia dentro do Teflon sob irradiação prolongada e campo aplicado. Isto não interferiu em quase nada nas medidas, mas depositamos uma confiança maior nas medidas realizadas com as amostras evaporadas com Au.

Com o tubo de raios-X operando com 10 mA e 75 KV encontramos que o coeficiente de absorção do Teflon vale 1 cm^2/g. A figura 21 mostra o gráfico monolog. de I_i contra x (espessura da amostra), de onde extraímos o coeficiente angular μ, que é o próprio coeficiente de absorção. Consideramos aqui, válida a equação $I = I_o e^{-\mu x}$, onde I é a corrente induzida já no estado estacionário.



Circuito modo de corrente

Figura 22

4.2. SISTEMA DE MEDIDAS

O circuito da figura 22 foi o usualmente utilizado por nós. É denominado circuito fechado, ou modo de corrente, devido ao fato que dele registramos a corrente que passa através da amostra, enquanto que a ddp entre os polos da amostra permanece constante. A fonte de tensão foi construída com várias baterias em série e fornecia os seguintes valores de tensão: 18 V, 36 V, 54 V, 72 V e 90 V. Tinha também uma chave que invertia o sentido de polarização da tensão. Operamos as medidas com um eletrômetro 610 C Keithley. As resistências do eletrômetro utilizadas variaram entre, 10^7 a $10^{10}\Omega$.

Procuramos entretanto trabalhar com a menor resistência possível, já que a capacitância das amostras giravam em torno de 10^3pF (calculada e medida). A maioria das medidas foram feitas utilizando-se $10^8\Omega$, o que permitia um tempo de relaxação de 10^{-1} seg. para as correntes capacitivas cada vez que se aplicava ou variava bruscamente a tensão aplicada.

Para se evitar esta interferência, cada vez que se ia aplicar uma tensão sobre a amostra, mantínhamos o eletrômetro em curto por 30 segundos aproximadamente. Assim evitávamos também qualquer danificação no medidor. O registrador que usamos foi um modelo de fabricação nacional.

A figura 23 mostra em detalhe o aparato que construímos para podermos medir durante a irradiação. Não foi necessário o vácuo, e por este motivo a amostra era prensada entre duas placas de Teflon de 0,2 cm de espessura, que evitavam o efeito de

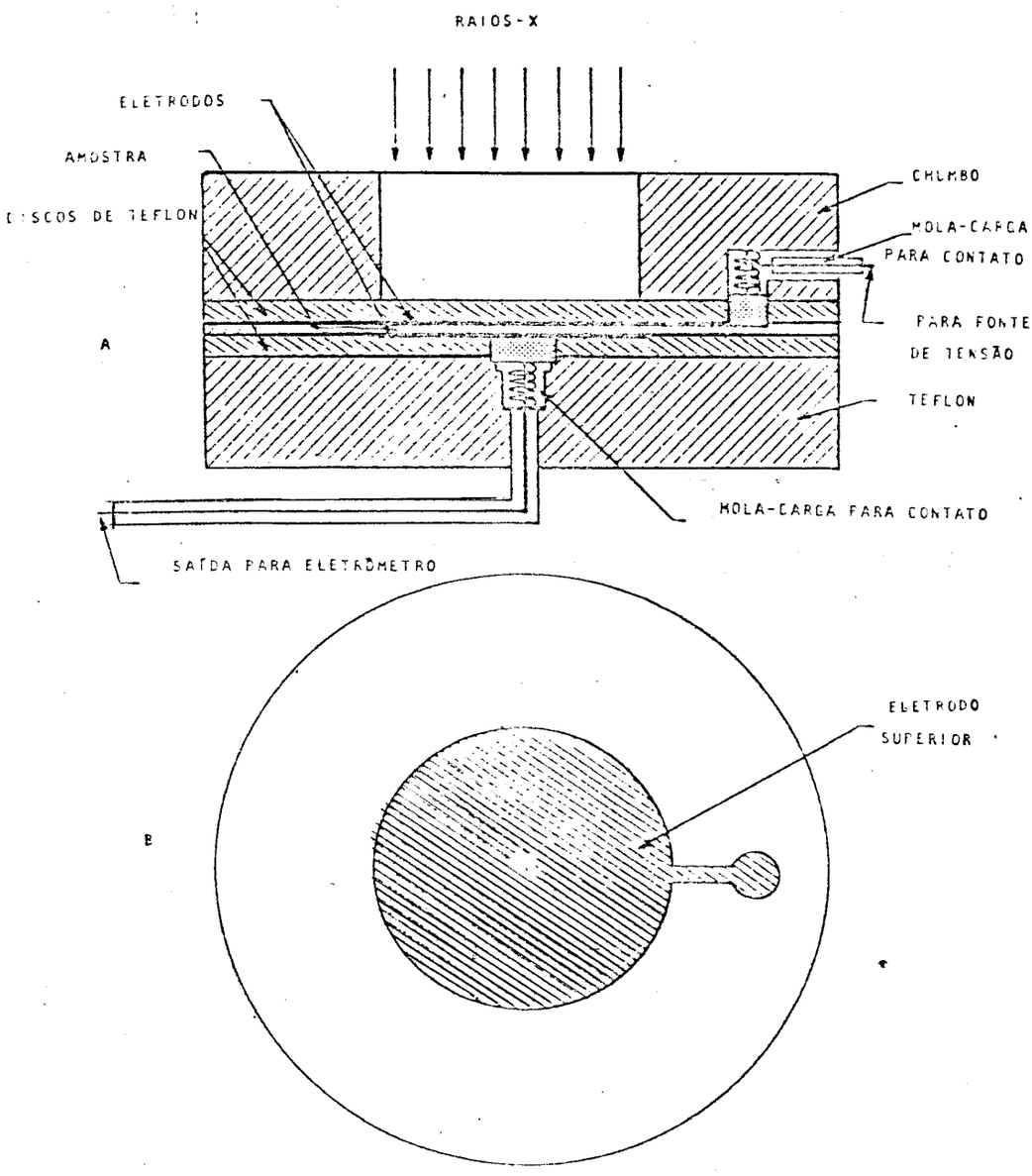


Figura 23 - Esquema do sistema de medidas. a) vista de corte; b) vista de topo da amostra de teflon.

correntes superficiais e permitiam uma uniformidade na irradia - ção sobre a amostra.

Os fios de ligação foram devidamente protegidos da ra- diação para evitar possíveis ruídos e fugas, e também foi coloca da uma mascara de chumbo acima da amostra, que agindo como um diafragma fazia com que a única região da amostra que recebia ra diação era a parte que possuía eletrodos.

Nenhuma corrente foi observada quando uma medida era realizada com amostra sem eletrodos. E também, ao se inverter a tensão, a corrente imediatamente se invertia. Tudo isto mostra que a corrente induzida registrada obedecia a tensão aplicada so bre a amostra, afastando a possibilidade de fuga através do ar.

V. RESULTADOS EXPERIMENTAIS

Nossas amostras nada mais são que capacitores tendo como recheio dielétrico o Teflon FEP.

À parte os fenômenos de absorção dielétrica, o que se deveria observar ao se aplicar uma tensão entre seus eletrodos, era a superposição entre uma corrente capacitiva com uma constante de tempo RIC e uma corrente V/Ri, onde Ri é a resistência interna do dielétrico.

Adicionando o termo devido a absorção dielétrica, podemos escrever a forma completa da corrente elétrica que se observa neste tipo de medida,

$$I = C\frac{dV}{dt} + \frac{V}{R} + \int_0^t \frac{dV}{d\tau}\,\phi(t-\tau)\,d\tau \qquad V.1$$

onde $\phi(\tau)$ é a função de absorção definida de maneira que $Ca = \int_0^\infty \phi(\tau)\,d\tau$ representa a carga reversível (por unidade de tensão) que se armazena no capacitor após uma carga de duração infinita.

Praticamente o que fazemos, em nosso caso específico, é aplicar uma função degrau $V(t) = V_o S(t)$ que substituída em V.1., resulta

$$I(t) = \left[C\delta(t) + \frac{1}{R} + \phi(t)\right] V_o S(t) \qquad V.2$$

A componente capacitiva da corrente não nos interessará, e nem mesmo iremos registrá-la. Iremos extrair alguns dados da com

ponente devido a absorção dielétrica, porém, o mais importante em nosso trabalho é estudar a variação de R com a radiação. Como o termo capacitivo se dissipa rapidamente, e o termo de absorção é cerca de duas ordens de grandezas menor que o induzido, não encontramos dificuldades na obtenção de uma boa medida.

5.1. ABSORÇÃO DIELÉTRICA

Na figura 24 aparece uma curva de corrente contra o tempo devido a carga e a descarga sobre uma amostra, e realizada no sistema mostrado na figura 25. Este sistema é análogo ao mostrado na figura 23, com a diferença de que não permite medidas durante a irradiação, mas é bastante conveniente na realização de medidas com variação de temperatura. Neste caso a área de contato na amostra foi de 3 cm^2 e a tensão aplicada de 30V.

Esta absorção dielétrica é devida a interação do campo com as cargas livres e ligadas do dielétrico causando seus movimentos. Estes movimentos têm como efeito o aparecimento de uma corrente elétrica no circuito. Este efeito é conhecido a mais de um século e muitas explicações têm aparecido para diferentes materiais dielétricos.

Em campos baixos, em geral, podemos citar alguns processos conhecidos[35]:

a) polarizações de espécies rápidas, isto é, devido a ressonâncias e alguns tipos de orientações dipolares;

b) tipos lentos de polarização de relaxação dipolar;

c) fluxo de corrente de condução causada pelo movimento

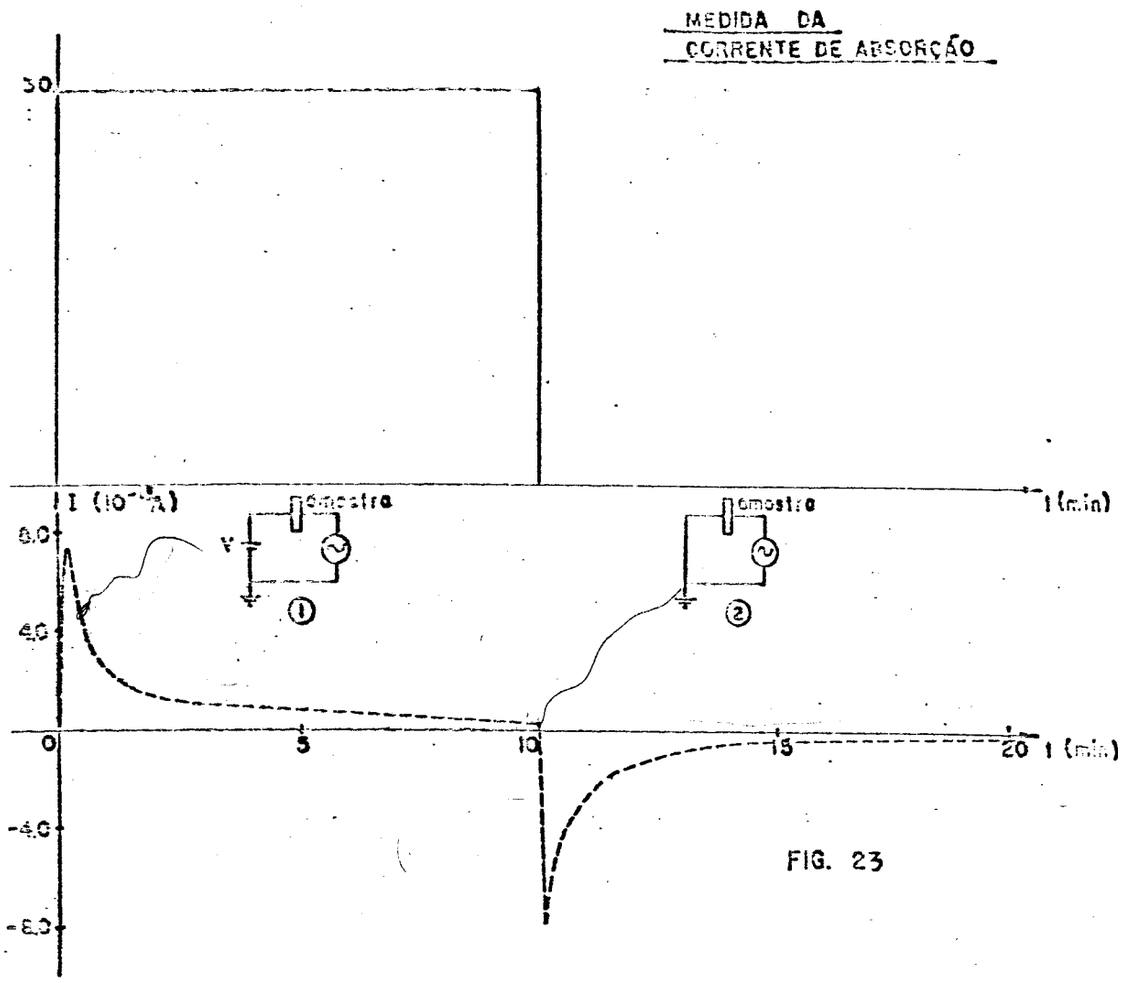


FIG. 23

Figura 24

- Corrente de absorção dielétrica, polaraização e despolarização.

