

INSTITUTO DE FÍSICA E QUÍMICA DE SÃO CARLOS
DEPARTAMENTO DE FÍSICA E CIÊNCIA DOS MATERIAIS
UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

"CONDUTIVIDADE INDUZIDA POR RADIA-
ÇÃO IONIZANTE NO MYLAR (PET) E
KAPTON (POLIIMIDA) "

Rinaldo Gregorio Filho

Tese apresentada ao Instituto de Física
e Química de São Carlos, para obtenção
do Título de Doutor em Ciências (Física
Aplicada).

Orientador: Prof. Dr. Bernhard Gross

USP / IFQSC / SBI

8-2-666715

OK

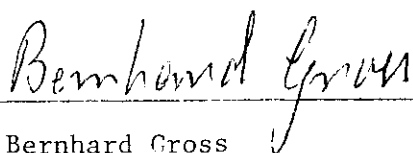
SÃO CARLOS

1986

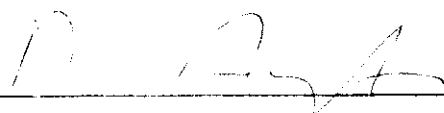
MEMBROS DA COMISSÃO JULGADORA DA TESE DE DOUTORADO DE RINALDO
GREGÓRIO FILHO

APRESENTADA AO INSTITUTO DE FÍSICA E QUÍMICA DE SÃO CARLOS, DA
UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO, EM 14 DE agosto DE 1986.

COMISSÃO JULGADORA:



Dr. Bernhard Gross - Orientador



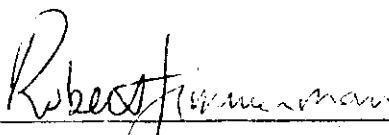
Dr. Michel André Aegerter



Dr. Guilherme Fontes Leal Ferreira



Dr. Rosário Flida Suman Bretas



Dr. Robert Lee Zimmerman

À Solange e aos meus
filhos Cristine e Daniel

AGRADECIMENTOS

Expresso aqui a minha gratidão a todos que, direta ou indiretamente, contribuíram para a execução deste trabalho, e em particular:

Ao Professor Bernhard Gross, pela dedicada e eficiente orientação.

Aos professores e amigos Roberto Mendonça Faria e Guilherme F. Leal Ferreira, pelas valiosas discussões e interesse que demonstraram.

Aos colegas Wilson Nunes dos Santos e Mariângela T. Figueiredo, pela inestimável colaboração na parte computacional.

A todos os colegas do "Grupo de Eletretos Professor Bernhard Gross" do IFQSC-USP e do Departamento de Engenharia de Materiais da UFSCar.

Aos técnicos Dante Chinaglia, Carlos Trombela e Marcos Semenzato, pelos eficientes trabalhos que realizaram.

Ao pessoal do Departamento de Processamento de Dados da UFSCar, pelas facilidades e atendimento prestado.

Ao amigo José Inácio Bretanha, pela paciente e caprichosa confecção dos desenhos e gráficos.

À Secretária Eveli Mhirdauí Sanches, pelo trabalho de datilografia.

ÍNDICE

	Pág.
LISTA DE ILUSTRAÇÕES	I
LISTA DE TABELAS	VIII
RESUMO	IX
ABSTRACT	X
CAPÍTULO I - INTRODUÇÃO	1
1.1. Polietileno Tereftalato-PET	1
1.2. Poliimide-Kapton	3
1.3. Condução Elétrica em Isolantes Orgânicos.	5
1.4. Unidades de Radiação	9
1.5. Efeitos da Radiação Ionizante em Isolantes Amorfos	11
1.6. Corrente Fotônica.....	13
1.7. Trabalhos Anteriores.....	15
1.8. Validade da Teoria de Bandas de Energia pa ra Substâncias Amorfas	18
1.9. Transporte Dispersivo em Materiais Polimê ricos	21
1.10. Teoria de Balanço dos Portadores	22
CAPÍTULO II- DETALHES EXPERIMENTAIS	26
2.1. Amostras	26
2.2. Sistema de Medidas	26
2.3. Determinação da Taxa de Exposição	33
2.3.1. Uniformidade da Exposição na Área Irradiada	33
2.3.2. Medidas com Câmara de Ionização...	34

	Pág.
CAPÍTULO V. MEDIDAS DE TSC - CIRCUITO FECHADO	90
5.1. TSC no PET	90
5.2. TSC no Kapton	92
5.3. Energia de Ativação.....	94
CAPÍTULO VI. MEDIDAS DA RIC NO AR	96
CAPÍTULO VII. MODELO TEÓRICO PROPOSTO	100
7.1. Teoria de Balanço de Portadores Generali- zada.....	100
7.2. Aplicação do Modelo Proposto	105
7.2.1. Ajuste Teórico-Experimental para o PET	106
7.2.2. Ajuste Teórico-Experimental para o Kapton	113
7.3. Comentários sobre o Modelo Proposto.....	117
CAPÍTULO VIII. DISCUSSÕES	124
8.1. Influência do Campo na Geração de Portado- res	124
8.2. Variação da Fotônica com a Espessura da Amostra	131
8.3. Influência do ar na RIC	138
8.4. Injeção de Carga pelo Eletrodo (Switching)	142
CAPÍTULO IX. CONCLUSÕES E SUGESTÕES	147
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	151

LISTA DE ILUSTRAÇÕES

	Pág.
Figura 1 - Variação do expoente n com a energia da radiação	13
Figura 2 - Distribuição direcional dos fotoelétrons por unidade de ângulo sólido	14
Figura 3 - Densidade de corrente induzida em função do tempo, com diferentes campos elétricos.....	16
Figura 4 - Várias formas propostas para a densidade de estados em semicondutores amorfos.....	20
Figura 5 - Modelo de banda de energia	23
Figura 6 - Esquema do arranjo utilizado nas medidas da RIC	27
Figura 7 - Esquema detalhado do arranjo utilizado	27
Figura 8 - Recipiente utilizado para a realização do vácuo	29
Figura 9 - Sistema de vácuo	30
Figura 10 - Sistema suporte para medida de TSC	31
Figura 11 - Esquema da montagem elétrica utilizada nas medidas de TSC	32
Figura 12 - Esquema da área da amostra irradiada.....	34
Figura 13 - Esquema da câmara de ionização de "ar livre"	35
Figura 14 - Corrente x tensão para a câmara de ionização de ar livre	37

Figura 15 - Relação entre a corrente do tubo de raio-x e a taxa de exposição	39
Figura 16 - Condutividade induzida em função do tempo, para várias intensidades do campo elétrico	42
Figura 17 - Verificação da reprodutibilidade na medida da RIC com distintas amostras	43
Figura 18 - Corrente induzida estacionária final em função do campo aplicado à amostra, para várias taxas de exposições	44
Figura 19 - Corrente induzida estacionária em função do campo aplicado, para várias espessuras das amostras.....	45
Figura 20 - Corrente induzida em função do campo aplicado	46
Figura 21 - Corrente induzida estacionária inicial em função do campo aplicado	47
Figura 22 - Condutividade induzida em função do tempo de irradiação para diferentes taxas de exposições	48
Figura 23 - Corrente induzida estacionária em função da taxa de exposição, para vários campos aplicados e diferentes espessuras das amostras	49
Figura 24 - Condutividade induzida em função do tempo para diferentes espessuras da amostra	51

Figura 25 - RIC em função da espessura da amostra, para dois campos aplicados	51
Figura 26 - Corrente induzida estacionária em função do campo para amostras com diferentes eletrodos e taxas de exposição	52
Figura 27 - Condutividade induzida em função do tempo.	53
Figura 28 - Condutividade induzida x tempo	55
Figura 29 - Condutividade induzida para diferentes energias médias da radiação	56
Figura 30 - Corrente induzida com inversão do campo elétrico	57
Figura 31 - Corrente induzida com inversão do campo...	58
Figura 32 - Corrente induzida com aplicação intermitente da radiação	59
Figura 33 - Recuperação da amostra irradiada	60
Figura 34 - Recuperação por aquecimento	62
Figura 35 - DRIC para diferentes campos e taxas de exposição	63
Figura 36 - Corrente atrasada para diferentes tempos de irradiação	65
Figura 37 - Comportamento da corrente atrasada, nos primeiros segundos após cessada a irradiação.	66

Figura 38 - RIC para diferentes campos (intensidades baixas)	67
Figura 39 - RIC para diferentes campos (intensidades altas)	68
Figura 40 - Corrente induzida estacionária inicial..	70
Figura 41 - RIC para diferentes taxas de exposição..	71
Figura 42 - Corrente induzida estacionária em função da taxa de exposição	72
Figura 43 - RIC em função do tempo para diferentes <u>es</u> pessuras da amostra	73
Figura 44 - RIC para diferentes eletrodos.....	74
Figura 45 - RIC para diferentes energias médias da radiação	75
Figura 46 - Corrente induzida com inversão da polari <u>d</u> ade.....	76
Figura 47 - Recuperação da amostra	78
Figura 48 - DRIC em função do tempo para diferentes taxas de exposição	79
Figura 49 - DRIC em função do tempo para diferentes campos aplicados	80
Figura 50 - DRIC em função do tempo para amostras ir <u>r</u> radiadas por tempos diferentes	81

	Pág.
Figura 51 - DRIC em função do tempo, nos primeiros segundos após interrompida a irradiação	82
Figura 52 - Corrente fotônica em função da taxa de exposição	84
Figura 53 - Corrente fotônica em função da espessura da amostra	85
Figura 54 - Corrente fotônica, com a amostra compensadora, em função da taxa de exposição	86
Figura 55 - Corrente fotônica em função da taxa de exposição para diferentes eletrodos.....	87
Figura 56 - Corrente fotônica, em função da taxa de exposição, para amostras de várias espessuras...	88
Figura 57 - Corrente fotônica, em função da espessura da amostra para o Kapton e para o PET.....	89
Figura 58 - Medidas de TSC no Mylar	91
Figura 59 - Medidas de TSC no Kapton	94
Figura 60 - Medidas da RIC no PET - efeito do ar	97
Figura 61 - Medidas da corrente induzida no ar e no vácuo alternadamente	99
Figura 62 - Esquema do modelo de banda utilizado	101
Figura 63 - Ajuste teórico-experimental para a RIC com diferentes taxas de exposições	109
Figura 64 - Ajuste teórico-experimental do RIC para diferentes campos aplicados	110

Figura 65 - Concentração dos portadores "quase-livres" (n), aprisionados nas armadilhas de nível 1 e nível 2	111
Figura 66 - Variação do coeficiente de recombinação em função da taxa de geração de portadores quando a taxa de exposição é aumentada	112
Figura 67 - Ajuste teórico-experimental da RIC em função do tempo para o Kapton, com diferentes campos aplicados	114
Figura 68 - Ajuste teórico-experimental da RIC em função do tempo para o Kapton, com diferentes taxas de exposições	115
Figura 69 - Concentração de portadores "quase-livres" (n) aprisionados nas armadilhas de nível 1 e nível 2	116
Figura 70 - (A) Mesma inversão de polaridade mostrada na Figura 46, em escala linear . (B) Corrente de absorção dielétrica para uma aplicação de tensão de 400 V, sem irradiação	120
Figura 71 - Probabilidade de escape em função do campo, predita pela teoria de Onsager	125
Figura 72 - Taxa de geração de portadores para diferentes campos aplicados (PET)	128
Figura 73 - Taxa de geração de portadores para diferentes campos aplicados (Kapton).....	128

	Pág.
Figura 74 - Corrente induzida estacionária inicial em função do campo elétrico aplicado para o PET e Kapton	131
Figura 75 - Espectro contínuo de energia do raio-x emitido por elétrons de 80 KeV e 40 KeV, incidindo em um alvo de tungstênio	132
Figura 76 - Transmissão de raio β , com um espectro contínuo de energia, em função da espessura do absorvedor	133
Figura 77 - Intensidade de elétrons transmitidos através da amostra em função da espessura desta	134
Figura 78 - RIC em função do tempo para o PET no ar úmido e no vácuo	140
Figura 79 - Curvas teóricas da RIC em função do tempo obtidas pela variação dos valores de N_1 e α (Kapton)	141
Figura 80 - "Switching" para amostras de PET de $3,8\mu\text{m}$ com diferentes taxas de geração de portadores	143
Figura 81 - RIC, em escala linear, para diferentes campos	145
Figura 82 - Evolução temporal da corrente induzida com inversão de polaridade da tensão aplicada, em escala linear	146

VIII

LISTA DE TABELAS

	Pág.
Tabela I - Propriedades do Mylar, tipo C	3
Tabela II - Propriedade de Kapton-tipo H	4
Tabela III - Dose recebida por cada cristal de CaF_2	33
Tabela IV - Corrente de saturação da câmara de ionização para vários valores da corrente do tubo de raio-x	38
Tabela V - Valores dos parâmetros utilizados nos ajustes teórico-experimentais	108
Tabela VI - Parâmetros utilizados no ajuste teórico-experimental do Kapton	115
Tabela VII - Parâmetros obtidos pelo ajuste teórico-experimental, para os dois materiais estudados.	123
Tabela VIII- Taxa de geração de portadores para vários campos elétricos aplicados	127
Tabela IX - Energia média necessária para a criação de um par de portadores em função do campo elétrico aplicado	129
Tabela X - Elétrons/s em função da espessura da amostra	134

RESUMO

Este trabalho apresenta uma extensiva série de resultados experimentais da condutividade induzida por radiação X contínua, durante e após a irradiação, em amostras de PET e Kapton. As medidas foram realizadas variando-se uma série de parâmetros, tais como: o campo elétrico aplicado, a taxa de exposição, a espessura da amostra, o tipo de eletrodo, a energia da radiação e as condições ambiente.