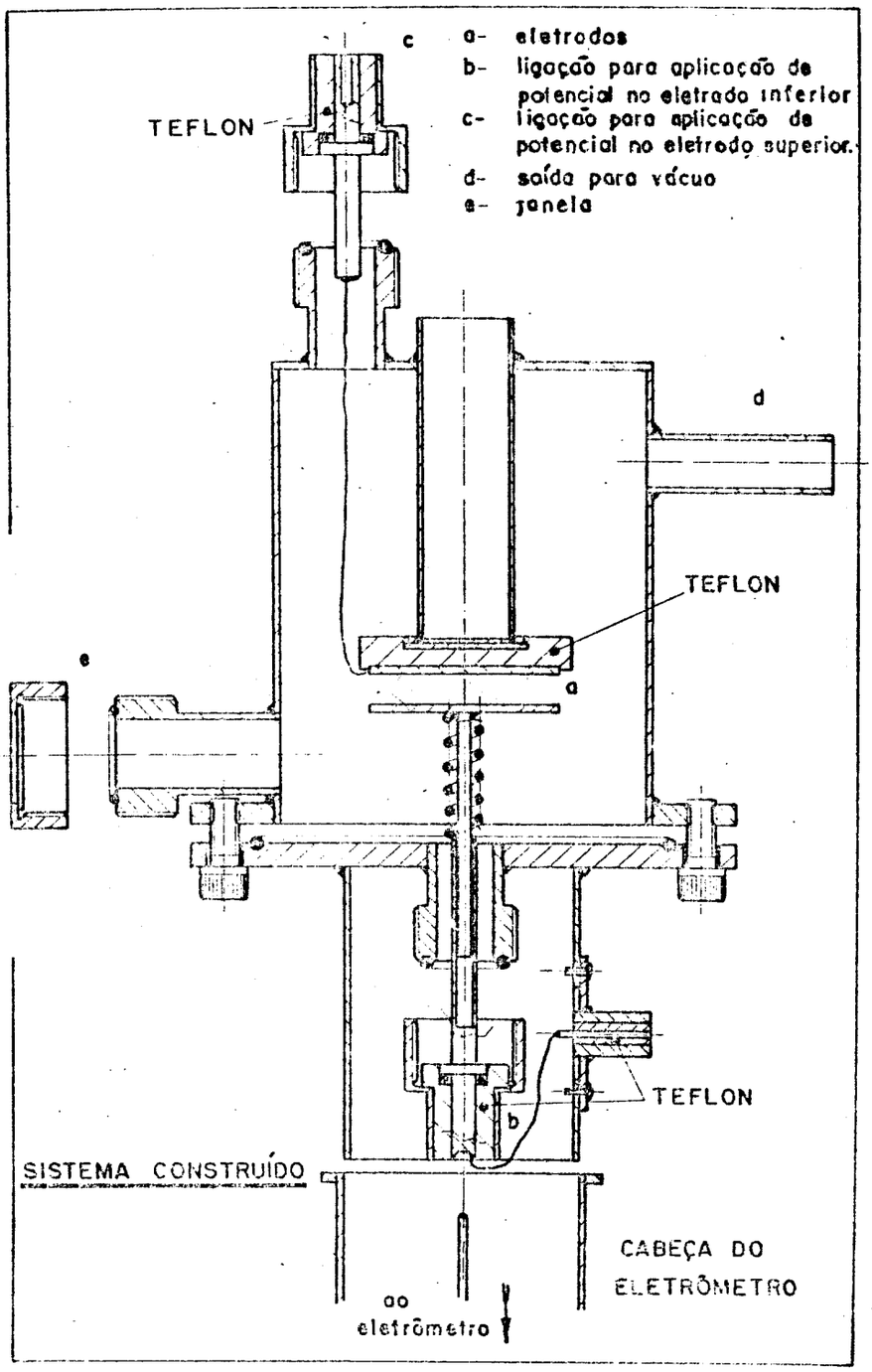

a- eletrodos
b- ligação para aplicação de potencial no eletrodo inferior
c- ligação para aplicação de potencial no eletrodo superior.
d- saída para vácuo
e- janela
c
TEFLON
d
TEFLON
e
a
TEFLON
b
SISTEMA CONSTRUÍDO
CABEÇA DO ELETRÔMETRO
ao eletrômetro

Figura 25

de cargas injetadas dos eltrodos ou gerada por ionização térmica de impurezas ou do próprio dielétrico;

d) polarização de relaxação do tipo Maxwell-Wagner causada por micro ou macro-heterogeneidades de natureza contínua ou discreta;

e) polarização nos eletrodos devido à eletrodos bloqueantes;

f) portadores em armadilhas no volume do dielétrico.

A corrente devido a absorção dielétrica demora muito a desaparecer. Seu decaimento comumente se expressa segundo a lei $I = I_0 t^{-n}$, onde n é um número próximo de um.

A figura 26 mostra o efeito da temperatura sobre uma curva de corrente da absorção dielétrica. Aquecemos lentamente a amostra e observamos que a corrente aumenta com o aumento da temperatura. Depois de esperar muito tempo, cerca de 150 horas, a corrente é muito baixa, da ordem de 10^{-14}A, e é possível então observar variações na corrente devido a pequenas variações da temperatura ambiente. Por exemplo, durante o dia a temperatura permaneceu em torno de 25°C e durante a noite em torno de 23°C.

As ondulações na curva Ixt que é mostrada na figura 27 é causada por estas variações de temperatura. A seguir traçamos um gráfico log-log(Ixt), mostrado na figura 28, onde verificamos que o coeficiente angular para temperaturas diferentes não se altera, isto mostra que n,independe da temperatura.Este é um resultado interessante e pretendemos estudá-lo mais minuciosamente no futuro, porém no capítulo 7 faremos algumas especulações prévias sobre este fenômeno.

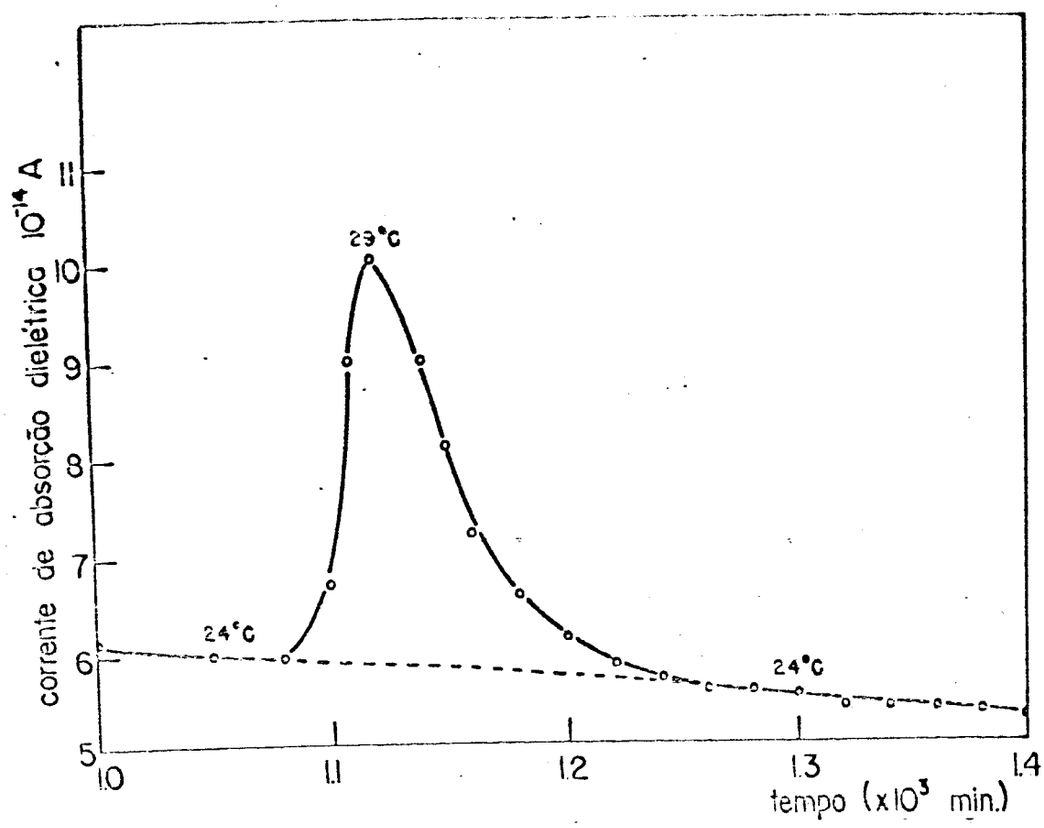


Figura 26

5.2. MEDIDAS DA RIC PARA DIFERENTES CONTATOS

Já adiantamos que medidas feitas com contatos de alumí - nio e ouro não apresentaram diferenças. Porém as medidas com contato de grafite coloidal foram totalmente diferentes e de pouca reprodutibilidade.

Ao medirmos a capacidade das amostras com uma ponte de capacitância, encontramos que os valores das que possuiam contatos metálicos eram de aproximadamente 1000pF, concordando com o valor calculado. Mas os valores das amostras com contato de gra-

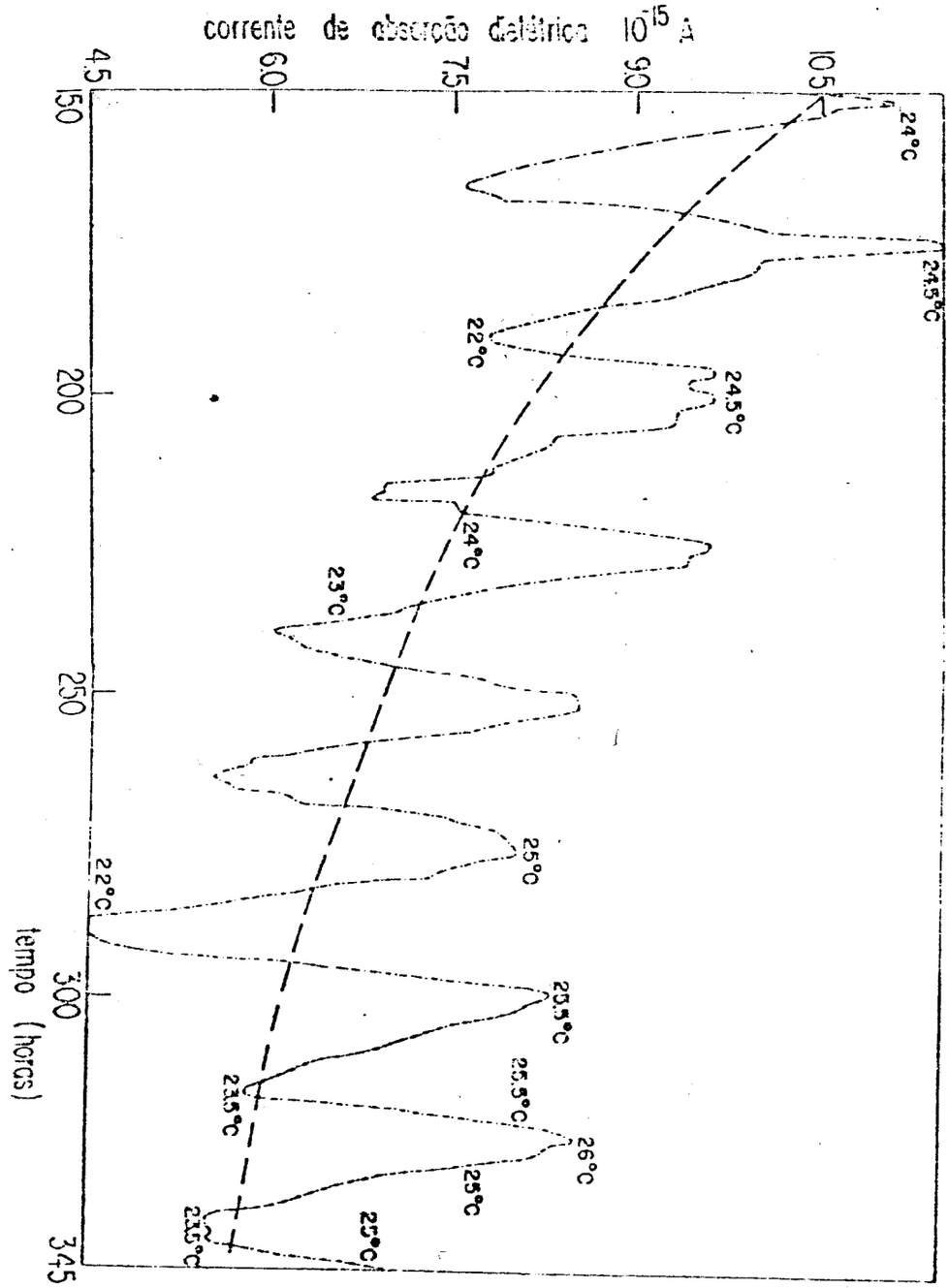
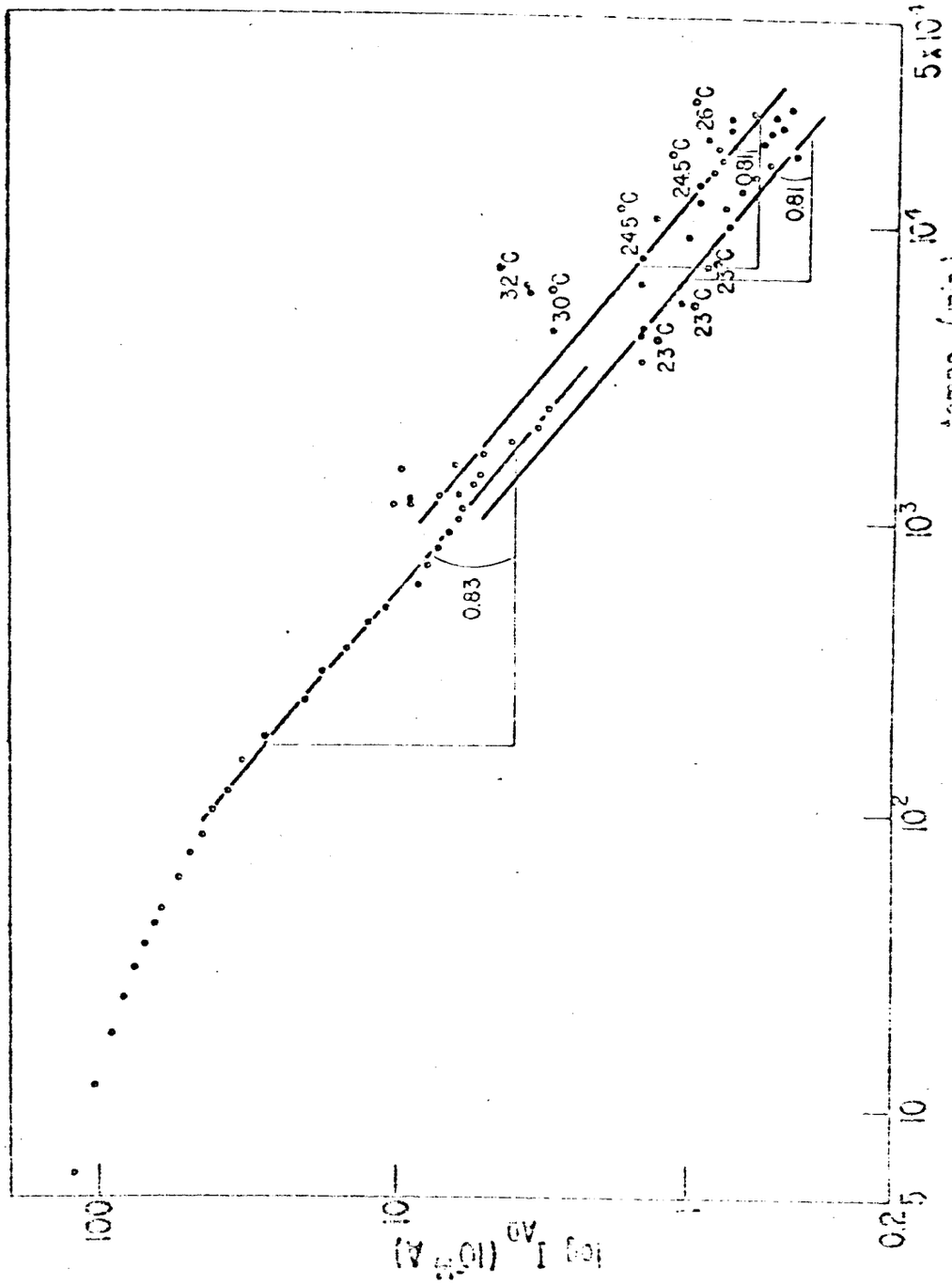

corrente de absorção dielétrica 10^{-15} A
4.5
6.0
7.5
9.0
10.5
150
200
250
300
345
tempo (horas)
24°C
24.5°C
22°C
24.5°C
24°C
23°C
25°C
22°C
25.5°C
23.5°C
25.5°C
26°C
25°C
23.5°C
25°C

Figura 27



- Gráfico log-log da curva anterior. Supondo $I_{AD} = I_o t^{-n}$, encontra-se que n independe da temperatura e vale aproximadamente 0.81.

Figura 28

fite apresentaram valores inferiores, da ordem de 700pF. Isto deu indício de que o grafite não fazia um bom contato, o que foi comprovado mais tarde quando verificamos que entre a amostra e o contato existiam pequenas bolhas de ar que ficavam retidas no processo.

Para esta comprovação fizemos uma medida usando como contato elétrico uma fina folha de alumínio que permitia uma certa quantidade de ar entre o filme e o contato. O resultado foi análogo aos encontrados com aqueles cujo contato eram de grafite. Daí por diante abandonamos definitivamente o uso do grafite.

5.3. CORRENTE INDUZIDA COMO FUNÇÃO DO TEMPO

A figura 29 mostra a corrente induzida, e o correspondente valor da condutividade induzida em função do tempo. As taxas de exposição da radiação variaram de 55 R/seg.(curva I) até 220 R/s (curva V). A polaridade na amostra foi aplicada de tal forma que

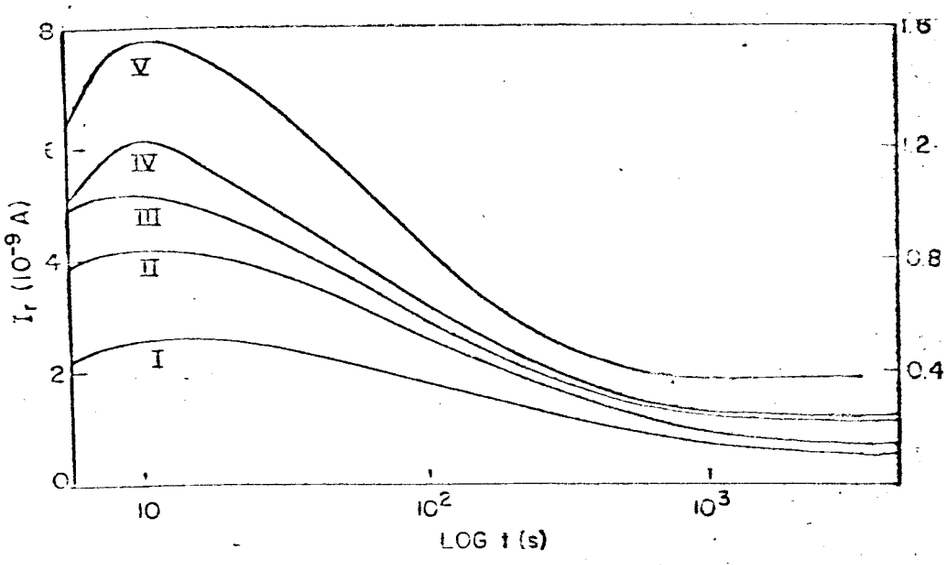


Figura 29

a corrente fotônica está em sentido oposto. E as medidas apresentadas já contêm a devida correção.

Com a tensão já aplicada na amostra, ao se aplicar a radiação a corrente induzida cresce, alcança um máximo, decresce durante um período de meia-hora aproximadamente e finalmente atinge um valor estacionário. O valor máximo da corrente é alcançado em torno do décimo-segundo segundo. Este tempo é ligeiramente menor para as curvas com taxas de exposição maiores.

Este decréscimo na RIC já foi observado anteriormente[8,18] e apareceu em todas medidas que fizemos. Foi observado também que a condutividade induzida de uma variedade de dielétricos decrescem durante a irradiação com elétrons energéticos[13]. No caso particular do teflon foi observado um endurecimento em sua resistividade devido a irradiação prolongada com elétrons[17]. Acreditamos que todos estes resultados tratam do mesmo efeito.

Outro ponto importante a destacar é que medidas realizadas em condições iguais as nossas, diferindo apenas na intensidade da radiação, que são bastante inferiores, não mostram o período transiente da RIC, senão que alcançam rapidamente o estado estacionário[12,14,15].

Batizamos aqui a variação na RIC durante a irradiação de transiente da curva, o qual é o estudo fundamental desta tese. Comparando nosso resultado (feito com taxas elevadas) e os citados logo acima (feitas com taxas bem inferiores as nossas), concluímos que este transiente parece diminuir até desaparecer à medida que a taxa de radiação utilizada vai baixando. Observando a figura 29 vemos que esta idéia tem sentido, e assim podemos dizer que as

medidas feitas por Fowler são um caso de limite inferior e que seu modelo se aplica às nossas curvas subtraindo-se o transiente.

5.4. RECUPERAÇÃO

Se logo após o término de uma primeira medida completa da corrente induzida realizarmos uma segunda, o transiente não aparecerá. A corrente irá imediatamente para o valor estacionário, isto é, registrará o último valor de corrente da primeira medida. Na verdade não é necessário que a primeira medida alcance o estado estacionário para verificar que a medida seguinte é uma continuação perfeita da anterior. Interessante notar aqui, que se irradiarmos a amostra durante uma hora sem campo aplicado, o efeito de transiente desaparece ao se aplicar a tensão.

CONCLUSÃO: O efeito de subida e descida da condutividade induzida é devido única e exclusivamente à interação da radiação com o material.

Mas se mantivermos a amostra sem sofrer irradiação por períodos relativamente longos, ela vai recuperando seu estado inicial. A figura 30 mostra o comportamento da corrente induzida quando a amostra é reirradiada depois de ter permanecido períodos crescentes sem sofre irradiação. A recuperação é lenta e só é total depois de algumas semanas. O espaço de tempo sem irradiação entre as curvas I e II é de três horas; entre as curvas II e III, um dia; entre as curvas III e IV, três dias; entre as curvas IV e V, oito dias; e entre as V e VI, 15 dias.

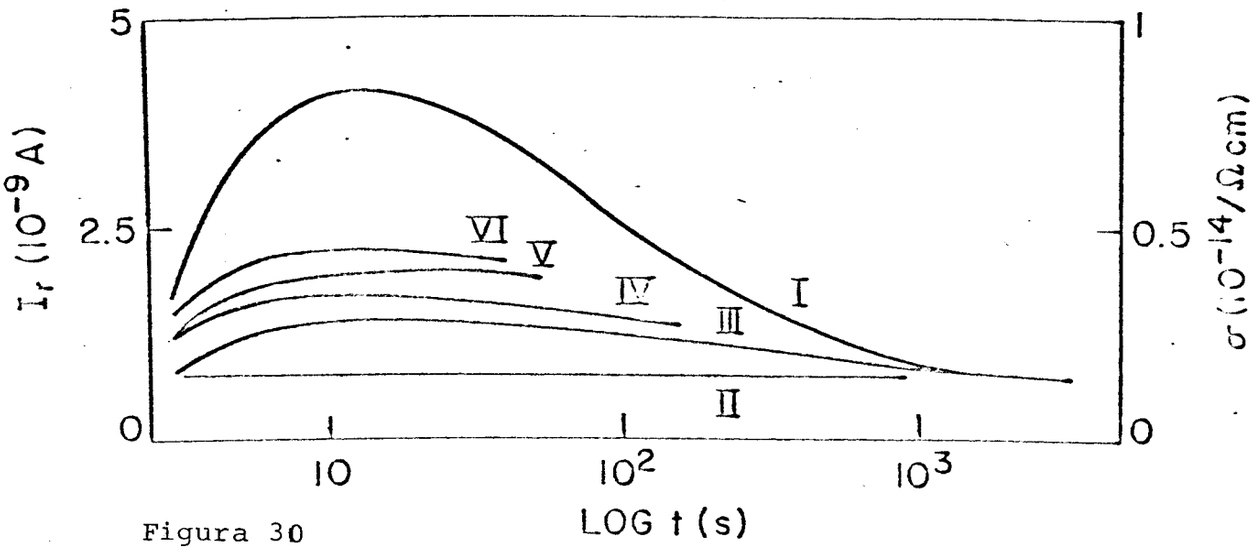


Figura 30

. - Recuperação da condutividade induzida. I - corrente induzida durante a primeira irradiação. II - durante uma reirradiação depois de 3 horas no escuro. III depois de 1 dia. IV - depois de 3 dias. V - depois de 7 dias. VI - depois de 15 dias. Tempo contado depois da primeira irradiação.