Foram feitas ainda medidas da corrente termo-estimulada em amostras irradiadas e não irradiadas, que permitiram verificar a presença de armadilhas nos materiais. Medidas da corrente fotônica com diferentes eletrodos e espessuras das amostras, constataram a influência do eletrodo no valor dessa corrente. Finalmente um modelo teórico foi desenvolvido, baseado na teoria de balanço dos portadores generalizada, com a inclusão do efeito do campo elétrico na taxa de geração de portadores (efeito Onsager). O ajuste teórico-experimental permitiu a determinação numérica dos principais parâmetros de condução, tais como, mobilidade dos portadores, coeficiente de recombinação e densidade de armadilhas, para os dois materiais estudados.

ABSTRACT

In this work we present extensive results of measurements of the prompt and delayed radiation-induced conductivity of samples of PET and Kapton. Experimental parameters, such as the effective energy of the radiation, the exposure rate, the total dose, the value of the applied electric field, the nature of the electrodes, and the ambient conditions were changed within wide limits.

We also report measurement of thermally stimulated currents for non-irradiated and for irradiated samples which allowed us to investigate the trap-structure of the materials. Measurements of photo-Compton currents with different electrode materials and sample thicknesses gave information about the relation between the nature of the electrodes and the amplitudes of the currents.

Based on the generalized rate theory of radiation-induced conduction we developed a theoretical model which includes the effect of the applied electric field on the carrier generation yield (geminate recombination, Onsager effect). Comparison of experimental and theoretical curves allowed us to determine the values of the main conduction parameters, such as carrier mobility, recombination coefficient, trap densities, for the materials under investigation.

CAPÍTULO I

INTRODUÇÃO

A utilização generalizada de materiais poliméricos em ambientes de intensa radiação como, por exemplo, em reatores nucleares, artefatos espaciais, etc., tem aumentado o interesse nos processos de interação entre a radiação ionizante e materiais isolantes. Uma importante variação, sob o ponto de vista das propriedades elétricas desses materiais, ocorre em sua condutividade. A condutividade induzida por radiação (RIC), nome pelo qual essa variação é frequentemente conhecida, desempenha atualmente um importante papel no estudo das propriedades elétricas dos polímeros. A análise do comportamento da RIC em dielétricos é de fundamental importância para a compreensão da dinâmica das cargas elétricas em tais materiais durante a irradiação.

Neste trabalho foram estudados dois polímeros, o POLIETILENO TEREFTALATO (PET) e o POLI-4,4'-OXIDIFENILENO PIROMELITIMIDA (POLIIMIDA), materiais que apresentam excelente resistência quando utilizados em ambientes sujeitos à radiação elevada.

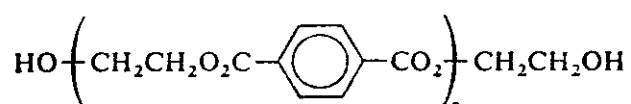
Uma extensiva série de medidas da RIC nos dois materiais foi realizada, no vácuo e a temperatura ambiente, com um período de radiação contínua de até 7 horas. Tais medidas foram ainda complementadas pelos resultados obtidos utilizando o método de corrente termo-estimulada (TSC), os quais permitiram a suposição da existência de armadilhas profundas nos materiais.

1.1. POLIETILENO TEREFTALATO - PET

O filme de PET aqui estudado foi o MYLAR (Du Pont), que é um filme de poliéster ou, mais especificamente, o terefta-

lato de polietileno, obtido pela reação de condensação do etileno glicol com o ácido tereftalático. Suas propriedades excepcionais tornam-no especificamente útil para as indústrias elétricas e eletrônicas, como substituto aos materiais isolantes convencionais, mais pesados e volumosos.

O PET é um polímero que tem uma estrutura linear regular, com o carbono éster ligado diretamente a um anel aromático na espinha dorsal da cadeia molecular. A sua fórmula estrutural é a seguinte:



As propriedades especiais do PET permitem sua utilização em uma série de funções: como embalagem, fitas magnéticas, fitas para cabos elétricos, etc. As excelentes propriedades dielétricas desse filme combinadas a sua alta resistência, flexibilidade e estabilidade hidrolítica, permitem obter-se sistemas isolantes elétricos superiores. É utilizado extensivamente em motores elétricos, capacitores, transformadores, circuitos impressos, revestimento de fios e cabos e em muitas outras aplicações elétricas. Além disso, o PET é mais resistente aos efeitos da radiação que outras fibras não orientadas, apresentando danos desprezíveis a uma dose absorvida de até 6×10^6 Gy (6×10^8 rad) [1]. A tabela I fornece algumas propriedades do Mylar, tipo C, utilizado neste trabalho.

TABELA I
 PROPRIEDADES DO MYLAR, TIPO C

PROPRIEDADES (23 μm)	VALOR TÍPICO. a) (ref. 2)
Resistência máxima à Tensão	25000 psi (25°C)
Densidade	1,395 g/cm ³
Absorção de umidade	menos de 0,8% (imersão por 24h a 23°C)
Ponto de fusão	250°C - 265 °C
Temperatura de utilização	-60° a 150°C
Poder Dielétrico	2,75x10 ⁶ V/cm (25°C e 60 cps)
Constante dielétrica ($\frac{\epsilon}{\epsilon_0}$)	3,0 (25°C, 1MHz)
Resistividade de volume	10 ¹⁸ Ω cm (25°C)
Resistividade superficial	10 ¹⁶ Ω cm ⁻² (23°C, 30% hr)
Resistência à radiação	>10 ⁶ Gy (10 ⁸ rad) b)
Porcentagem de cristalinidade	~40% c)
Temperatura de transição (Tg)	70 °C

a) American Society for Testing and Materials, Philadelphia, Pa. 1968.

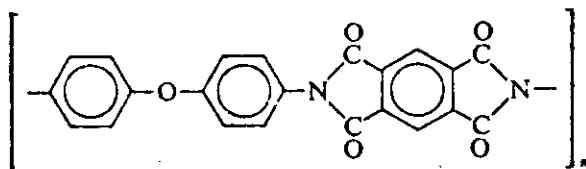
b) valor obtido da ref. 1.

c) valor medido no Laboratório de Polímeros do DEMA-UFSCar.

1.2. POLIIMIDA (POLI-4,4'-OXIDIFENILENE PIROMELITIMIDA)

- KAPTON

O Poliimida por nós utilizado foi o Kapton tipo H (Du Pont), um dos mais úteis membros dos polímeros tipo imida, derivado do eter de 4,4'-diaminodifenil e do dianidrido piromelítico. Sua fórmula estrutural é a seguinte:



Kapton tem sido utilizado em aplicações sujeitas a grandes variações de temperatura, de -267° a 400°C . A 25°C as suas propriedades mecânicas são semelhantes as do Mylar, porém a temperaturas muito elevadas ou muito baixas, as propriedades do Kapton são menos afetadas, principalmente suas propriedades elétricas. Por isso esse material é muito utilizado para revestir fios e cabos, em circuitos impressos, fitas magnéticas, motores, capacitores e transformadores. O Kapton tem sido aplicado na indústria aeroespacial fornecendo uma economia de 50% em volume e 25% em peso dos condutores elétricos. Outras aplicações específicas são: veículos espaciais, células solares, capas de proteção, tanques de estocagem criogênica para gases, etc.

Algumas propriedades do Kapton tipo H são dadas na tabela II.

TABELA II
 PROPRIEDADES DO KAPTON-TIPO H

PROPRIEDADES (25 μm)	VALOR TÍPICO a) (ref. 2)
Resistência máxima à tensão	25000 psi ₃ (25°C)
Densidade	1,42 g/cm ³
Ponto de fusão	$>900^{\circ}\text{C}$
Poder Dielétrico	$2,75 \times 10^6$ V/cm (25°C , 60 cps)
Constante dielétrica ($\frac{\epsilon}{\epsilon_0}$)	3,5 (25°C , 1MHz)
Resistividade de volume	$10^{18} \Omega \text{ cm}$ (25°C)
Resistividade superficial	$10^{16} \Omega \text{ cm}^{-2}$ (25°C , 50% hr)
Resistência à radiação	10^7Gy (10^9rad) b)

a) American Society for Testing and Materials, Philadelphia, Pa-1968.

b) Valor obtido da ref. 1.

1.3. Condução Elétrica em Isolantes Orgânicos

Assumindo, inicialmente, que a estrutura de banda de energia possa ser aplicada em materiais amorfos ou policristalinos, encontramos cinco principais mecanismos de condução através de um filme isolante.

- a) Condução iônica
- b) Condução por elétrons e lacunas
- c) Tunelamento
- d) Emissão Schottky e Efeito Poole-Frenkel
- e) Condução por impurezas

a) Condução iônica. Ocorre principalmente em polímeros que contêm íons (ionomeros), ou grupos capazes de serem ionizados ou naqueles em que materiais iônicos foram adicionados. Em tais materiais a presença de água desempenha um importante papel, podendo atuar como uma fonte de íons ou como uma impureza de alta constante dielétrica. A condução iônica também pode ocorrer devido ao movimento de defeitos na rede sob a influência de um campo elétrico aplicado.

b) Condução por elétrons e lacunas

Em muitos isolantes orgânicos a condução ocorre pelo transporte de elétrons e lacunas existentes ou produzidos no material. A condutividade dessas substâncias é dada por $\sigma = e(\mu_n n + \mu_p p)$, onde e é a carga elementar, μ_n e μ_p são as mobilidades dos elétrons e lacunas, respectivamente e n e p são as densidades de elétrons e lacunas, respectivamente. Normalmente, à temperatura ambiente, a densidade de portadores livres é muito baixa nesses materiais e a condutividade intrínseca (dark conductivity) é bastante reduzida (10^{-20} - $10^{-13} \Omega^{-1} \text{cm}^{-1}$).

Além da condução de portadores devido a condutividade finita do meio, podemos ter ainda transporte de excesso de cargas e difusão de cargas. O primeiro ocorre quando cargas de um sinal são injetadas no dielétrico pelo eletrodo, e o segundo quando existe um gradiente na concentração de cargas livres ao longo do material.

Como exemplo podemos considerar o caso em que um contato metálico injetante é colocado em um dos lados de um isolante. Elétrons são transferidos do metal para a banda de condução do isolante, formando assim uma camada de carga espacial próxima do eletrodo. Sob a ação de um campo elétrico externo fluirá no material uma densidade de corrente de condução (drift), dada por $\rho\mu_0 E$, onde ρ é a densidade média de carga livre injetada, μ_0 a mobilidade dos elétrons livres e E a intensidade média do campo elétrico no meio. Esse é um tipo de transporte de excesso de cargas e gerará uma corrente limitada por carga espacial. Próximo ao eletrodo injetante, onde o campo é nulo, teremos também a contribuição de uma densidade de corrente de difusão, dada por $D \frac{\delta\rho}{\delta x}$, onde D é o coeficiente de difusão relativo aos portadores livres e ρ a densidade desses portadores. Um estudo do transporte de excesso de cargas e corrente limitada por carga espacial, para o caso de um dielétrico irradiado por um feixe de elétrons não penetrantes, foi feito por Gross e Nunes [3,4]. Nesses trabalhos é demonstrado que o feixe de elétrons pode funcionar como um "eletrodo virtual" injetante na região não irradiada do dielétrico.

Se uma substância isolante, sanduichada entre dois eletrodos, for uniformemente irradiada em todo seu volume, elétrons e lacunas serão produzidos igualmente distribuídos no material. Este permanece eletricamente neutro e o efeito de carga

espacial não ocorre. Surgirá no material uma condutividade induzida pela radiação (RIC), normalmente muito maior que a sua condutividade intrínseca (dark), e que depende da dose de radiação recebida. Sob a ação de um campo elétrico será produzida no material uma corrente elétrica dada por σE , onde σ é a área irradiada, σ a RIC e E a intensidade do campo aplicado. A baixas intensidades do campo aplicado, a relação entre essa corrente e o campo obedece a lei de Ohm.

A presença de armadilhas profundas de portadores no isolante, um inevitável atributo dos dielétricos reais, geralmente resulta em uma considerável redução na magnitude da corrente, desde que essas armadilhas, inicialmente vazias, podem capturar e imobilizar portadores livres. Por outro lado, a existência de armadilhas rasas diminui sensivelmente a mobilidade livre (μ_0) dos portadores. Neste caso introduz-se a mobilidade modulada por armadilhas rasas (mobilidade efetiva), definida como $\mu = \mu_0 \frac{n}{m}$, onde n é a densidade de portadores livres e m a densidade total de portadores, livres e capturados. O valor da relação $\theta = \frac{n}{m}$, normalmente se encontra entre 10^{-10} - 10^{-6} para muitos polímeros isolantes [45].

Como a corrente produzida em um dielétrico depende fortemente do comportamento do eletrodo, faremos aqui algumas considerações. Eletrodo produzido pela deposição à vácuo de um metal, é um eletrodo bloqueante a baixa e intermediária intensidade do campo aplicado. Ele impede a transferência de cargas do metal para o dielétrico, porém aceita portadores deste. Portanto, se em um dielétrico, com eletrodos bloqueantes, forem produzidos portadores de ambos sinais, com mobilidades significativamente diferentes, ocorre uma polarização no eletrodo de sinal igual ao dos portadores mais móveis. Isto ocorre porque a tensão aplicada ao dielétrico retira dele os portadores de maior mobilidade, e o eletro

do sendo bloqueante impede a reposição desses portadores.

Porém, sob radiação eletrodos bloqueantes podem tornar-se ôhmicos. Deste modo, nas medidas de corrente induzida pela radiação pode-se considerar os eletrodos como ôhmicos, o que leva a uma neutralidade de carga na amostra não havendo formação de carga espacial.

c) Tunelamento. Este modelo assume que um elétron em um orbital molecular - π de uma molécula, quando excitado para um nível de energia mais elevado, pode tunelar através de uma barreira de potencial para um estado não ocupado de uma molécula vizinha, com conservação de energia no processo. O tunelamento pode ocorrer também nas interfaces entre o condutor e o isolante, no caso de uma estrutura metal-isolador-metal com uma tensão aplicada. O principal problema neste mecanismo de condução é calcular a probabilidade de transmissão de um elétron através de uma barreira de potencial utilizando a mecânica ondulatória.

d) Emissão Schottky e Efeito Poole-Frenkel. Como resultado do alto campo elétrico obtido através de um fino filme isolante, a emissão Schottky de elétrons pode ocorrer do contato de metal, com potencial negativo, para a banda de condução do isolante. Este mecanismo corresponde a ativação térmica de elétrons sobre a barreira da interface metal-isolante, com o efeito adicional da diminuição da altura dessa barreira causada pelo campo aplicado. Efeito Poole-Frenkel também é baseado na diminuição da altura da barreira de potencial devido a um campo elétrico aplicado. Contudo, neste caso, a barreira em questão é aquela para excitação térmica de elétrons, aprisionados em armadilha, para a banda de condução do isolante.

e) Condução por impurezas. Um elétron ocupando um nível doador isolado em um dielétrico impuro tem uma função de onda localizada ao redor da impureza e uma energia levemente menor que a mínima energia da banda de condução. Como existe uma pequena, porém finita, superposição da função de onda do elétron de um doador com os doadores vizinhos, um processo de condução é possível em que o elétron se move entre os centros, sem ser ativado para a banda de condução. A condição necessária para a condução por impureza é a presença de centros doadores e aceitadores. Os aceitadores removem um número de elétrons dos doadores, permitindo o movimento de elétrons de um doador ocupado para um livre.

1.4. Unidades de Radiação

Com a finalidade de tornar significativo os cálculos envolvendo radiação, definiremos algumas unidades em termos das quais campos e efeitos de radiação possam ser expressos quantitativamente. O sistema de unidades aqui descrito, foi promulgado por um órgão internacional, a Comissão Internacional em Unidades e Medidas Radiológicas (ICRU), e as definições a seguir são as recomendadas por ele, desde 1971, e têm sido adotadas em vários países.

Exposição. É um termo utilizado para descrever campo de radiação gama (ou X) no ar, e é definido como a relação entre a soma das cargas elétricas de todos os íons produzidos no ar quando todos os elétrons liberados pelos fótons, em um dado volume de ar, são completamente freados, pela massa desse volume. A unidade de exposição é o Roentgen (R) definido como:

$$1 \text{ R} = 2,58 \times 10^{-4} \text{ C/Kg} \quad (1)$$

que é equivalente a produção de uma unidade eletrostática de carga ($3,33 \times 10^{-10} \text{C}$) de um sinal devido a interação da radiação em 1 cm^3 de ar a 1 atm e 0°C . É importante notar que o termo exposição só deve ser aplicado para radiação γ ou X no ar. Contudo, frequentemente torna-se conveniente se referir ao valor da exposição ou taxa de exposição (R/s) em um ponto interno de um material diferente do ar. Neste caso, o valor deve ser interpretado como o valor que seria determinado para uma pequena quantidade de ar colocado no ponto de interesse.

Dose absorvida. É definida como a energia cedida pela radiação a uma dada substância, por unidade de massa da substância. A unidade de dose absorvida é o rad (radiation absorbed dose), que corresponde a 100 erg/g .

$$1 \text{ rad} = 100 \text{ erg/g} \quad (2)$$

No sistema MKS, teremos:

$$1 \text{ rad} = 100 \text{ erg/g} = 0,01 \text{ J/Kg} = 0,01 \text{ Gy (Gray)}$$

$$1 \text{ rad} = 10^{-2} \text{ Gy} \quad (3)$$

A taxa de dose absorvida por uma substância (\dot{D}) que se encontra em um local em que a taxa de exposição é \dot{X} , pode ser encontrada pela relação:

$$\dot{D} = 0,874 \frac{\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_{\text{sub}}}{\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_{\text{ar}}} \dot{X} \quad (4)$$

onde $\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_{\text{sub}}$ e $\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_{\text{ar}}$ são, respectivamente, os coeficientes de absorção em massa da substância e do ar para a radiação em questão. A relação entre \dot{D} e \dot{X} depende, portanto, do coeficiente de absorção em massa do material, que por sua vez depende do número atômico dos elementos que o compõe e da energia da radiação. Pa

ra substâncias de baixo número atômico podemos considerar, aproximadamente, a relação:

$$\dot{D} = 0,9 \dot{X} \quad (5)$$

O cálculo da taxa de geração de portadores (g) em um dado material, isto é, o número de portadores livres gerados pela radiação por unidade de volume e de tempo, pode ser feito a partir da dose absorvida pelo material.

Da relação (2), temos:

$$1 \text{ rad} = 100 \text{ erg/g} = 6,25 \times 10^{13} \text{ eV/g}$$

Para um material de densidade ρ (g/cm³), energia média de ionização w (eV) e que recebe uma taxa de dose absorvida \dot{D} (rad/s), temos:

$$g = 6,25 \times 10^{13} \frac{\rho}{w} \dot{D} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1} \quad (6)$$

1.5. Efeitos da Radiação Ionizante em Isolantes Amorfos

Em doses relativamente baixas ($\leq 10^6$ rad), o principal efeito da radiação ionizante em isolantes poliméricos é a criação de pares elétron-lacuna, alguns dos quais se dissociam tornando-se metaestáveis capturados em certas armadilhas já existentes no material. Estas armadilhas podem ser vacâncias intersticiais, íons multivalentes, defeitos estruturais, etc. Altas doses de radiações de suficiente alta energia (> 200 KeV), podem criar novas armadilhas, particularmente vacâncias intersticiais.

Os principais processos que ocorrem na interação da radiação com a matéria são: excitação, ionização e deslocamento. Os dois primeiros são os responsáveis pelos danos aos materiais orgânicos através de reações químicas do íon excitado e/ou dos radi-

cais livres. Deslocamento físico de elétrons ou de átomos, levando a disruptura da rede cristalina do material, é um processo que predomina em materiais metálicos ou inorgânicos. Em polímeros, no estado sólido, a ionização ou excitação das moléculas do material formam radicais livres. Um número de reações químicas pode ocorrer, as mais importantes levando a ligações cruzadas (crosslinking) e cisões. No primeiro caso longas cadeias podem ser produzidas, formando uma rígida, tridimensional rede. Quando as cisões predominam, as longas cadeias podem ser quebradas em pequenas moléculas produzindo um material mais fraco.

Geralmente os danos causados pela radiação dependem das condições ambientais (atmosfera, temperatura, umidade, etc.). Na maioria dos polímeros a radiação acelera significativamente a degradação oxidativa. Alguns polímeros apresentam danos a radiação maiores em atmosfera de nitrogênio ou no vácuo que no ar. Esse resultado pode significar que para esses polímeros as reações oxidativas podem inibir outras reações mais danosas. Todos esses processos podem alterar significativamente as propriedades elétricas e mecânicas dos materiais.

No caso particular dos polímeros aqui utilizados, uma desprezível degradação ocorre para doses abaixo de 4×10^7 rad [2]. Para o PET, 50% de redução é observado a 3×10^8 rad e 50% de diminuição da resistência a tensão após 6×10^8 rad. O mecanismo de reação dominante é a cisão. Abaixo de 200°C não se observa nenhuma aceleração nos danos de irradiação com a temperatura. Desgaseificação durante a irradiação é mínima, e principalmente de H_2 .

Um efeito importante da radiação em polímeros, e que está diretamente ligado a este trabalho, é o da indução de uma condutividade elétrica no material. A radiação ao atravessar uma substância produz elétrons secundários de alta energia. Esses elétrons sofrem várias interações no material até perderem toda sua

energia. Nesse processo outros elétrons, de menor energia, são criados, aumentando deste modo a concentração de portadores livres no material, o que resulta em um aumento de sua condutividade elétrica. O valor da energia necessária para criar um portador livre em polímeros tem gerado muita controvérsia entre diferentes autores, estando esse valor entre várias dezenas de elétron-volts e algumas unidades de quiloelétron-volts [5,6] .

1.6. Corrente Fotônica

Quando a radiação γ (ou X) de baixa energia (<200KeV) atravessa a matéria, o processo de absorção dominante é o efeito fotoelétrico. Nesse processo a radiação cede quase toda sua energia ao elétron que é ejetado com uma energia igual a diferença entre a energia do fóton incidente e a sua energia de ligação. A probabilidade absoluta de ocorrer o efeito fotoelétrico é descrita pela secção de choque atômica σ_a ($\text{cm}^2/\text{átomo}$). Estimativas teóricas do valor de σ_a [7] mostram a sua forte dependência com o número atômico do material absorvedor. Esta dependência, determinada empiricamente, foi encontrada como sendo $\sigma_a \approx \text{const } Z^n$, para valores fixos da energia da radiação. O expoente n aumenta do valor 4 até 4,6 quando a energia da radiação aumenta de 0,1 para 3 MeV, conforme ilustra a Figura 1 (da ref. 8).

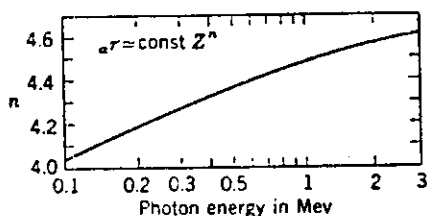


Figura 1. Variação do expoente n com a energia de radiação.

A distribuição direcional dos elétrons ejetados pelo efeito fotoelétrico também depende da energia da radiação. Para baixas energias, os fotoelétrons tendem a ser ejetados na direção do vetor elétrico da radiação, isto é, na direção perpendicular a da sua incidência. Radiação de mais alta energia ejeta fotoelétrons preferencialmente na direção de sua incidência. Logicamente, a energia cinética dos fotoelétrons é a mesma para qualquer direção de emissão. A Figura 2 mostra valores teóricos da distribuição direcional dos fotoelétrons, por unidade de ângulo sólido, calculados por Davisson [7] para várias energias dos fótons.