5.5. AUSÊNCIA DE POLARIZAÇÃO

É comum atribuir a queda de corrente com campo aplicado a um efeito de polarização causado por eletrodos bloqueantes, especialmente devido a formação de uma barreira de Schottky. E era este o argumento, a princípio, que achávamos mais provável para a explicação do fenômeno com o qual estávamos nos defrontando. Porém esta interpretação foi derrubada pelas experiências que engenhamos no intuito de confirmar nossas expectativas.

Na figura 31 apresentamos o resultado de um experimento que seguiu os seguintes passos, a) sem aplicação de radiação medimos a polarização e despolarização da absorção dielétrica, b) irradiamos a amostra com $1,1x10^{2}$ R/s durante 3 horas sem campo aplicado, c) aplicamos a voltagem mantendo a radiação e d) curto-circuitamos a amostra. Olhando para a curva vê-se que ao aplicarmos a tensão (passagem do ítem b para o c), a corrente acusa o seu valor estacionário, somando-se evidentemente com a corrente da absorção dielétrica. Não apareceu o transiente, e isto indica que o campo elétrico não é o causador do acréscimo e do decréscimo da corrente. Ao que parece o causador de tal fenômeno é a própria interação entre a radiação e a matéria. Conclue-se então que a corrente depende somente da exposição e da taxa de exposição; ela não é influenciada pela aplicação ou não da voltagem durante o período de irradiação precedente à medida.

Corroborando esta conclusão a figura 32 mostra o resultado de uma medida feita com aplicação intermitente da voltagem sob irradiação contínua. Entre os intervalos de aplicação da ten

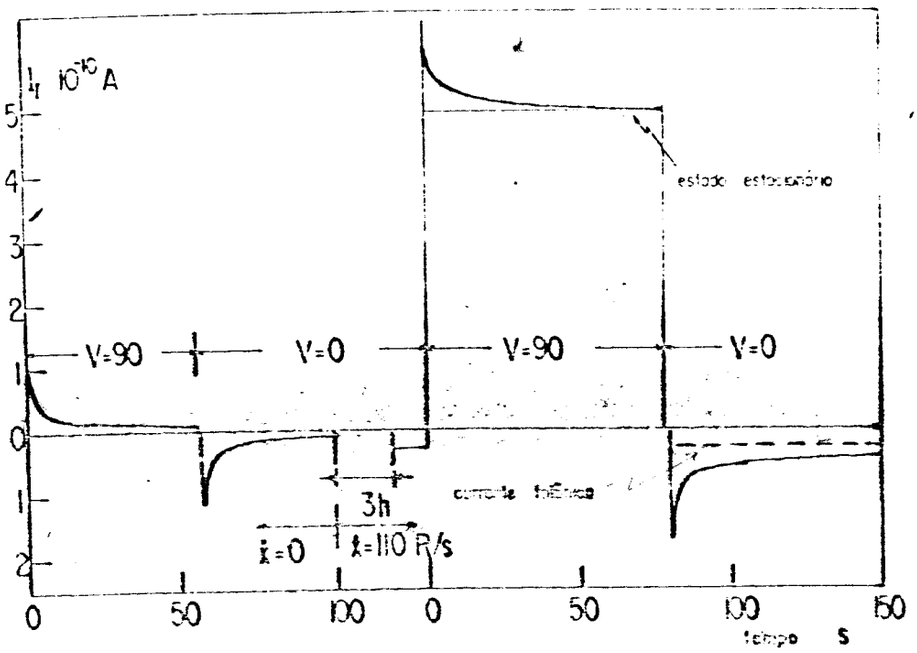


Figura 31

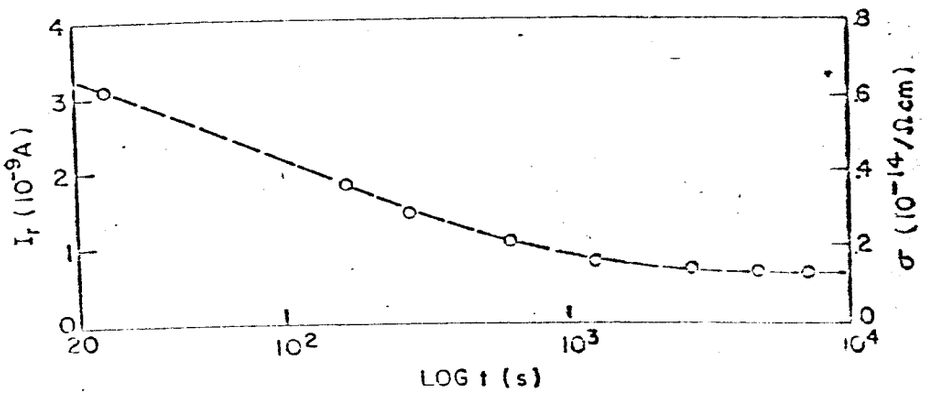


Figura 3.2

são, a amostra era mantida em curto-circuito. Tomamos o cuidado para que o tempo em que a tensão se mantinha aplicada fosse suficiente para minimizar o efeito da absorção dielétrica. O resultado desta medida mostrou que a curva obtida é análoga a qualquer outra em que se manteve o campo aplicado durante todo tempo.

Pode-se notar que a curva da figura 32 permaneceu ligeiramente abaixo da sua correspondente na figura 29. Esta pequena diferença entre as duas curvas está perfeitamente dentro das variações encontradas nas medidas.

Fica portanto, depois destes experimentos, definitivamente afastada a possibilidade de efeito de campo como causa do acréscimo e do decréscimo da corrente induzida.

5.6. VARIAÇÃO DA RIC CONTRA $\dot{X}$

A dependência da corrente induzida pela radiação Ir sobre a taxa de exposição $\dot{X}$ é mostrada na figura 33 numa escala dupla-logarítmica. A curva B dá o comportamento da corrente no estado estacionário. Uma maneira de fazer esta medida é usando uma única amostra, e irradiando-a com uma taxa constante até que o estado estacionário seja alcançado. Daí então, varia-se a taxa de exposição e anota-se os valores de corrente para cada taxa aplicada. Uma forma alternativa, e que dá o mesmo resultado, é realizando as medidas com amostras diferentes sob diferentes taxas de radiação. A curva B dá o valor médio das medidas realizadas por ambos os métodos.

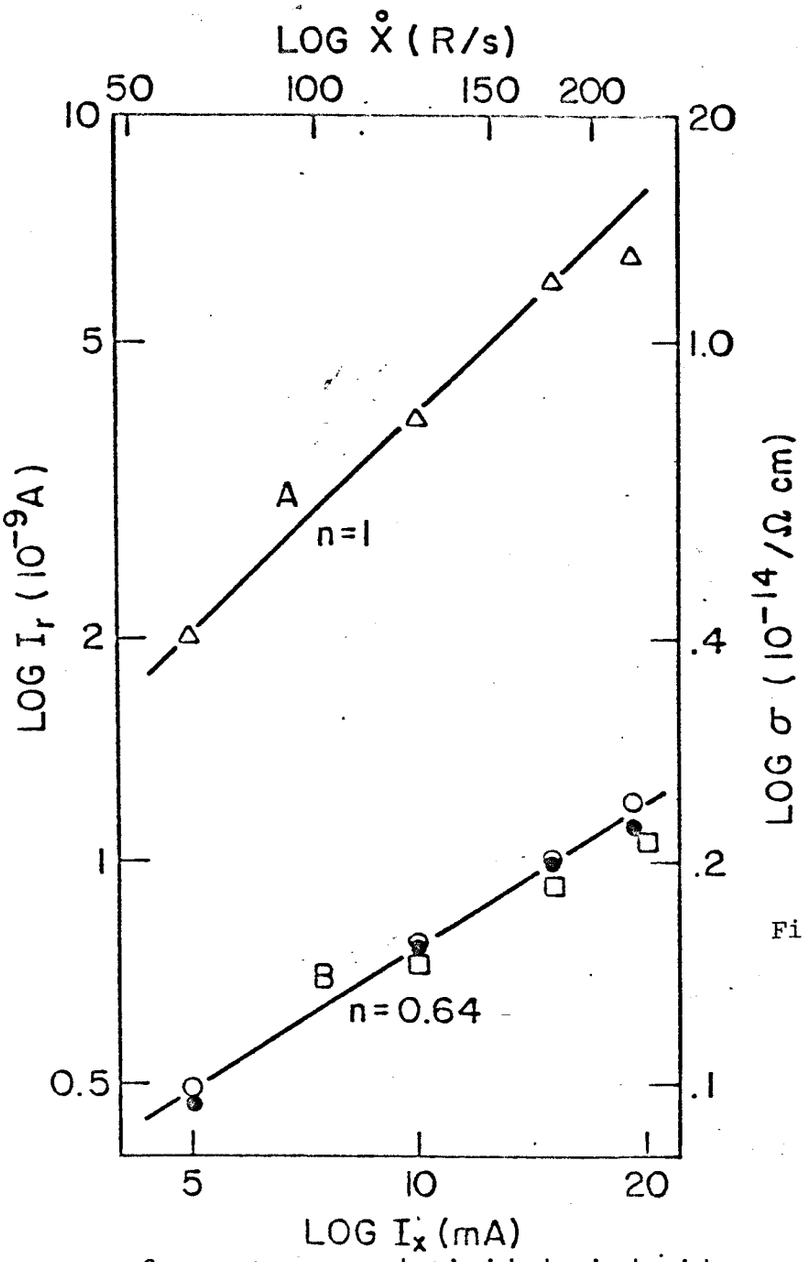


Figura 33

. - Corrente e condutividade induzidas como função da taxa de exposição e da corrente do tubo de raios-X. A- Valores da corrente inicial obtidas por extrapolação do tempo zero. B - Corrente no estado estacionário.

A curva A mostra o resultado do mesmo experimento só que para os valores de corrente extrapolados para o tempo zero.

Como ambas as curvas são lineares no gráfico log-log , conclue-se que a corrente induzida varia com a taxa de exposição de acordo com a lei de potência, isto é, $Ir \sim \dot{X}^n$, mas n difere para os dois casos. O valor inicial da corrente varia linearmente com $\dot{X}$, enquanto que para o estado estacionário n = 0.64.

Podemos escrever que a condutividade induzida varia da seguinte forma com $\dot{X}$,

$$\sigma = \sigma_o \left(\frac{\dot{X}}{\dot{X}_o}\right)^n \qquad \text{V.3.}$$

$\dot{X}_o$ é normalizado para 1 R/s.

Realizando os cálculos encontramos que σ_o para a corrente no tempo zero vale $7{,}3\times10^{-17}\Omega^{-1}cm^{-1}$, e para a corrente estacionária $7{,}5\times10^{-16}\Omega^{-1}cm^{-1}$. Portanto a equação V.3. em cada caso fica,

valor inicial $\sigma = 7{,}3\times10^{-17}\dot{X}$

valor estacionário $\sigma = 7{,}5\times10^{-16}\dot{X}^{0,64}$

Concluímos então que na ausência de irradiação as armadilhas existentes no material são neutras, isto é estão desocupadas. Portanto no ínicio a corrente é limitada pela queda de portadores nas armadilhas o que dá uma relação linear entre a condutividade induzida e a taxa de exposição. Depois de algum tempo as armadilhas são preenchidas, e no estado estacionário elas estão praticamente cheias agindo como centros de recombinação. A corrente é então limitada pela recombinação e cresce com a exposição num

expoente menor que a unidade.

A relação $\sigma \sim \dot{X}^n$ com $n < 1$ e a transição do preenchimento das armadilhas para a recombinação é compatível com a teoria de Rose-Fowler, e mais ainda, o índice de n encontrado por Fowler para o teflon PTFE é igual ao que encontramos para o FEP. As estruturas destes dois materiais são muito parecidas como já foi mencionado no ínicio do capítulo anterior.