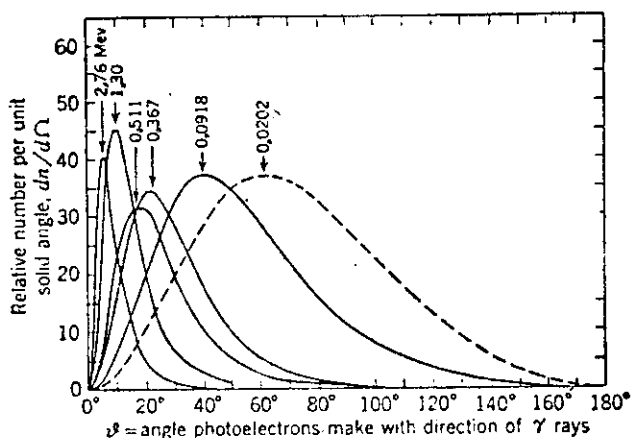


Figura 2. Distribuição direcional dos fotoelétrons por unidade de ângulo sólido, para as energias marcadas. As curvas sólidas são calculadas da fórmula relativística de Sauter [9]; a curva em segmento descontínuo, da expressão não relativística de Fischer [10] (Figura obtida da ref. 8).

Quando um feixe de raios-x atinge uma amostra, os elétrons ejetados por efeito fotoelétrico na direção de incidência da radiação ocasionam o aparecimento de um fluxo de elétrons nessa direção, dando origem a uma corrente, denominada corrente fotônica [11]. Surge, portanto, no material uma corrente positiva, sempre de direção oposta a da incidência da radiação. A intensidade dessa corrente é medida com a amostra em curto, e nas medidas da RIC, os valores obtidos devem ser corrigidos somando-se ou sub-

traindo-se o valor da fotônica, dependendo da polaridade da tensão aplicada à amostra.

1.7. Trabalhos Anteriores

Os fundamentos teóricos para a interpretação da RIC em dielétricos foram muito bem descritos por Rose [12], Fowler [13] e Bube [14]. Um resumo de alguns resultados obtidos por trabalhos experimentais, que investigaram o efeito da radiação ionizante na condutividade do PET, será dado a seguir.

O mais conhecido trabalho nessa área foi desenvolvido por Fowler [13] em 1956. Ele investigou a condutividade elétrica induzida por raio-x em vários materiais isolantes, entre eles o PET, interpretando os resultados por uma analogia com o modelo de bandas de energia, baseado na condução de elétrons livres, com a inclusão de distribuições de níveis de armadilhas para esses portadores. Entre os importantes resultados obtidos por Fowler, podemos citar a relação entre a corrente induzida e a taxa de exposição, a qual segue uma lei exponencial do tipo $i \propto X^{\Delta}$, onde o valor de Δ é uma característica do material, encontrando-se entre 0,5 e 1,0, dependendo do modo como as armadilhas se distribuem no material. Porém o tempo de irradiação usado por esse pesquisador foi insuficiente, pelo menos para o PET, para que a RIC estacionária final fosse atingida, e todo estudo baseou-se na RIC estacionária inicial, que para o PET, como veremos, tem uma duração de apenas poucos minutos. Trabalhos posteriores [15 - 22] utilizaram radiação pulsada, feixe de elétrons ou raio-x, com duração de alguns nanosegundos ou períodos muito pequenos de irradiação. Em 1978, Maeda et al [23], irradiando amostras de PET de 6 μ m com raios γ provenientes de uma fonte de Co^{60} , e com campos

elétricos de 5×10^5 até $1,5 \times 10^6$ V/cm, encontraram que em todos os casos a corrente induzida alcançava um estado estacionário inicial, logo após iniciada a irradiação, que eles denominaram de corrente primária. Quando a intensidade do campo elétrico usada era de 5×10^5 V/cm, a corrente induzida logo decrescia monotonicamente com o tempo. Para campo de 10^6 V/cm, a corrente decrescia por cerca de 10 minutos, porém novamente subia levemente até atingir um valor de equilíbrio. Com $1,5 \times 10^6$ V/cm, a corrente induzida não decrescia, porém monotonicamente aumentava até atingir um valor estável. A variação temporal da corrente induzida encontrada por Maeda, para os três valores dos campos, pode ser vista na Figura 3.

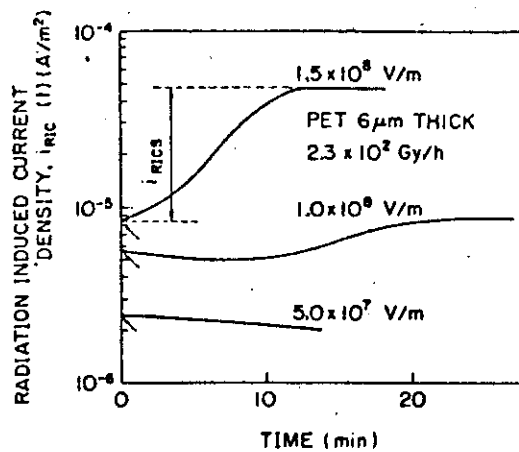


Figura 3. Densidade de corrente induzida em função do tempo, com diferentes campos elétricos (figura obtida da referência 23).

O aumento da corrente induzida para valores elevados da intensidade do campo foi interpretado pelos autores como sendo devido a elevação do campo elétrico próximo a interface metal-isolador, causada pelo aprisionamento de cargas de um sinal em armadilhas próximas a essa interface, e que causaria a injeção de portadores pelo eletrodo.

Em 1980, Hughes [24] irradiando amostras de PET de 3,8 μm com raio-x, com um campo elétrico aplicado de $1,6 \times 10^6 \text{V/cm}$, obteve um efeito semelhante ao observado por Maeda. A corrente induzida apresentava uma elevação alguns minutos após iniciada a irradiação. Esse resultado foi interpretado por Hughes pelo modelo de "Switching", cuja explicação é semelhante a dada por Maeda. Convém salientar que mesmo nos dois trabalhos citados, os tempos de irradiação foram insuficientes para que a corrente induzida estacionária final fosse atingida.

Outros trabalhos envolvendo a variação da RIC no PET foram posteriormente realizados [25-31], porém todos utilizando radiação pulsada. Entre outros trabalhos é importante salientar os realizados por Kurtz e Arnold [32-33] que, alterando as propriedades de filmes de PET por dopagem (dopador-TNF), concluíram que a mobilidade dos elétrons nesse material é 100 vezes superior a mobilidade das lacunas. Esse resultado torna elétrons os portadores de carga dominante no processo de fotogeração, pelo menos a temperaturas não muito elevadas (abaixo de 180°C). Resultado semelhante a esse, que atribui predominância de portadores negativos na condução do PET, já havia sido encontrado por Martin e Hirsch [17], bombardeando amostras de 12,5 μm com um feixe pulsado de elétrons de 4-8 KeV e observando a carga induzida em uma fração da espessura da amostra.

Utilizando a técnica da corrente termo-estimulada (TSC), Kurtz e Arnold [34] revelaram a existência no PET de uma larga distribuição de armadilhas rasas. As amostras foram irradiadas por raio-x a -150°C e os fotoportadores liberados das armadilhas no intervalo de temperatura de -150°C a 50°C .

Até o presente, não temos conhecimento de nenhum trabalho experimental do estudo da RIC em Kapton com radiação contínua. Recentemente, Parker [35] desenvolveu um modelo teórico do

transporte de cargas injetadas por radiação nesse material. Ele considerou uma deposição de carga em excesso pelo feixe, na região irradiada, bem como o transporte de cargas por difusão e condução. Nesse trabalho uma amostra de $6,4 \mu\text{m}$ de espessura e polarizada foi considerada como irradiada por um feixe de elétrons de 28 KeV.

1.8. Validade da Teoria de Bandas de Energia para Substâncias Amorfas

Assumir que o conceito de banda de energia pode ser aplicado diretamente para qualquer material isolante não é uma suposição óbvia, desde que, finos filmes de materiais poliméricos são frequentemente amorfos ou policristalinos, e a teoria de banda está normalmente associada com o campo elétrico periódico da rede. Um critério para a aplicação da teoria de banda vem do estudo de sólidos moleculares orgânicos. Elétrons se movendo ao longo de uma cadeia polimérica, em uma banda de energia, são espalhados pela rede com um tempo de espalhamento elétron-rede τ . Este valor nos fornece uma medida de como fortemente o elétron interage com as vibrações da rede, ou fonons. Se o elétron permanece na banda de energia de largura w , o princípio da incerteza requer que $w\tau > \hbar$. Da definição de mobilidade ($\mu = \frac{e}{m^*} \tau$), concluimos que para o modelo de bandas ter sentido é necessário que $\mu > \frac{\hbar e}{m^* w}$, onde m^* é a massa efetiva do elétron. Isto significa que existe uma mobilidade mínima requerida para que a teoria de banda possa ser aplicada. Infelizmente, a maioria dos isolantes poliméricos possui mobilidade menor que a exigida pela relação acima.

Contudo, experimentos tem mostrado [36-38] que o es-

pectro de energia de um semiconductor varia pouco na transição da fase sólida para líquida, contanto que a ordem do número de coordenação não varie. Isto significa que a perda de periodicidade da rede tem pouca influência na estrutura de banda, e pode ser aplicada se as bandas de energia forem consideradas como resultado da divisão dos níveis de energia discretos dos átomos, quando eles se aproximam uns dos outros. Neste caso, o espectro de energia deve ser determinado pela distância média entre os átomos, independente dessas distâncias serem constantes ou variarem levemente, como no caso de substâncias amorfas. Esse fato sugere que a estrutura de banda de energia é devido, não a periodicidade da rede, mas às efetivas ligações químicas entre os átomos. Gubanov [39] mostrou teoricamente que o espectro de energia de líquidos e semicondutores amorfos, consiste das mesmas bandas que para cristais, porém a desordem no agrupamento atômico causa um alargamento das bandas permitidas assim como uma leve difusão das bordas das bandas. O modelo proposto por Gubanov [40] e Banyai [41], que descreve de maneira realística a condução em sólidos amorfos, foi desenvolvido teoricamente por Mott [42]. Sugeriu Mott que as características essenciais da teoria de banda pode ser aplicada em sólidos amorfos, desde que duas modificações sejam observadas: a) Para estrutura desordenada, o "gap" é trocado por um "pseudo gap" ou um mínimo na densidade de estados eletrônicos. b) Estados eletrônicos localizados no "pseudo gap", devem ser fortemente localizados, de tal forma que não contribuam para a condutividade, exceto através de processos como excitação térmica. Neste sentido, o "pseudo gap" comporta-se do mesmo modo que um verdadeiro "gap" em relação a condução elétrica. Mott demonstrou ainda que a densidade de estados eletrônicos é um conceito que permanece válido para materiais não cristalinos e sua forma pode ser determinada por vários métodos experimentais.

Várias formas já foram propostas para a densidade de estados em semicondutores amorfos, algumas delas são apresentadas na Figura 4.

O modelo de banda, aplicado para substâncias não cristalinas, tem até agora servido para explicar vários fenômenos de transporte importantes, como a anisotropia da condutividade e da mobilidade, a dependência da mobilidade com a temperatura, o efeito Hall anômalo, etc. Para o caso particular do estudo da RIC em substâncias amorfas ou policristalinas, existem vários modelos baseados na teoria de bandas [18, 30, 31, 35, 44, - 51]. Devemos lembrar que um sólido amorfo é aquele em que a periodicidade tridimensional é ausente, porém o agrupamento dos átomos não é inteiramente aleatório, como para os gases. As forças de ligação entre os átomos são muito semelhantes àquelas existentes em um cristal, ainda que mais fracas. Além disso, as longas moléculas poliméricas podem ser consideradas como uma rede linear, e as propriedades eletrônicas desses materiais podem ser compreendidas em termos da teoria de banda, logicamente sujeita a algumas limitações.

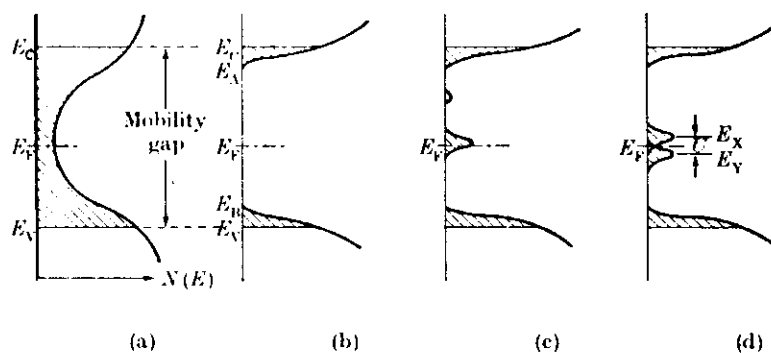


Figura 4. Várias formas propostas para a densidade de estados em semicondutores amorfos. Estados localizados são mostrados hachurados. (a) Sobreposição das extremidades das bandas de condução e de valência, como proposto por Cohen et al (1969), o modelo CFO; (b) Um "gap" real na densidade de estados, apropriado para uma contínua rede aleatória sem defeitos; (c) igual a (b) mas com uma parcialmente compensada banda de níveis de defeitos; (d) igual a (b) mas com sobreposição das bandas dos níveis doador (E_Y) e aceitador (E_X), surgidos do mesmo defeito (figura obtida da referência 43).

1.9. Transporte Dispersivo em Materiais Poliméricos

Como mencionamos no ítem anterior, existem limitações na aplicação do modelo de banda de energia para o transporte elétrico em materiais onde a mobilidade dos portadores é muito baixa. Muitas vezes o modelo de transporte dispersivo [53-55] pode ser mais conveniente. Nesse modelo é considerada a existência de estados localizados, onde os elétrons podem permanecer algum tempo até saltarem de um para outro estado. O número de salto e a duração de tempo em que permanece em cada estado são diferentes para cada portador. O transporte de portadores ocorre através de saltos (hopping) de uma molécula para outra. A distribuição temporal $\psi(t)$ (função distribuição de tempo de espera) que governa esses saltos é proporcional a $t^{-(1+\alpha)}$, onde α ($0 < \alpha < 1$) é um parâmetro que descreve a dispersão e depende do mecanismo dos saltos e da distribuição e profundidade energética dos estados localizados.

Desprezando-se efeitos de carga espacial, preenchimento total das armadilhas (trap filling) e recombinação, pode-se estender as equações do transporte dispersivo para descrever a corrente induzida por uma excitação contínua no tempo e uniforme em todo o material. Como resultado, obtêm-se para a densidade de corrente:

$$J(t) \propto t^\alpha \left[1 - \frac{1}{3} \left(\frac{t}{T} \right)^\alpha \right] \quad \text{para } t < T$$
$$J(t) \propto T^\alpha \left[1 - \frac{1}{3} \left(\frac{T}{t} \right)^\alpha \right] \quad \text{para } t > T$$

(7)

onde T é o tempo de trânsito para o centróide da distribuição de portadores. Destas equações pode-se obter que, para radiação con

tínua, $J(t) = t^\alpha$, para $t \ll T$, e $J(t)$ aumenta levemente até atingir um valor constante, para $t \gg T$.

Uma interpretação física do transporte dispersivo em meios desordenados foi muito bem dada por Tiedje e Rose [54]. Ferreira e Carrano [56] mostraram que, em condições isotérmicas, existe uma equivalência entre o transporte dispersivo (Hopping) e o transporte via estados extendidos (Banda de condução e de valência) com armadilhas (estados localizados). A equivalência matemática entre esses dois processos de condução foi mostrada analiticamente por Schmidlin [57] e Noolandi [79]. Portanto, ainda que fisicamente distintos, os dois processos são descritos pela mesma equação. Isto significa dizer que podemos encontrar para cada distribuição particular de armadilhas uma equivalente função de distribuição de tempo de espera.

1.10. Teoria de Balanço dos Portadores

No ítem 1.7 deste capítulo, vimos que frequentemente as teorias desenvolvidas para explicar a RIC assumem que a condutividade induzida atinge seu valor constante após alguns minutos de irradiação. Porém, como já havia sido observado por Fowler [13] e posteriormente por Gross et al [58], o tempo de irradiação necessário para que a RIC estacionária seja atingida pode ser da ordem de horas. A teoria mais apropriada para uma análise do transiente apresentado pela RIC antes de atingir seu estado estacionário, é a desenvolvida por Weingart et al [18] e Lee et al [60]. Esta teoria é baseada no convencional modelo de bandas para isolantes, e assume condução unipolar de elétrons enquanto lacunas são aprisionadas no local de origem, fun

cionando como centros de recombinação [74]. Os portadores livres podem se recombinar ou serem aprisionados em armadilhas energeticamente profundas. Recombinação só ocorre entre portadores livres e aprisionados de sinais opostos. Um esquema do modelo de banda utilizado nessa teoria é mostrado na Figura 5.

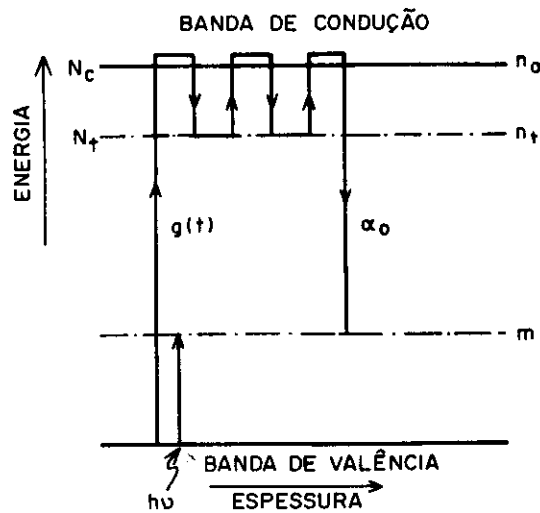


Figura 5. Modelo de banda de energia usado nos trabalhos de Weingart et al [18] e Lee et al [60].

A equação que descreve a variação dos portadores livres com o tempo é:

$$\frac{dn_0}{dt} = g(t) + K_1^* n_t (N_c - n_0) - K_1 n_0 (N_t - n_t) - \alpha_0 n_0 (n_0 + n_t) \quad (7)$$

onde n_0 é a densidade de portadores livres, t o tempo, $g(t)$ a taxa de geração de pares elétron-lacuna, N_c a densidade total de estados na banda de condução, N_t a densidade total de estados localizados (armadilhas), n_t a densidade de portadores aprisionados, α_0 o coeficiente de recombinação e K_1 e K_1^* os coeficientes de captura e de escape das armadilhas, respectivamente.

O material irradiado é assumido como eletricamente neutro.

tro, deste modo a densidade de lacunas aprisionadas é $n_0 + n_t$. A segunda equação descreve o balanço de portadores aprisionados.

$$\frac{dn_t}{dt} = K_1 n_0 (N_t - n_t) - K_1^* n_t (N_c - n_0) \quad (8)$$

Completando as equações acima, temos a equação de corrente, dada por

$$I = a \mu_0 n_0 e E \quad (9)$$

onde I é a corrente, a a área da amostra, μ_0 a mobilidade livre dos portadores, e a carga elementar e E o campo elétrico aplicado. Esta equação assume que os eletrodos são neutros (ou ôhmicos) mesmo com o campo aplicado; isto significa que a região próxima dos eletrodos não acumula carga. Esta hipótese torna o campo elétrico homogêneo em todo material, não havendo transporte de carga em excesso.

As equações (7) e (8) foram resolvidas supondo que $g(t)$ é dado por uma distribuição Gaussiana no tempo, para o caso onde o dielétrico foi irradiado com pulsos de 40 nseg (FWHM) [18]. A solução foi dada para tempos abaixo de 200 nseg.

Como podemos observar, a teoria de Weingart-Lee considera um único nível de armadilha, o que foi adequado para a descrição dos efeitos de curta duração onde só se observa, essencialmente, a transição da condução livre para a modulada por armadilha.

Posteriormente essa teoria generalizada foi aplicada por Gross et al [47] para explicar os resultados experimentais obtidos na medida da RIC, com radiação contínua, no Teflon-FEP. Nessa generalização, a teoria foi complementada com a introdução de armadilhas rasas e, em consequência, da mobilidade modulada

por armadilhas. Além disso foi introduzido também o coeficiente de recombinação modulado por armadilhas. Com essas alterações foi possível obter uma comparação qualitativa entre os resultados experimentais e os previstos pela teoria [58].

CAPÍTULO II

DETALHES EXPERIMENTAIS

2.1. Amostras

As amostras estudadas foram cortadas de filmes comerciais de PET (Mylar, Tipo C) e Kapton (Tipo H), ambos produzidos pela Du Pont de Nemours & Co. Tinham a forma circular, com diâmetro de 8 cm e espessura que variou de 6 até 75 μm . Os eletrodos, feitos de metal evaporado à vácuo ($\sim 0,1\mu\text{m}$), situavam-se em uma área central da amostra, de forma circular com 4 cm de diâmetro, e em ambos os lados da amostra. Em um dos lados da amostra foi evaporado também um anel de guarda, com 6 cm de diâmetro interno e 6,6 cm de diâmetro externo. O metal utilizado como eletrodo foi o alumínio em quase todas as medidas porém o ouro também foi utilizado na verificação da influência exercida pelo eletrodo. Todas as medidas foram realizadas com amostras não irradiadas (virgens), já que, como veremos, a recuperação das amostras à temperatura ambiente é um processo muito lento, podendo atingir vários dias.

2.2. Sistemas de Medidas

Na medida da corrente induzida por radiação, o sistema utilizado está esquematizado na Figura 6. A amostra foi pressionada entre dois filmes, um de Kapton com 75 μm de espessura, colocado sobre a amostra, e outro, do mesmo material e espessura da amostra, colocado sob ela. O primeiro, com eletrodo evaporado só em sua face superior e que permaneceu aterrado, permiti-

CROSS SECTION OF THE APPARATUS

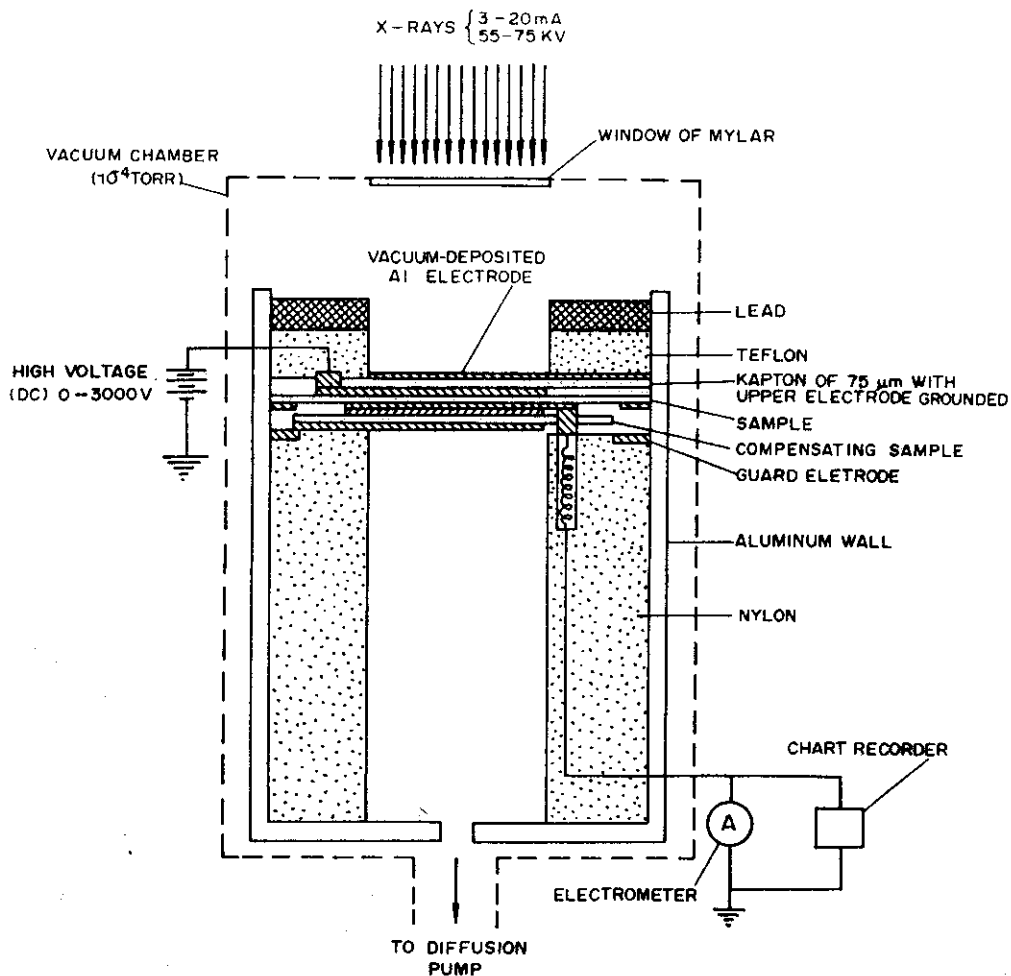


Figura 6. Esquema do arranjo utilizado nas medidas da RIC (da referência 84).