5.7. VARIAÇÃO DA RIC CONTRA O CAMPO

Na figura 34 é mostrada, numa escala dupla logarítmica, a variação da intensidade de corrente induzida devido ao campo aplicado na amostra. Com a aplicação de duas taxas de radiação diferentes (110 e 200 R/s), chegamos ao mesmo resultado. A curva mostra uma lei exponencial entre Ir e o campo elétrico da forma $Ir \sim E^{1,35}$. Como Ir depende linearmente de σr e este linearmente com o campo, podemos construir uma lei de dependência entre σr e o campo, $\sigma r = \sigma_o \left(\frac{E}{E_o}\right)^{0,35}$, onde $E_o = 1$ V/cm, e σ_o a condutividade com o campo E_o. Uma das explicações possíveis para este resultado é a dependência da mobilidade dos portadores com o campo. Esta dependência já foi encontrada em muitos sólidos orgânicos[36]. Em muitos materiais a mobilidade dos portadores diferem muito. Para o teflon tem sido mostrado que a mobilidade dos buracos é muito maior que a dos elétrons. À temperatura ambiente os elétrons são praticamente imóveis. Portanto a transferência de carga é devido exclusivamente ao movimento dos buracos e a dependência da mobilidade com o campo deve aplicar-se à eles.

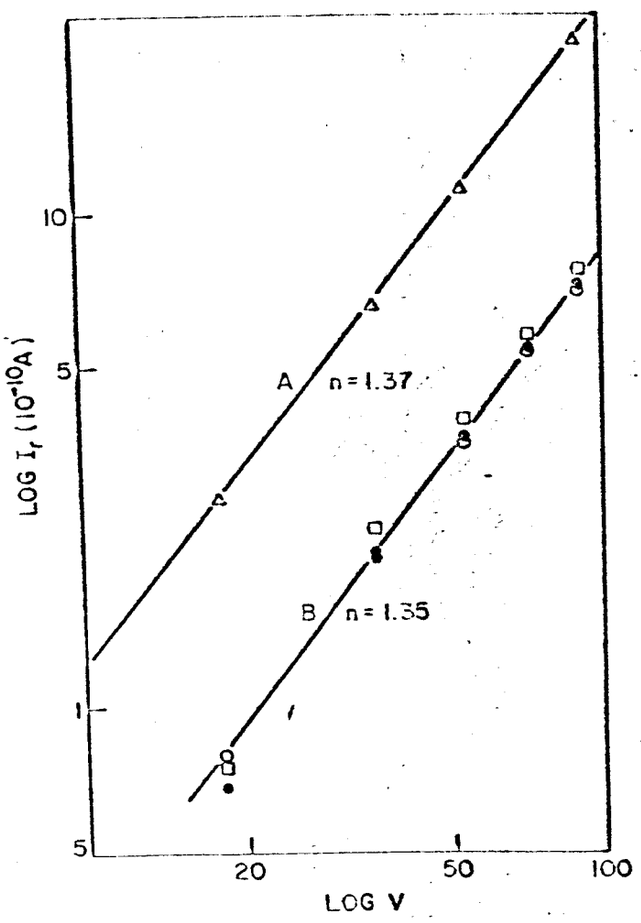


Figura 34

O crescimento de σ com E pode também ser explicado em termos da teoria de Onsager da recombinação germinativa[37]. Esta teoria diz que após a sua criação devido a radiação, o par de portadores elétron-ion se recombinam voltando a constituir o mesmo átomo neutro de antes. A medida que o campo aumenta, a taxa desta recombinação diminui, aumentando portanto o número de portadores livres.

O efeito Poole-Frenkel também mostra uma dependência da condutividade com o campo elétrico. E este efeito tem se mostra-

do presente em campos da ordem de 10^4 V/cm, concordante com o por nós utilizado.

Tentamos verificar se os nossos resultados experimentais podiam ser interpretados sob a luz destes dois efeitos: O de Onsager e o de Poole-Frenkel. Porém não coletamos dados experimentais suficientes para tal. O que conseguimos perceber é que o efeito por nós observado é mais fraco que o previsto pelos efeitos acima citados.

5.8. COMPONENTE ATRASADA DA CONDUTIVIDADE INDUZIDA (DRIC)

Assim que retiramos a radiação sobre a amostra, sua condutividade induzida não desaparece instantâneamente, mas leva cerca de 3 a 4 dias para desaparecer. Na figura 35 podemos verificar que a componente atrasada pode ser dividida em duas partes, inicialmente uma queda curta e bastante rápida, seguida de um lento e duradouro decaimento.

Dividamos o estudo da componente atrasada começando pela parte mais lenta.

Como consequência do decaimento da condutividade induzida sob irradiação, é esperado que o comportamento da componente atrasada dependa do tempo de exposição da medida. Esta hipótese é confirmada por resultados experimentais que são mostrados na figura 36. A figura refere-se a uma amostra que foi irradiada com uma taxa de exposição de 110 R/s sob um campo de $3{,}6 \times 10^4$ V/cm. A curva I foi obtida depois de a amostra ter sido irradiada curante 20 seg, o que dá uma taxa total de 2.200 R. No instante em que se re

tirou a radiação o valor da corrente era bem próximo do valor máximo. A curva II foi obtida depois de a amostra ter sido irradiada durante 30 minutos, acumulando uma taxa de aproximadamente , $2x10^5$R. Depois deste tempo a corrente praticamente já tinha alcançado seu valor estacionário.

Comparando as duas curvas, vê-se que a curva II começa com um valor de corrente bem inferior ao da curva I, mas posteriormente caminham juntas. Em tempos maiores que 50 minutos a cor -

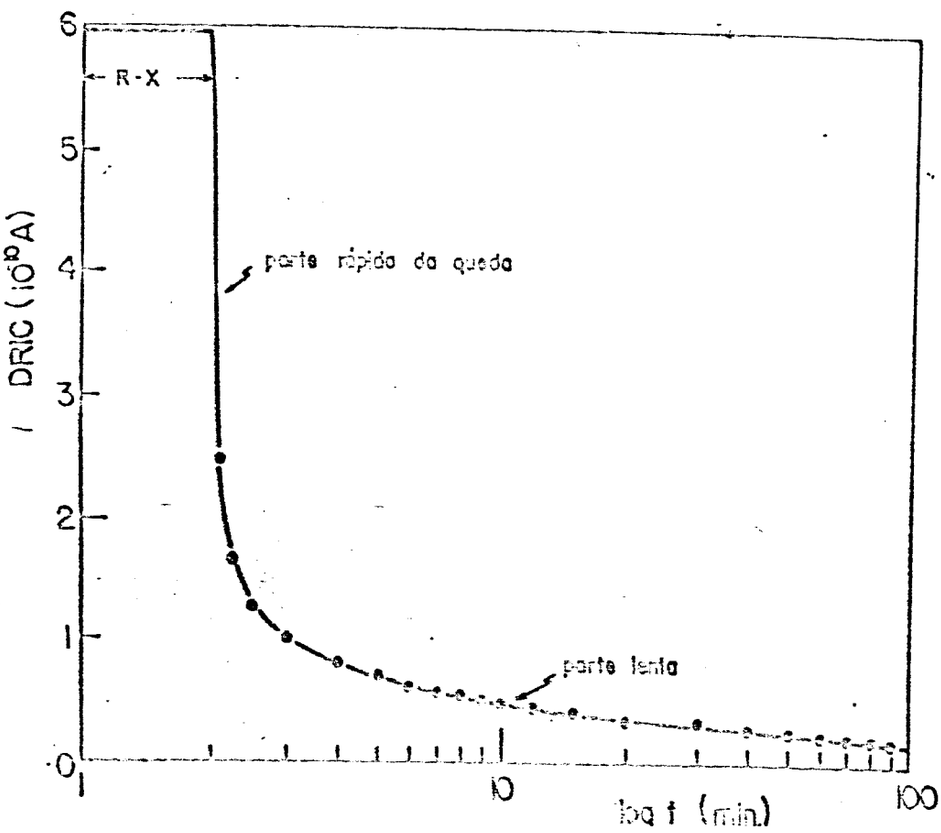


Figura 35

rente em ambos os casos, decresce proporcionalmente a t^{-1}, enquanto que para tempos menores decrescem mais lentamente. A variação na curvatura da curva II é mais pronunciada que na curva I.

Voltando atrás, no capítulo I, vê-se que segundo o modelo de Fowler, o decaimento da componente atrasada é proporcional a t^{-1}.

A figura 37 mostra curvas da parte inicial da DRIC contra o tempo num gráfico monolog. A curva I representa a medida ao se interromper a radiação quando a RIC estava no seu valor máximo e a curva II quando a RIC tinha alcançado seu valor estacio-

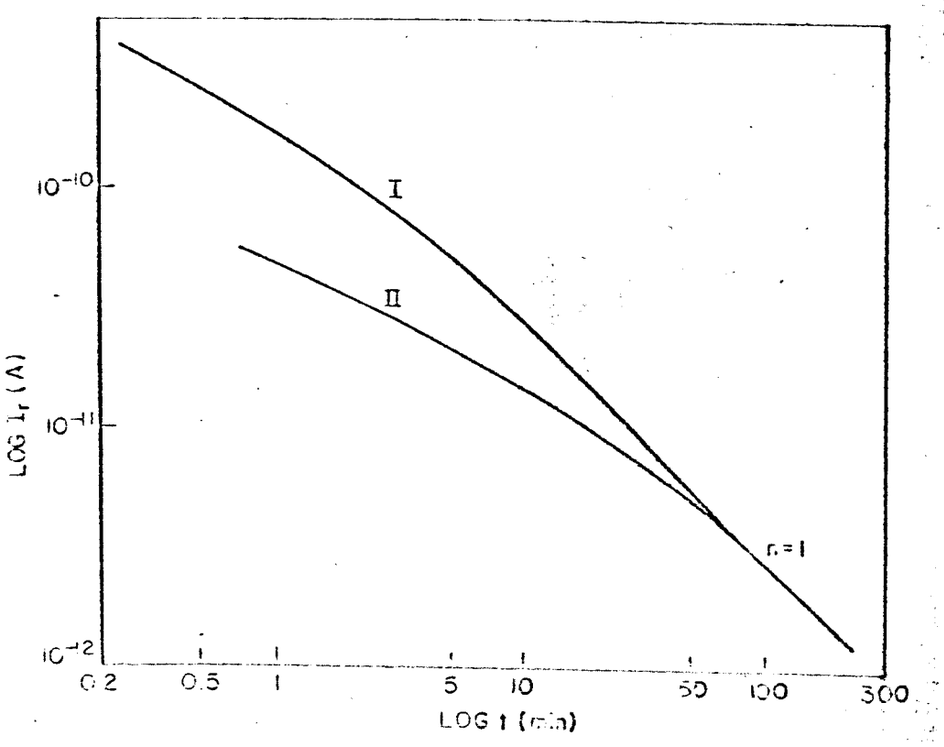


Figura 36

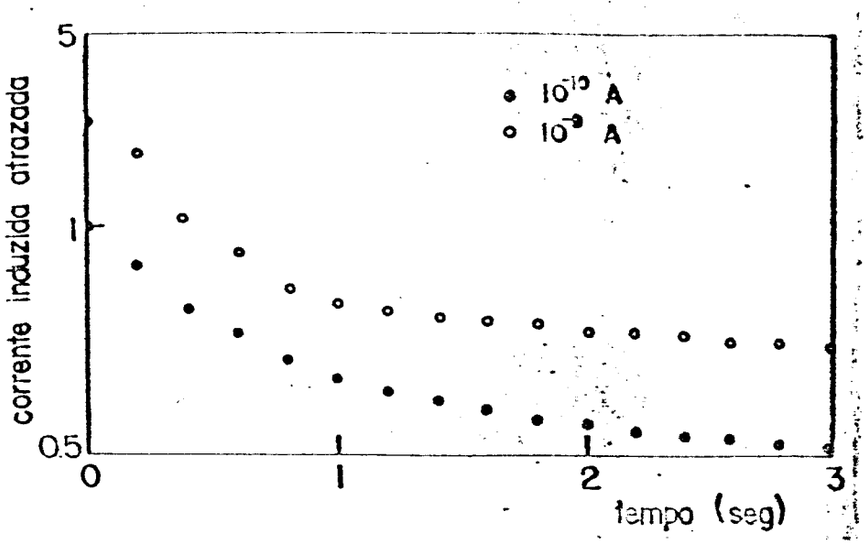


Figura 37

nário. Durante seu primeiro segundo, ambas as curvas, apresentam uma queda aproximadamente exponencial, e se tornam praticamente constante em seguida. Equacionando estas curvas, temos:

$$I = I_o e^{-\beta t} + I_1 \qquad \text{V.4.}$$

Dos gráficos podemos tirar os valores de I_o, I_1 e β para as duas curvas.