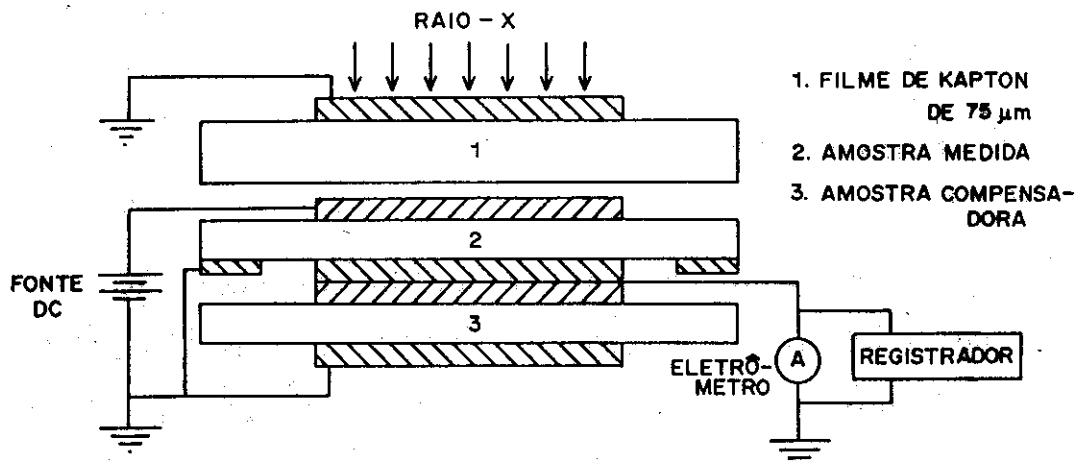


Figura 7. Esquema detalhado do arranjo utilizado.

tiu um fluxo contínuo de carga na amostra durante a irradiação, impedindo que a amostra se carregasse devido a saída de elétrons desta pela corrente fotônica [11]. O segundo, colocado sob a amostra, tinha eletrodo evaporado nas duas faces, sendo que o da face superior estava conectado ao eletrômetro, juntamente com o eletrodo inferior da amostra, e o eletrodo da face inferior permaneceu aterrado. Este filme, denominado "amostra compensadora", teve por objetivo diminuir a corrente fotônica que, como vimos no Capítulo I, surge na amostra irradiada e deve ser subtraída do valor da corrente induzida. Os eletrodos externos dos dois filmes que sanduicharam a amostra, aterrados, serviram também como uma blindagem eletrostática.

Um esquema detalhado do arranjo descrito pode ser visto na Figura 7.

Esse conjunto de filmes se apoiou em uma peça cilíndrica ôca feita de nylon, que permitiu manter uma certa distância entre os filmes irradiados e o fundo do sistema, evitando-se que elétrons retroespalhados pelo sistema atingissem a amostra. No interior dessa peça passou o contato que conectou o eletrodo inferior da amostra ao eletrômetro.

Sobre os três filmes, pressionando-os contra o cilindro de nylon, foi colocada outra peça, também cilíndrica ôca, de teflon, no interior da qual passou o contato elétrico que conectou o eletrodo superior da amostra à fonte de tensão. Sobre todo esse conjunto, foi colocado um anel de chumbo de 8 mm de espessura, que serviu para colimar o feixe de raio-x, permitindo que só a área da amostra com contato fosse atingida pela radiação. Todo sistema descrito foi ainda mantido firmemente preso no interior de um cilindro ôco de alumínio, de modo a torná-lo compacto e rígido. Todos os conectores utilizados foram do tipo UHF e os cabos de ligação coaxiais.

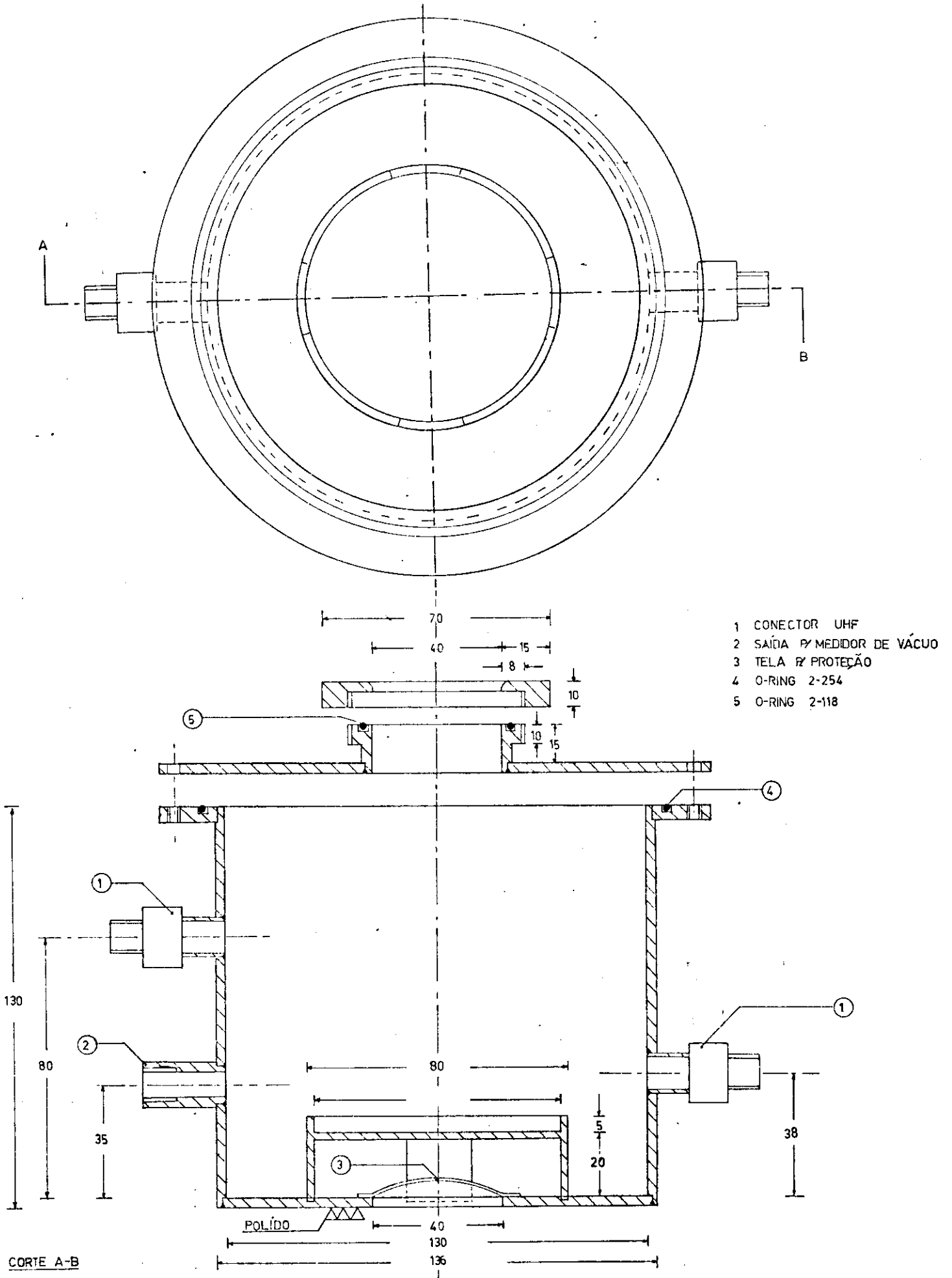


Figura 8. Recipiente utilizado para a realização do vácuo.

O arranjo foi mantido no interior de um recipiente vedado que permitiu a realização de vácuo da ordem de 10^{-4} Torr, e que está esquematizado na Figura 8. O sistema de vácuo utilizado está esquematizado na Figura 9.

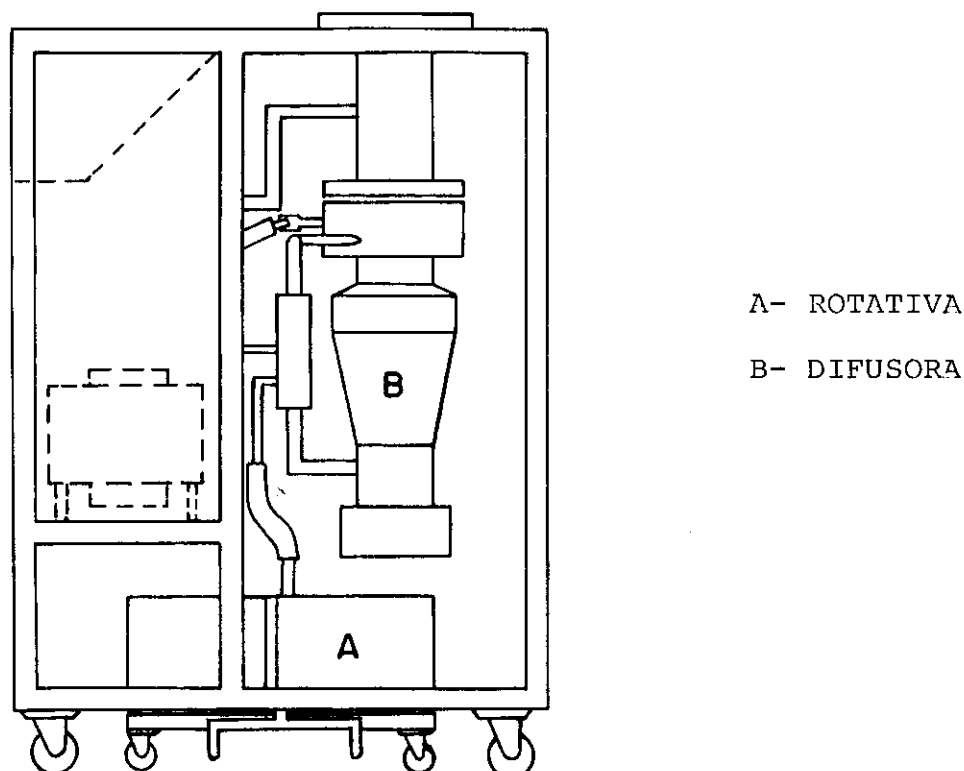


Figura 9. Sistema de vácuo

A radiação penetrou no recipiente através de uma janela de Mylar de $50 \mu\text{m}$ de espessura, e que suportou muito bem a pressão exercida pela atmosfera. Entre o tubo de raio-x e a janela do recipiente, foi adaptado um dispositivo móvel, de chumbo, que permitiu a incidência e interrupção da irradiação no material de modo bastante rápido.

Para as medidas de TSC, em circuito fechado, foi utilizado o sistema esquematizado na Figura 10.

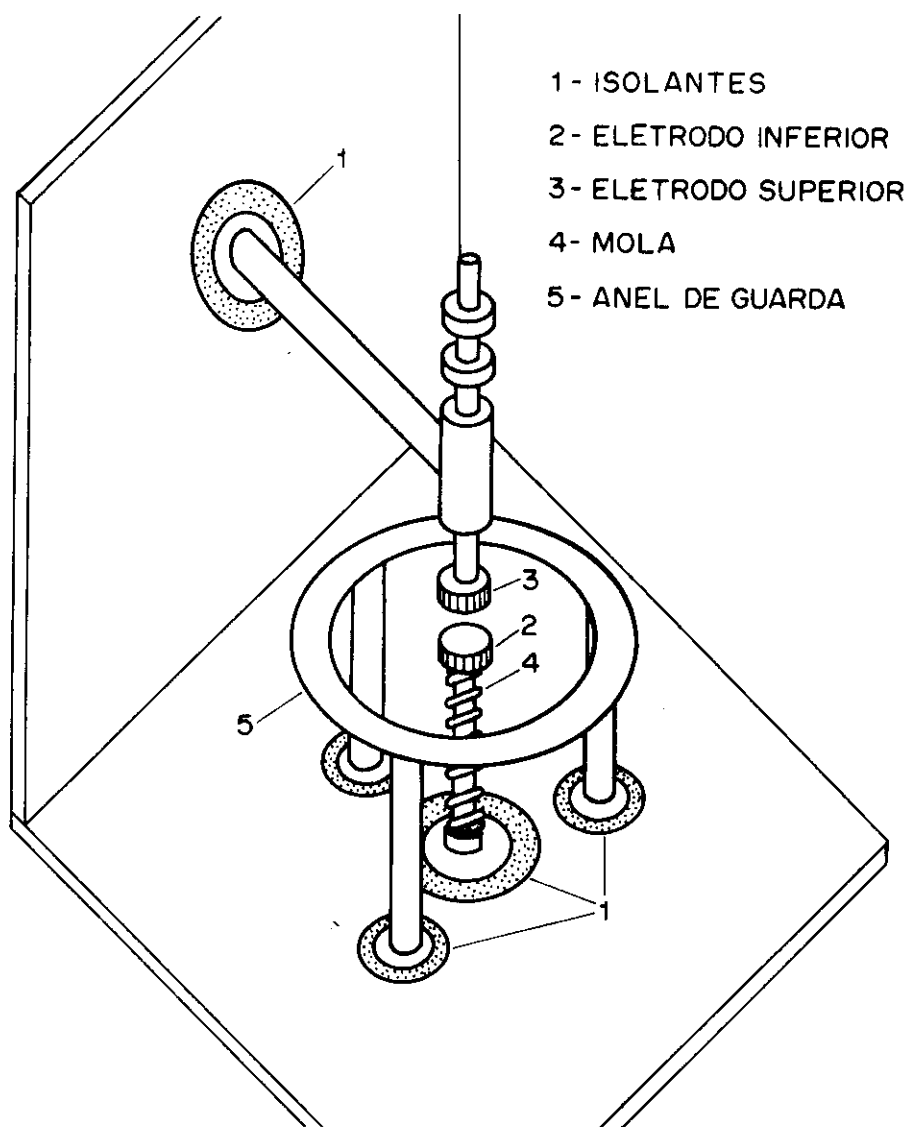


Figura 10. Sistema suporte para medida de TSC.