Curva I : $I_o = 1{,}8 \times 10^{-9}$A ; $I_1 = 5 \times 10^{-10}$A ; $\beta = 1{,}26$

Curva II: $I_o = 3{,}2 \times 10^{-10}$A; $I_1 = 9 \times 10^{-11}$A ; $\beta = 1{,}96$

VI. DISCUSSÃO E TEORIA

O aspecto mais importante, e também original, em nossos resultados é o aparecimento da variação na RIC, que costumamos chamar de transiente da condutividade induzida. Maeda et al[19] observaram um decaimento na corrente induzida, mas com campos bem acima dos por nós utilizado e, atribuíram a esta queda um efeito de polarização, que por evidências experimentais já mostramos que não é o nosso caso.

Muitos autores, têm até agora trabalhado com baixas taxas de exposição, Fowler[14], Meyer et al.[15] e também Wintle[38]. Todos não encontraram que a corrente induzida varia com o tempo. Outros autores trabalharam com altas intensidades de radiação[16,39] o fizeram através de pulsos rápidos o que impedia de perceber se

a corrente induzida decorrente desta radiação variava ou não com o tempo. Por outro lado, curvas similares às nossas foram observadas, no mesmo material utilizando bombardeamento de elétrons e radiação γ[18].

6.1. PRIMEIRAS INTERPRETAÇÕES

No início da irradiação a corrente é limitada pelo preenchimento de portadores nas armadilhas ao invés de ser limitada pela recombinação. Portanto atribuímos o crescimento inicial da corrente ao preenchimento das armadilhas já existentes no material pelos buracos gerados pela radiação. Temos demonstrado também, que o decaimento da corrente é exclusivamente causado por um processo de interação entre a radiação e o material dielétrico, independentemente da presença de um campo elétrico.

Inicialmente pensávamos que a radiação criava defeitos na estrutura do material que agiam como armadilhas para os portadores. Esta hipótese encontrava suporte no fato de que é bem conhecida a geração de defeitos devido a radiação tanto em dielétricos quanto em metais. Procurávamos explicar assim o transiente da corrente induzida observada em nossas medidas.

6.2. ESTRUTURA DAS ARMADILHAS

Injeção de elétrons em folhas finas de Teflon FEP por um feixe eletrônico parcialmente penetrantes gera uma camada de carga espacial negativa cuja dissipação em circuito aberto, a

temperatura ambiente, é praticamente desprezível. Esta conclusão é tirada nos trabalhos feitos por Sessler e West[25,40]. Isto indica que tanto os elétrons primários quanto os secundários são capturados em armadilhas profundas e, a sua libertação para a banda de condução é desprezível. Assim o número de elétrons na banda de condução e nas armadilhas rasas é extremamente baixo. Então à temperatura ambiente, os elétrons não contribuem para a corrente de condução que portanto é uma corrente unipolar de buracos. Entretanto, de acordo com a teoria de Rose[20,21], estes elétrons agem como centros de recombinação para os buracos livres.

É visto em nossas medidas que depois de um período de irradiação aparece uma corrente estacionária. A condução unipolar somada ao fato da existência de uma corrente estacionária mostra que os eletrodos são ohmicos. Podemos verificar isto utilizando a equação de Maxwell. A densidade de corrente j(t) através da secção transversal adjacente ao eletrodo positivo pode ser escrita da forma $j(t) = jc(0+,t) + \varepsilon\frac{\partial E(0+,t)}{\partial t}$, onde jc é a densidade de corrente de condução e E $\partial E/\partial t$ a densidade de corrente de deslocamento. Como a tensão aplicada se mantém constante, e como não há a formação de barreira de potencial, $\partial E/\partial t=0$; logo para manter a densidade total de corrente constante e diferente de zero é necessário que jc(0+,t) seja constante e diferente de zero. Conclue-se, então, que o eletrodo positivo não pode ser bloqueante, mas permite a continuidade da corrente de condução através da interface eletrodo-dielétrico. Esta conclusão é substanciada pelo fato de não termos detectado qualquer polarização significante em qualquer estágio do processo de condução. O

comportamento neutro do eletrodo é também implícito na teoria de Fowler[14].

Vimos que devido a estrutura das armadilhas para elétrons, pouco destes portadores habitam a banda de condução. Nosso problema consiste agora em esboçar um quadro das armadilhas para os buracos, que são os portadores da corrente de condução no teflon.

Medidas da condutividade induzida com pulsos de radiação da ordem de μseg. mostram a existência de armadilhas com um tempo de captura muito pequeno[39]. No capítulo II vimos que o valor da mobilidade dos buracos é $\mu = 2x10^{-9} cm^2 V^{-1} seg^{-1}$; um valor tão baixo que só pode ser explicado como sendo de uma mobilidade modulada pelas armadilhas. Deve, então, existir uma região de armadilhas rasas que proporciona um equilíbrio térmico entre os portadores livres e aqueles que habitam essas armadilhas. Ainda no capítulo II vimos que correntes termoestimuladas em filmes de teflon pré-irradiados por feixes eletrônicos, mostraram a existência de armadilhas profundas para os buracos. Esta conclusão foi corroborada recentemente por medidas com amostras carregadas através de descarga corona[41].

6.3. PARÂMETROS

Supomos que os buracos na banda de valência tem uma mobilidade constante μ_o. A "mobilidade de arrasto" μ dos portadores é bem menor porque boa parte da população dos portadores permanecem imobilizados nas armadilhas. A esta mobilidade denomina-

se mobilidade modulada. A relação entre estas mobilidades é definida segundo a igualdade $\mu n = \mu_o n_o$[42]. Aqui $n = n_o + n_r$, onde n_o é a concentração de portadores livres e n_r a concentração de portadores nas armadilhas rasas. Conclue-se portanto que n é a concentração total de buracos que participa do processo de condução. Para simplificar introduzimos o fator $\theta = n_o/n$, ficando $\mu = \theta\mu_o$.

Segundo a teoria de Rose-Fowler, recombinação ocorre somente entre portadores livres de um sinal com os portadores de sinal oposto presos nos centros de recombinação (ver parágrafo I.3). Em nosso estudo, como não existem elétrons livres, a recombinação acontecerá entre os buracos livres e os elétrons presos nos centros de recombinação. À esta concentração de elétrons denominaremos com a letra m. Então o termo de recombinação é dado por $\alpha_o n_o m$, onde α_o é o coeficiente de recombinação livre. Langevin deduziu uma expressão para o coeficiente de recombinação para gases em alta pressão[43]. Esta expressão, que é $\alpha_o = e\mu_o/\varepsilon$, foi mostrada mais tarde ser válida também para sólidos desde que não haja outro tipo de força que não a Coulombiana entre os portadores. As grandezas e e ε são respectivamente a carga eletrônica e a constante dielétrica do meio. Esta igualdade pode ser escrita como $\alpha = e\mu/\varepsilon$, onde α é o coeficiente de recombinação modulado pelas armadilhas. Considerando $\mu = 2\text{x}10^{-9}\,cm^2V^{-1}seg^{-1}$, $\varepsilon = 1.9\text{x}10^{-13}\,F/cm$, tem-se: $\alpha \simeq 1.7\text{x}10^{-15}\,cm^3seg^{-1}$. Fazendo as devidas substituições o termo de recombinação pode ser escrito como αnm.

A taxa de geração de portadores é dada por $p = c\,\delta\,\dot{D}\,W^{-1}$, onde $\dot{D}$ é a taxa de radiação absorvida, δ é a massa específica da substância, W a energia necessária para gerar um par livre de elé

tron-buraco, e c um fator dimensional[42]. $\dot{D}$ é medido em $rad.seg^{-1}$ e 1 rad ≅ 1,1 R, e $\dot{X}$ é medido em R/seg. W é medido em elétron-volt, δ em $g.cm^{-3}$ e p em $cm^{-3}.seg^{-1}$, e $c = 0{,}625 \times 10^{4}$ e $V.rad^{-1}.g^{-1}$. Resulta de tudo isto que $p=5{,}6\times10^{13}(\delta/W)\dot{X}cm^{-3}seg^{-1}$. Encontramos na literatura um trabalho sobre recombinação elétron.-buraco em Antraceno excitado por raios-X[44], onde o valor da energia de criação deste par é encontrado ser igual a 2.700 eV. O valor de δ para o teflon FEP é 2 g/cm^{2}. Introduzindo estes valores na expressão acima e utilizando $\dot{X} = 110$ R/seg, encontramos $P = 3{,}0\times10^{12}cm^{-3}seg^{-1}$.

Da mesma forma que diferenciamos a mobilidade livre com a modulada, o coeficiente livre de recombinação com o modulado, podemos diferenciar tempos de captura dos buracos pelas armadilhas. O tempo médio compreendido entre o instante em que o buraco é criado e o instante em que é capturado por uma armadilha profunda denominaremos de τ. O tempo de permanência do buraco na banda de valência de τ_o. τ_o é menor que τ. A τ chamamos de tempo de captura modulado pelas armadilhas rasas e compreende a soma de τ_o e o tempo que os portadores gastam preso nas armadilhas rasas. Tem-se $\tau_o = \theta\,\tau$.

O aumento linear da corrente induzida e tempo tm gasto para se alcançar o valor máximo desta corrente dependem fracamente da taxa de exposição, mostrando que durante o período de construção a corrente é controlada pelas armadilhas profundas. A ordem de magnitude do tempo τ é a mesma do tempo tm, que é 10^{-1}seg.

Para explicar a existência da corrente estacionária de nossas medidas, consideramos que a partir de um determinado ins-

tante os buracos que cairam nas armadilhas profundas começam a serem devolvidos para a banda de valência, tornando-se novamente livre para a condução elétrica. O tempo de liberação destes portadores τ^* é o tempo em que eles permanecem presos nas armadilhas, isto é, o tempo compreendido entre os instantes de captura e de liberação. Este tempo τ^* é da ordem de tempo necessário para tornar a corrente induzida estacionária, que é da ordem de 10^3seg. A diferença de magnitude entre τ e τ^* mostra que o comportamento inicial da condutividade induzida, isto é, o transiente, praticamente independe do tempo de liberação dos buracos.

6.4. EQUAÇÃO DE BALANÇO

Para que se consiga descrever o processo de condução , num material sob irradiação, com um campo estático aplicado, é preciso que se coloque numa mesma equação os fatores que alteram o número de portadores livres. Especificamente em nosso estudo, através de um modelo proposto para o material em questão, a variação dos portadores livres consiste na combinação entre os buracos criados pela radiação, menos aqueles que se recombinam com elétrons nos centros de recombinação e também aqueles que são capturados pelas armadilhas profundas, acrescidos dos que delas são liberados. Isto tudo é sintetizado sob forma analítica,

$$\frac{dn}{dt} = p - \alpha nm - \frac{n}{\tau} + \frac{n_t}{\tau^*} \qquad \text{VI.1.}$$

Nesta equação n é a concentração de buracos que estão na banda de valência somado aqueles que estão nas armadilhas rasas; n_t é a concentração de buracos que estão presos nas armadilhas profundas e m é a concentração de elétrons que é igual a soma $n + n_t$.

A variação da concentração de portadores nas armadilhas profundas é o resultado da diferença entre o número deles que caem nas armadilhas e o número que são liberados em cada instante. Analiticamente,

$$\frac{dn_t}{dt} = \frac{n}{\tau} - \frac{n_t}{\tau^*} \qquad \text{VI.2}$$

Portanto, a variação do número de elétrons no material é dado pelo número gerado pela radiação subtraído daqueles que se recombinam com os buracos condutores por unidade de tempo,

$$\frac{dm}{dt} = p - \alpha nm \qquad \text{VI.3}$$

A corrente de condução induzida pela radiação é:

$$Ir = aen\mu E \qquad \text{VI.4}$$

Onde a é a área da região irradiada do dielétrico e E o campo externo aplicado.

Fica implícito nestas equações que estamos tratando com eletrodos ohmicos e com neutralidade de carga dentro da amostra.

Recentemente foi publicado um trabalho sobre fotocorrente e recombinação que constrói um modelo assumindo eletrodos bloqueantes e formação de carga espacial no volume da amostra, tal como na teoria da câmara de ionização[45].

6.4.1. CASOS LIMITES

Da equação VI.1. podemos obter uma solução para tempos pequenos, onde o termo devido à capturação dos portadores pelas armadilhas é mais importante que o termo da recombinação. O termo devido a liberação dos portadores com muito mais razão pode ser desprezado, e a equação fica,

$$\frac{dn}{dt} = p - \frac{n}{\tau} \qquad \text{VI.5}$$

A solução desta equação diferencial de primeira ordem é,

$$n = p\tau \left(1-\exp(-t/\tau)\right) \qquad \text{VI.6}$$

Para $t << \tau$ expandimos $e^{-t/\tau} \cong 1 - t/\tau$, e encontramos $n = pt$. Nos primeiros instantes a corrente cresce linearmente com p e portanto com $\dot{X}$ como mostra a curva A da figura 33. Encontramos aqui a primeira concordância entre o nosso modelo teórico e os resultados experimentais.

Podemos agora saltar para o limite oposto, $t \to \infty$, e verificar quais termos da equação VI.1 serão dominantes. Para tempos longos a curva se encontra no estado estacionário, portanto não

há variação do número de portadores de condução. Pelo balanço detalhado podemos escrever,

$$p = \alpha n m$$

e

$$\frac{n}{\tau} = \frac{n_t}{\tau^*} \qquad \text{VI.7}$$

Revendo os cálculos feitos no ítem 1.3.4., extraídos do artigo do Fowler, encontramos que $n \sim p^{\Delta}$, onde $0,5 < \Delta < 1$. A curva B da figura 33 mostra que o crescimento da corrente estacionária contra a taxa de radiação obedece a relação $Ir \sim \dot{X}^{0,64}$. Mais uma vez encontramos concordância entre o previsto pela teoria e o realizado na experiência.

6.4.2. PERÍODO DE TRANSIENTE

Convencionamos chamar de transiente em nossas medidas o período compreendido em torno do valor máximo de corrente. Neste intervalo de tempo, que é de aproximadamente 200 seg., praticamente não há liberação dos portadores das armadilhas profundas; estamos querendo dizer que τ^* deve ser maior que 200 seg. com estas considerações podemos escrever a equação que descreve este período,

$$\frac{dn}{dt} = p - \alpha n m - \frac{n}{\tau} \qquad \text{VI.8}$$

Os resultados desta equação são válidos somente para $t/\tau^* << 1$.

No capítulo seguinte iremos calcular esta equação, discutir seus resultados e obter valores das grandezas p, α e τ. Compararemos estes valores com os obtidos teoricamente no capítulo 5.3 e com os que serão calculados pelo ajuste que faremos para outras partes da curva experimental.

VII. RESULTADOS E CONCLUSÕES

Para efeito de cálculos, ou melhor,para a obtenção dos valores dos parâmetros, podemos considerar nossa curva de corrente induzida subdividida em quatro partes:

a) o crescimento da condutividade induzida sob radiação, que compreende os primeiros cinco segundos;

b) o transiente da condutividade induzida compreendido entre o quinto e o duocentésimo segundo aproximadamente;

c) o período de condutividade estacionária;

d) a componente atrasada da condutividade induzida.

7.1. CRESCIMENTO DA RIC

Na secção 6.4.1 , discutimos casos limites do fenômeno da condutividade induzida e através de uma aproximação encontramos para o início da curva que n = pt. Então o número de portadores livres criados pela radiação, cresce linearmente com o tempo nos primeiros segundos. Considerando a equação VI.4, e buscando um ajuste com as curvas experimentais, obtivemos,

$$p = 5.0 \times 10^{12} cm^{-3} . seg^{-1}.$$

7.2. TRANSIENTE

Esta parte da curva foi a que permitiu um ajuste mais detalhado e que propiciou a obtenção do maior número de parâme -

tros. É bom lembrar aqui mais uma vez, que esta é parte original de nosso trabalho. Os cálculos foram feitos com a ajuda do computador devido a dificuldade de se resolver duas equações de primeiro grau acopladas. Lembramos aqui as equações,

$$\frac{dn}{dt} = p - \alpha n m - \frac{n}{\tau}$$

e

$$\frac{dn_t}{dt} = \frac{n}{\tau}$$

e também que $m = n + n_t$.

Para facilitar a montagem do programa, transformamos as grandezas dimensionais em adimensionais utilizando dos seguintes artifícios,

$$n = a\,n' \;;\; m = am' \;;\; t = \tau t'$$

Assim obtemos a equação,

$$\frac{dn'}{dt'} = p' - n'm' - n' \qquad \text{VII.1}$$

onde $p' = \frac{\tau}{a} p$ e $\tau = \frac{1}{\alpha a}$

Todas as letras com apóstrofe são adimensionais ligadas às dimensionais pelas relações acima escritas.

As figuras 38, 39 e 40 mostram os ajustes dos resultados experimentais com os teóricos para as taxas de radiação , 165 R/S, 110 R/S e 55 R/S, respectivamente. Abaixo fazemos uma tabela dos parâmetros que utilizamos em cada uma dessas curvas.

TABELA DOS PARÂMETROS AJUSTADOS

$\dot{X}$ (R/S)	$\mu\left(\frac{cm^2}{Vseg.}\right)$	$P\left(\frac{1}{cm^3 seg.}\right)$	$\alpha(cm^3/seg.)$	τ(seg.)
55	$2,0x10^{-9}$	$3,8x10^{12}$	$7,0x10^{-16}$	4,7
110	$2,0x10^{-9}$	$5,8x10^{12}$	$5,3x10^{-16}$	5,4
165	$2,0x10^{-9}$	$7,0x10^{12}$	$5,1x10^{-16}$	6,5

7.3. COMPONENTE ATRASADA DA RIC

Como já discutimos no capítulo anterior a componente atrasada pode ser dividida em duas partes, a queda brusca e rápida no início, seguida de uma queda mais lenta e duradoura que é mostrada na figura 33. O resultado mostra que depois de aproximadamente 50 minutos a DRIC decresce hiperbolicamente no tempo, estando de acordo com os cálculos desenvolvidos por Fowler e descritos na secção 1.3.5.

Nos interessa agora extrair alguns dados no ajuste, teórico-experimental, da queda rápida. A figura 37 nos permite concluir que nesta curva existe uma superposição de uma queda exponencial e um valor quase constante de corrente. Com o nosso modelo podemos montar a equação que descreve esta situação. Não havendo mais criação de portadores pela radiação, p não entra na e

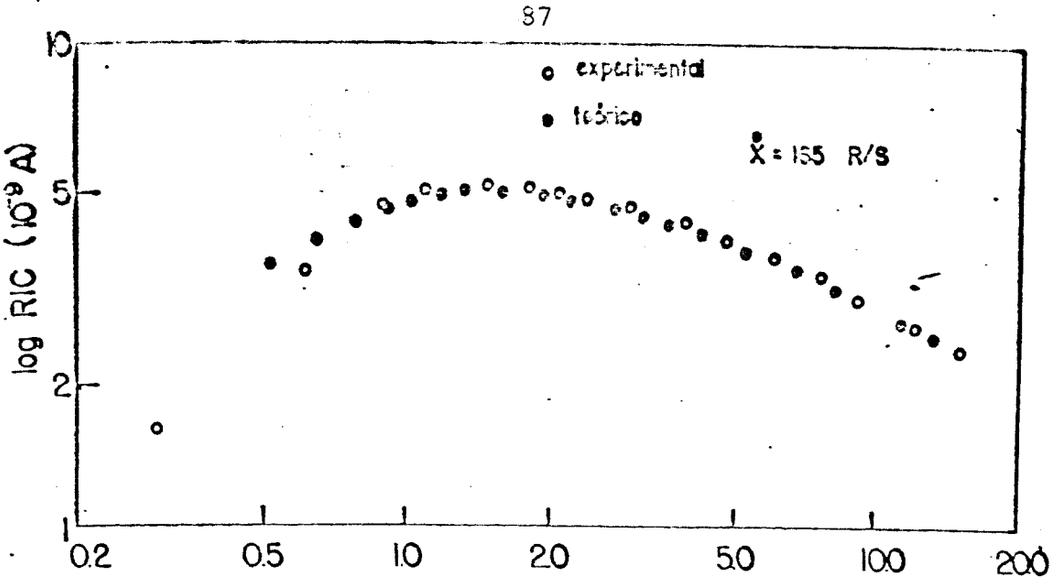


Figura 38

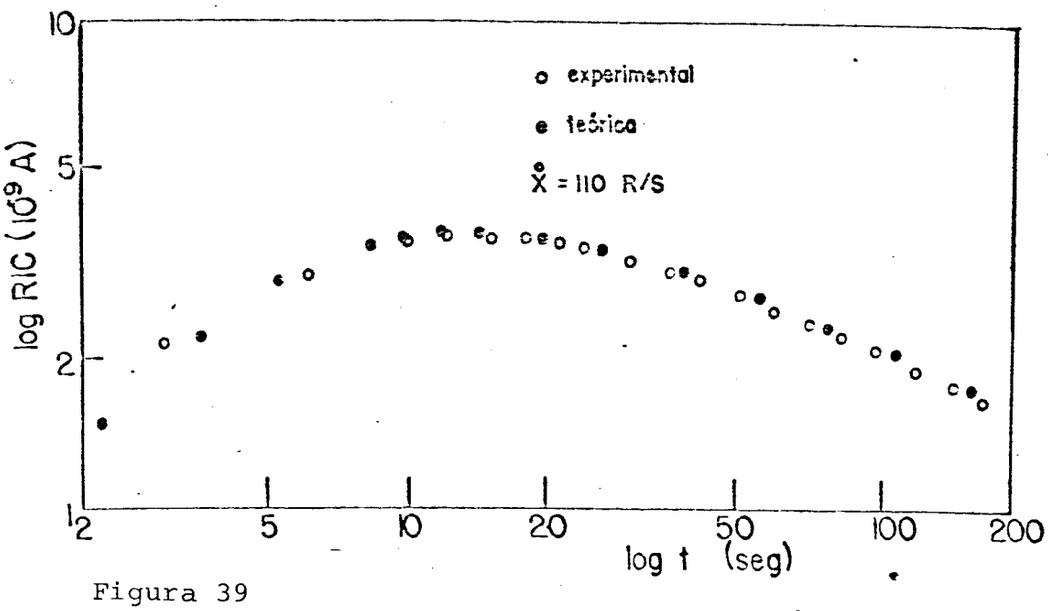


Figura 39

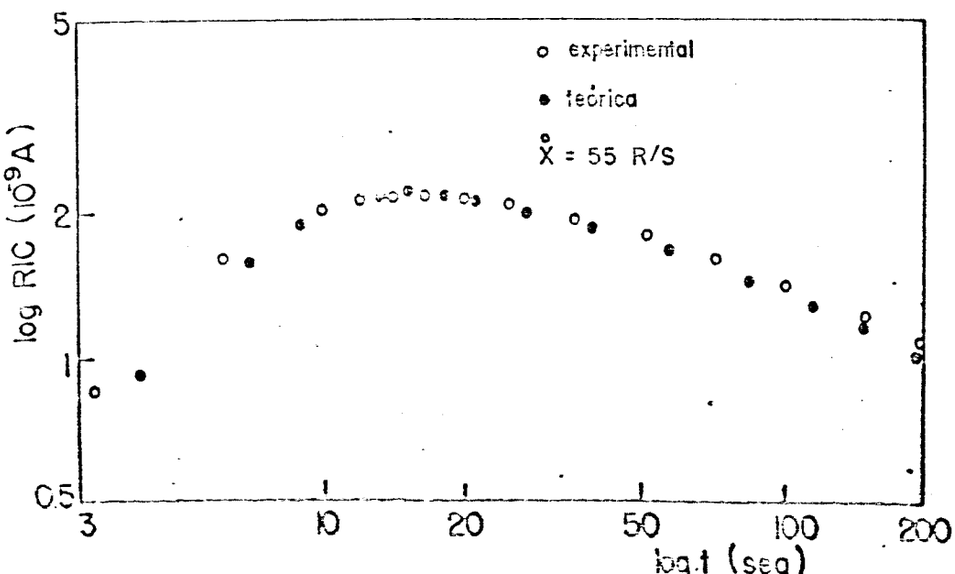


Figura 40

quação,

$$\frac{dn}{dt} = \alpha n m_o - \frac{n}{\tau} + \frac{n_t}{\tau^*} \qquad \text{VII.2}$$

Considera-se m_o como sendo o número de elétrons no instante em que se desliga a radiação, e despreza-se sua variação no início da queda. Isto encontra suporte no fato de que $n_t >> n$. A equação fica simplificada,

$$\frac{dn}{dt} = -(\alpha m_o + \frac{1}{\tau} + \frac{1}{\tau^*})n + \frac{1}{\tau^*} m_o \qquad \text{VII.3}$$

cuja solução é,

$$n = (n_o - \frac{\frac{1}{\tau^*}m_o}{\alpha m_o + \frac{1}{\tau} + \frac{1}{\tau^*}})e^{-(\alpha m_o + \frac{1}{\tau} + \frac{1}{\tau^*})t} + \frac{\frac{1}{\tau^*}m_o}{\alpha m_o + \frac{1}{\tau} + \frac{1}{\tau^*}} \qquad \text{VII.4}$$

Comparando as equações V.4 e VII.4, encontramos que,

$$N_o = n_o - \frac{\frac{1}{\tau^*}m_o}{\alpha m_o + \frac{1}{\tau} + \frac{1}{\tau^*}}$$

$$\beta = \alpha m_o + \frac{1}{\tau} + \frac{1}{\tau^*} \qquad \text{VII.5}$$

$$N_1 = \frac{\frac{1}{\tau^*}m_o}{\alpha m_o + \frac{1}{\tau} + \frac{1}{\tau^*}}$$

onde $N_o = \frac{I_o}{A\ e\ \mu\ E}$

A ..... área da região irradiada da amostra

e ..... carga eletrônica

μ ..... mobilidade dos buracos na amostra

E ..... campo elétrico aplicado.