O sistema foi introduzido em uma estufa FANEM-Modelo 315, com potência de 900W e temperatura máxima de 300°C. A temperatura foi medida com um par termo-elétrico de ferro-constantan e controlada por um programador e um controlador de temperatura. O esquema da montagem elétrica do dispositivo utilizado é mostrado na Figura 11.

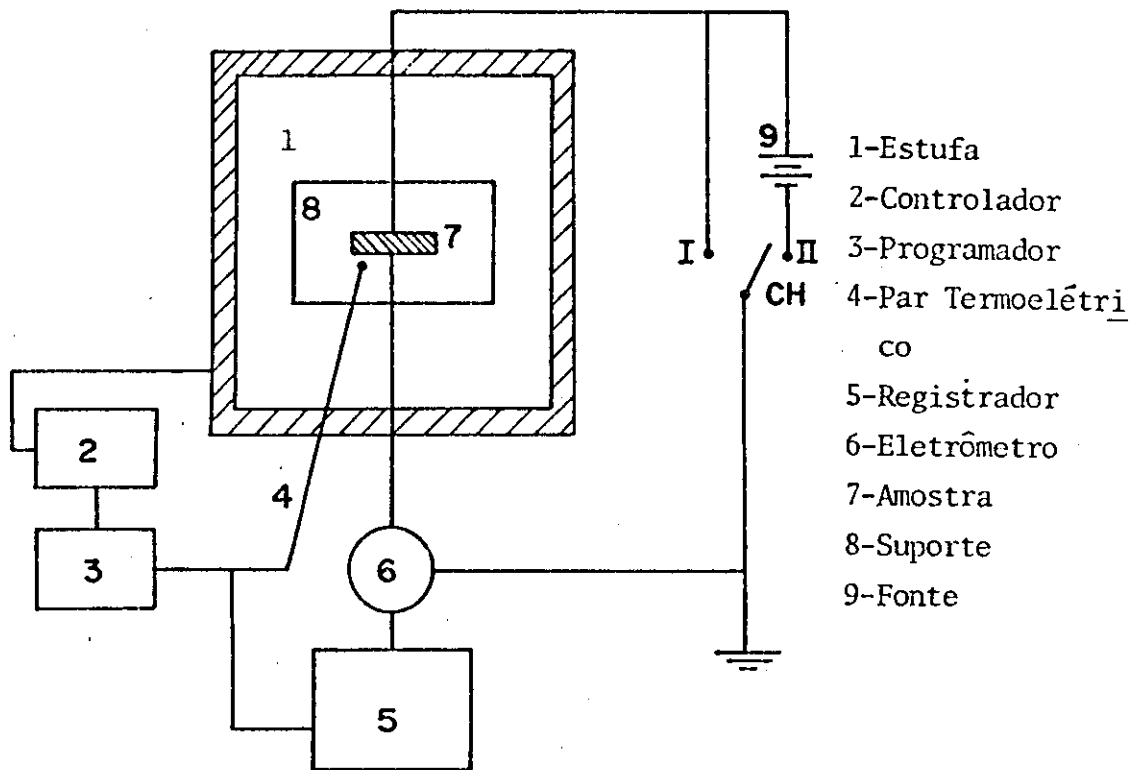


Figura 11. Esquema da montagem elétrica utilizada nas medidas de TSC.

Os equipamentos utilizados foram os seguintes:

- Fonte de tensão Keithley - Modelo 246
- Eletrômetro Keithley - Modelo 610C
- Registrador ECB - Modelo RB-102
- Estufa FANEM - Modelo 315-SE
- Bomba Difusora
- Bomba Rotativa
- Unidade de raio-x Müller-MG-150, com corrente fornecida ao tubo variando de 3 a 20 mA, e tensão aceleradora de elétrons de 50 a 100 KV. O tubo de raio-x foi da marca Philips de anodo de Tungstênio, modelo PW 2184/00. Em quase todas as medidas a tensão utilizada foi de 75 KV o que forneceu radiação de energia média em torno de 35 KeV.

2.3. Determinação da Taxa de Exposição

2.3.1. Verificação da Uniformidade da Dose Recebida pela Superfície da Amostra.

Na determinação da taxa de exposição na região onde se localizou a amostra (a 10 cm de distância do tubo de raio-x), foram utilizados dois métodos. No primeiro, pequenos cristais dosimétricos termoluminescentes de CaF_2 foram usados. A Figura 12 mostra um círculo que representa a área da amostra irradiada, e pequenos quadradinhos que representam as posições onde foram colocados os oito cristais de CaF_2 de 3 X 3 mm cada. Esses cristais foram irradiados por 30 segundos com a corrente do tubo da unidade produtora de raio-x em 10mA e a tensão aceleradora dos elétrons no tubo em 75 KV. Esses valores foram escolhidos por terem sido os mais utilizados em nossas medidas da RIC. A dose total absorvida em cada cristal foi lida numa câmara termoluminescente Victoreen, Modelo 2800, e os resultados são apresentados na Tabela III. Pôde-se observar uma boa uniformidade da dose absorvida na área irradiada.

TABELA III

DOSE RECEBIDA POR CADA CRISTAL DE CaF_2

Nº do Cristal	Dose Recebida (rad)
1	7830
2	7740
3	6900
4	6510
5	8900
6	7830
7	7830
8	7560

O valor médio da dose recebida foi de 7637,5 rad, que transformado em exposição no ar, pela relação (5), fornece $\bar{X} = 8486,1R$

Como o tempo de exposição dos cristais foi de 30 segundos, a taxa de exposição média foi de ~283R/s.

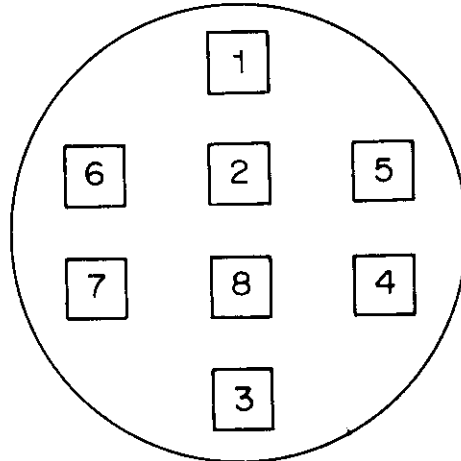


Figura 12. Esquema da área da amostra irradiada. Os quadrados representam as posições dos cristais de CaF₂.

2.3.2. Medidas com Câmara de Ionização

O segundo método para determinação da taxa de exposição utilizou uma câmara de ionização de ar livre, conforme esquematiza a Figura 13, projetada e construída em nosso laboratório. Essa câmara, feita de alumínio e com isoladores de teflon, foi dimensionada para a medida da taxa de exposição no ar induzida por radiação X de energia máxima de 75 KeV. Uma placa de chumbo de 6 mm de espessura e com um orifício de 10mm de diâmetro, colimou o feixe de irradiação. Deste modo, o volume cilíndrico de ar irradiado no interior da câmara, foi definido pelo orifício colimador e pela dimensão da placa coletora na direção de incidência da irradiação (cilindro de 4,7 cm³). Os fótons incidentes nesse volume de ar, interagem com os átomos, ionizando-os, e produzindo deste modo elétrons secundários ener

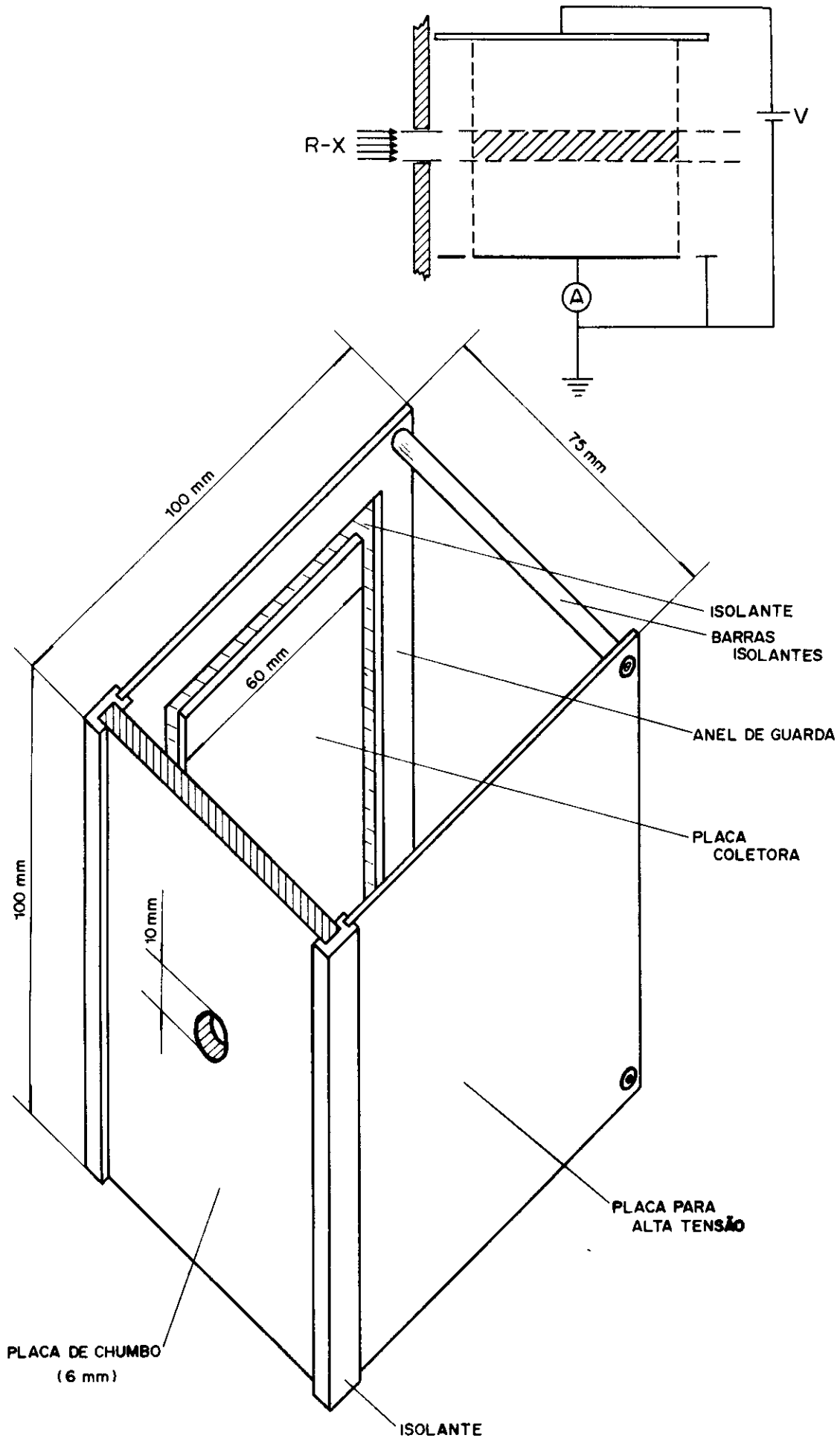


Figura 13. Esquema da câmara de ionização de "ar livre".

géticos. Esses elétrons são ejetados em todas as direções, colidindo com os átomos do meio, e causando outras ionizações em um volume, também aproximadamente cilíndrico, porém de raio maior que o volume inicialmente irradiado. A intensidade da ionização produzida nesse cilindro maior é máxima no eixo central caindo a zero a um raio igual a distância do elétron secundário mais energético ejetado. Para que todos os íons produzidos pela radiação no interior da câmara sejam coletados, o espaço entre as placas coletora e de alta tensão, e as dimensões da câmara na direção perpendicular à de incidência da radiação, teoricamente deveriam exceder a duas vezes o alcance no ar dos elétrons secundários mais energéticos. Para o caso dessa máxima energia ser de 75 KeV, teríamos ~130 mm. Na prática, porém, é encontrado [59] que essas dimensões podem ser bem menores, sem que haja um erro apreciável, desde que poucos elétrons secundários atingem o alcance máximo. Para máxima energia dos elétrons secundários de 75 KeV, as dimensões da câmara podem ser de 75 mm com um erro porcentual de perda na coleção dos íons de só 0,05%.