Curva I : $N_o \cong 1{,}1 \times 10^{13} cm^{-3}$; $N_1 \cong 3{,}0 \times 10^{12} cm^{-3}$

Curva II: $N_o \cong 2{,}0 \times 10^{12} cm^{-3}$; $N_1 \cong 5{,}5 \times 10^{11} cm^{-3}$

A curva I representa a medida realizada quando interrompemos a radiação no valor máximo de corrente. Com os valores que já encontramos até aqui podemos escrever,

$$\frac{1}{\tau^*} m_o = 3{,}0 \times 10^{12} \beta, \qquad \text{curva I}$$

$$\frac{1}{\tau^*} m_o = 5{,}5 \times 10^{11} \beta,, \qquad \text{curva II}$$

Para τ^* daremos o valor 200 seg, só para efeito de avaliação do valor de m_o em cada um dos casos.

$m_o \cong 7{,}5 \times 10^{14} cm^{-3}$ curva I

$m_o \cong 2{,}2 \times 10^{14} cm^{-3}$ curva II

Podemos ainda calcular o valor de α. Para isto despreza

remos o termo $\frac{1}{\tau^*}$, visto que ele é bem menos que o termo $\frac{1}{\tau}$.

$$\alpha = \frac{\beta - \frac{1}{\tau}}{m_o}$$

o que dá

$$\alpha \cong 1{,}3 \times 10^{-15} \ cm^3.seg^{-1} \qquad \text{curva I}$$

$$\alpha \cong 5{,}5 \times 10^{-15} \ cm^3.seg^{-1} \qquad \text{curva II}$$

Os resultados nos dizem que a queda da curva I é menos abrupta que da curva II. Se pensarmos que nos primeiros instantes da radiação, as armadilhas se encontram praticamente vazias, é de se esperar que a queda da curva I seja mais violenta que da curva II. No final com quase todas as armadilhas cheias o desaparecimento de portadores da banda de valência deveria se dar através da recombinação com os elétrons. Aqui aparece uma discrepância do modelo com os resultados experimentais. O coeficiente de recombinação α, também não está de acordo com o calculado na secção anterior. Outra coisa que parece não estar muito de acordo com o esperado é o fato de que m_o é maior no ponto de máximo I. A intuição nos diz que o número de elétrons começa praticamente do zero, aumenta durante o transiente, saturando depois de algum tempo quando a curva alcança o estado estacionário. O resultado mostra que no instante em que o número de buracos livres é máximo, o número de elétrons é maior do que quando o número de buracos é estacionário.

Vemos que apesar de conseguirmos extrair o funcional da equação V.4 da teoria, os resultados obtidos não são satisfatórios.

7.4. CONDUTIVIDADE ESTACIONÁRIA

Pela sequência lógica esta secção deveria preceder a anterior. Porém as três secções anteriores forneceram amplo material para cálculos e discussões, enquanto que esta servirá como teste dos resultados obtidos. Como o nome diz, tem-se dn/dt = 0, e através do balanço detalhado então o número de portadores criados igual ao número recombinado na unidade de tempo e, número de portadores que caem nas armadilhas igual ao número dos liberados.

$$p = \alpha n m \qquad \text{VII.6}$$

e

$$\frac{n}{\tau} = \frac{n_t}{\tau^*} \qquad \text{VII.7}$$

Vamos supor que $n_t \simeq m$, e que $p = 5{,}0\text{x}10^{12}\,cm^{-3}.seg^{-1}$, $\tau = 5$ seg, $\tau^* = 200$ seg e $\alpha = 5{,}0\text{x}10^{-16}\,cm^{3}.seg^{-1}$. Resolvendo o sistema de equações, fica,

$$n = \sqrt{\frac{\tau\, p}{\tau^* \alpha}} \qquad \text{VII.8}$$

Substituindo os valores acima, encontramos que

$n = 1{,}6 \times 10^{13} cm^{-3}$ e $n_t = 6{,}0 \times 10^{14} cm^{-3}$. Então, no estado estacionário o número de buracos presos é cerca de quarenta vezes maior que o número de buracos livres. Isto está inteiramente de acordo com o esperado.

7.5. ABSORÇÃO DIELÉTRICA

A curva da fig. 27 mostra o efeito da variação da temperatura ambiente sobre a corrente de absorção dielétrica sob um campo aplicado nas amostras de teflon não irradiadas. Acrescentamos este efeito em nossa tese porque, apesar de não estar diretamente ligado ao assunto que estamos abordando e, não termos realizado medidas quantitativamente mais elaboradas, a curva é muito rica em informações. Em primeiro lugar observamos que na média a corrente continua caindo com o tempo. Em segundo lugar vemos que a temperatura exerce um efeito muito grande na condutividade do material. Este efeito é perceptível quando a corrente alcança valores abaixo de 10^{-14}A. Os picos da figura 27 apareceram durante o dia quando, naturalmente, a temperatura é maior, e os vales durante a noite.

O mesmo resultado é apresentado na figura 28 numa escala dupla logarítmica, donde obtém-se a mesma inclinação nas retas de corrente contra tempo para temperatura diferentes. Podemos interpretar esta variação na corrente devido a portadores presos que são excitados pela temperatura e se tornam livres. Especulando os resultados obtidos, onde sem dúvida nenhuma vale a lei de decaimento $I = I_o t^{-n}$, podemos estimar o valor da energia de excitação.

$T = 24,5^{o}C$ $\qquad I_1 = I_{o_1}\, t^{-0,81}$

$T = 23^{o}C$ $\qquad I_2 = I_{o_2}\, t^{-0,81}$

resulta $\dfrac{I_1}{I_2} = \dfrac{I_{o_1}}{I_{o_2}}$ VII.9

Devido a baixa corrente, alcançada ($\sim 10^{-15}$A), o que dá uma condutividade da ordem de 10^{-20} $(\Omega.cm)^{-1}$, suporemos que já se está próximo do valor da condutividade intrínseca do material, onde vale a equação,

$$\sigma = \sigma_o e^{-\mu/KT} \qquad \text{VII.10}$$

Das equações VII.9 e VII.10, e de valores colhidos na figura 27, tem-se,

$$\frac{I_{o_1}}{I_{o_2}} = \frac{\sigma_{o_1}}{\sigma_{o_2}} = 1.6 \qquad \text{VII.11}$$

ou então,

$$1.6 = e^{-\frac{\mu}{K}\left(\frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_2}\right)} \qquad \text{VII.12}$$

que dá,

$$\mu = K \frac{T_2\, T_1}{T_2 - T_1} \ell n\ 1.6 \qquad \text{VII.13}$$

$$T_1 = 297,5^{o}K$$

$$T_2 = 296^{o}K$$

$$K - 8.6x10^{-5} \frac{eV}{^{o}K}$$

Resulta, $\mu \cong 2,3$ eV.

O valor da energia de excitação encontrado através desta especulação é alto, e poderia ser interpretado como sendo a energia de armadilhas bastante profundas, e que, naturalmente, só teria efeito visível quando a corrente fosse bastante baixa, como é o caso presente.

Este efeito pode ser minuciosamente estudado e dar importante contribuição ao aperfeiçoamento do modelo do Teflon.

B I B L I O G R A F I A

*1 - J.J. Thomson e MacClelland, Proc. Cambridge Phil.Soc. 9, 126, (1898)

*2 - M.Perrau, Comptes Rendus. 129, 956, (1899).

*3 - H.Becquerel, Comptes Rendus. 136, 1173, (1903)

*4 - A.Joffé, Annalen der Physik. 20, 919, (1906)

*5 - G.Joffé, Annalen der Physik. (4) 25, 257, (1908)

*6 - A.Joffé, Annalen der Physik. 72, 461, (1923)

*7 - H.Neumann, Zeit. fur Physik. 45, 717, (1927)

8 - D.Nasledow e P.Scharawsky, Annalen der Physik. 3, 63, (1929)

*9 - F.T.Farmer, Nature Lond. 150, 521, (1942)

*10 - F.T.Farmer, Brit. J. Radiol. 18, 148, (1945)

*11 - F.T.Farmer, Brit. J. Radiol. 19, 27, (1946)

12 - F.C.Armstead, J.C. Pennock e L.W. Mead, Phys.Rev. 79, 86D, (1949)

13 - J.H.Coleman e D.Bohm, J.Appl.Phys. 24, 497, (1953)

14 - J.F.Fowler, Proc.Roy.Soc. A.226, 464, (1956)

15 - R.A.Meyer, F.L.Bouquet e R.S.Alger, J.Appl.Phys. 27, 1012, (1956)

16 - E.H.Martin e J.Hirsch, J.Appl.Phys. 43, 1001, (1972)

17 - B.Gross, G.M.Sessler e J.E.West, Appl.Phys.Lett. 24, 351, (1974)

18 - B.Gross, G.M.Sessler (não publicado)

19 - H.Maeda, M.Kurashige e T.Nakata, J.Appl.Phys. 50, 758, (1979)

20 - A.Rose, Concepts in Photoconductivity and allied Problems Interscience publishers, John Wiley & Sons, New York,(1963)

21 - A.Rose, Phys.Review, 97, 2, 322 (1955)

22 - J.H.Simpson, Proc.Phys.Soc. A.63, 86 (1950)

23 - B.Gross, G.M.Sessler e J.E.West, J.Appl.Phys. 47, 969 (1976)

24 - B.Gross e J.Dow, em Extendet Abstracts, vol. 72-2 (Electrochemical Society, New York, 1972) pp.296-297.

25 - G.M.Sessler e J.E. West, J.Appl.Phys. 43, 922 (1972)

26 - B.Gross e L.N. Oliveira, J.Appl.Phys. 45, 4724 (1974)

27 - B.Gross, G.M.Sessler, H.Von Seggern e J.E.West, Appl.Phys. Lett. 34, 555 (1979)

28 - J.A. Giacometti e B.Gross (não publicado)

29 - Tese de Doutorado de René A.Moreno Alfaro, DFCM, (1977)

30 - ICRU Report 19, Radiation Quantities and Units (1971)

31 - B.Gross, Zeit fur Physik 155, 479 (1959)

32 - B.Gross, IEEE Trans. Nuclear Science, Ns-25,4 (1978)

33 - C.M.Davisson e R.D.Evans, Rev.Mod.Phys. 24, 79 (1952)

34 - J.Van Turnhout, Thermally Stimulated Descharge of Electrets Capítulo 2, TNO, (1978)

35 - V.Adamic e J.H.Calderwood, J.Phys.D.Appl.Phys. 11, 781 (1978)

36 - H.J.Wintle, J.Appl.Phys. 47, 968 (1976)

37 - L.Onsager, Phys.Rev. 54, 554 (1938)

38 - H.J.Wintle, J.Appl.Rad. and Isotopes 8, 132 (1960)

39 - R.C.Weingart, R.H.Barlett, W.Hofer e R.S.Lee, IEEE Trans. Nuc.Sci., NS-19 (6), 15 (1972)

40 - G.M.Sessler e J.E.West, Appl.Phys.Lett. 17, 507 (1970)

41 - H.Von. Seggern, J.Appl.Phys. 50, 2817 (1979)

42 - B.Gross, Sol.Stat.Comm. 15, 1655 (1974)

43 - J.J.Thomson e G.P.Thomson, Conduction of Electricity through Gases, V.1., Dover Publications, INC, 47 (1969)

44 - R.C.Hughes, J.Chem.Phys. 55,12, 5442 (1971)

45 - I.Chen, J.Appl.Phys. 49, 1162 (1978)

* *REFERÊNCIAS* - extraídas da tese de doutorado de *NORMAN W. RAMSEY*, University of London, 1972.