Com a câmara de ionização colocada na mesma posição, em relação ao tubo de raio-x, em que as amostras foram irradiadas, mediu-se a corrente produzida em função da tensão aplicada à câmara. Deste modo, obteve-se as correntes de saturação para vários valores da corrente do tubo de raio-x. O gráfico da Figura 14 mostra que a corrente de saturação é atingida, mesmo para a máxima corrente do tubo de raio-x, com tensões acima de 8500V. Nos dois casos mostrados a tensão aplicada à unidade produtora de raio-x foi de 75KV.

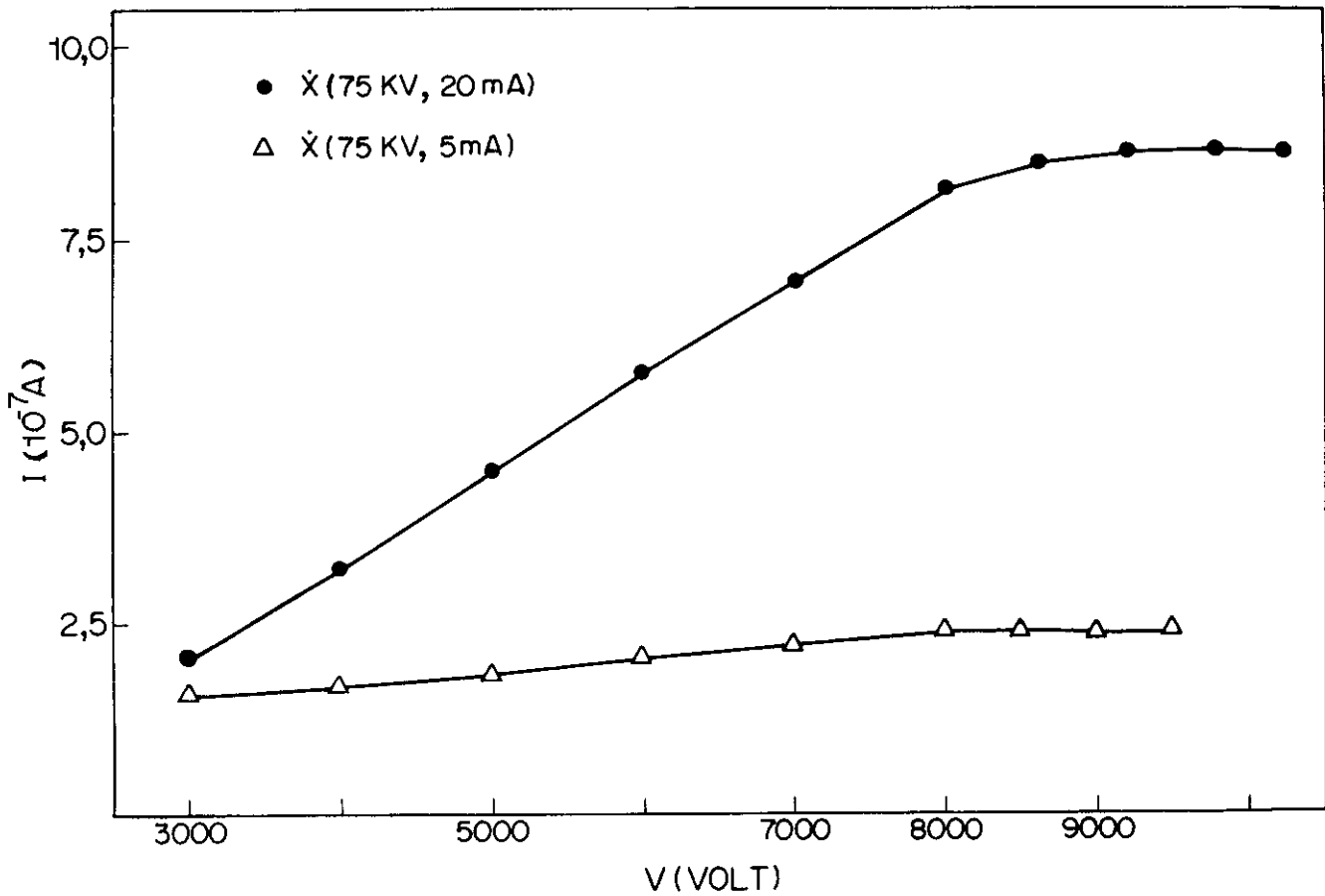


Figura 14. Corrente x tensão para a câmara de ionização de ar livre.

Aplicando à câmara uma tensão de 9500V, e variando a corrente de elétrons no tubo de raio-x, obteve-se a relação entre essa corrente e a corrente de saturação fornecida pela câmara.

Da relação:

$$\dot{X} = \frac{I(A)}{2,58 \times 10^{-4} m(Kg)} \quad R/s \quad (10)$$

onde I(A) é a corrente de saturação obtida e m(Kg) a massa de ar no volume irradiado, obtêm-se:

$$\dot{X} = 6,08 \times 10^8 I(A) \quad R/s \quad (11)$$

A Tabela IV mostra os valores das correntes de saturações obtidas, para vários valores da corrente do tubo, e suas respectivas taxas de exposições.

TABELA IV

CORRENTE DE SATURAÇÃO DA CÂMARA DE IONIZAÇÃO PARA
VÁRIOS VALORES DA CORRENTE DO TUBO DE RAIO-X

I_x (mA)	$I \times 10^{-7}$ (A)	\dot{X} (R/s)
3	1,40	85
5	2,30	140
7	3,29	200
10	4,60	280
15	6,90	420
20	8,55	520

O gráfico da Figura 15 mostra que a relação entre a taxa de exposição e a corrente aplicada ao tubo de raio-x é linear, pelo menos para valores abaixo de 420 R/s.

Pode-se observar que, com a corrente e tensão do tubo de raio-x nas mesmas condições utilizadas na determinação da taxa de exposição com os cristais termoluminescentes (10mA e 75KV), o valor obtido com a câmara de ionização foi de 280 R/s, em excelente concordância com o valor médio obtido com os cristais (283 R/s).

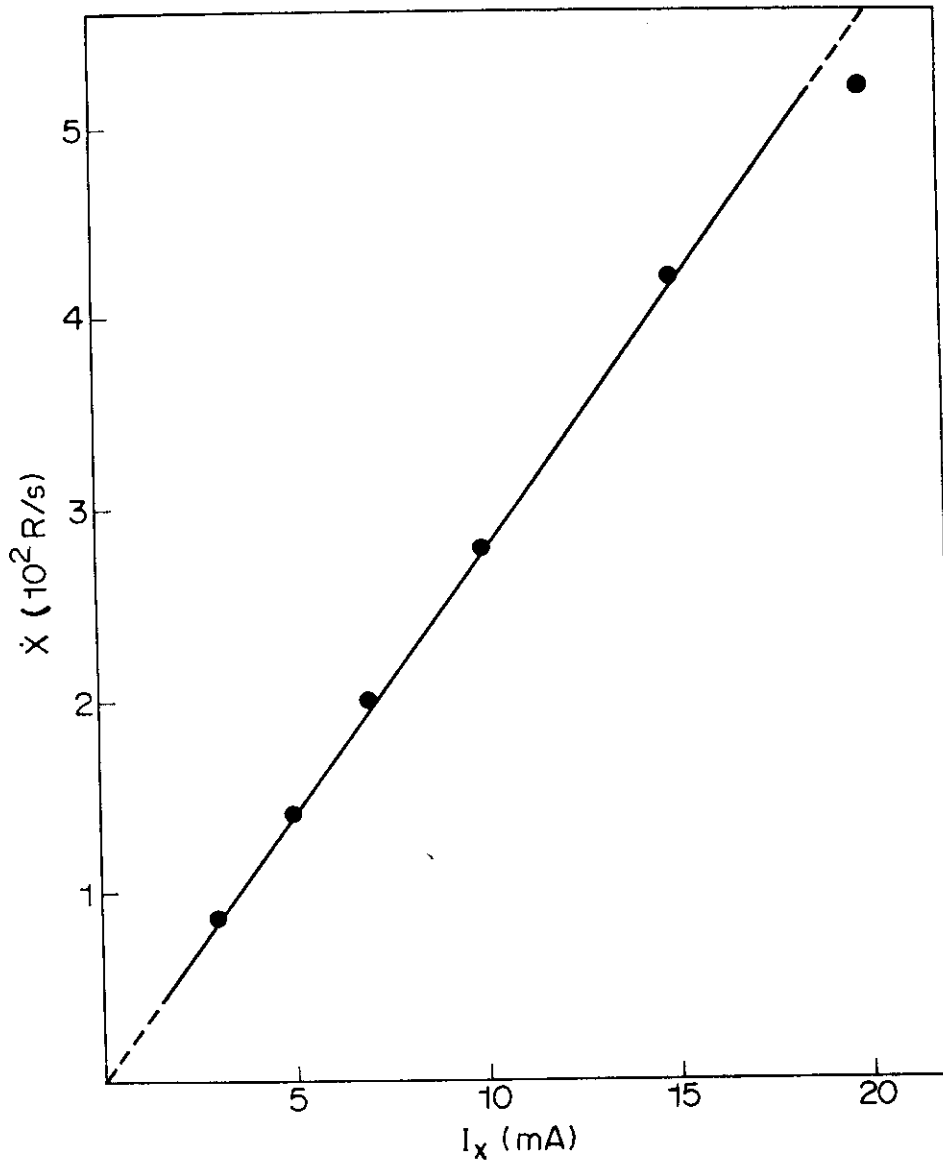


Figura 15. Relação entre a corrente do tubo da unidade produto de raio-x e a taxa de exposição.

CAPÍTULO III

RESULTADOS EXPERIMENTAIS

3.A. MEDIDAS NO PET

3.A.1. MEDIDAS DA RIC

Uma extensiva série de medidas de condutividade induzida por radiação foi realizada, no vácuo (10^{-4} Torr) e a temperatura ambiente (26°C). Em todos os casos, com exceção dos apresentados no item 3.2.3., os eletrodos foram de alumínio evaporado. As medidas foram realizadas no vácuo para eliminar qualquer suspeita de condução através do ar ionizado, como também para evitar a influência do ar difundido na amostra que, como veremos, pode alterar o comportamento da RIC. Antes de cada medida, a tensão foi aplicada à amostra por pelo menos 15 minutos antes de iniciada a irradiação. Esse tempo foi suficiente para que o valor da corrente de absorção dielétrica se tornasse desprezível frente ao da corrente induzida.

3.A.1.1. EFEITO DA VARIAÇÃO DO CAMPO

A figura 16 mostra a evolução da condutividade induzida em função do tempo, este em escala logarítmica, para uma taxa de exposição de 280 R/s e espessura da amostra de 23 μm , com diferentes campos elétricos aplicados. Logo após o início da irradiação, a RIC apresenta um rápido aumento, atingindo um valor que permanece quase estacionário por um tempo t' . Esse valor, para um campo de 8×10^4 V/cm, é cerca de 400 vezes a condutividade intrínseca

do material (condutividade medida após 3 horas da aplicação da tensão). Em seguida, a RIC começa a subir novamente, atingindo um máximo em um instante t'' , e cai lentamente, tendendo para um valor estacionário. O tempo total de irradiação para a RIC atingir esse valor estacionário é da ordem de 7 horas. Os valores t' e t'' praticamente independem do campo aplicado para intensidades inferiores a 8×10^4 V/cm. Para intensidades superiores, t' e t'' passam a depender fortemente da intensidade do campo. Para $4,8 \times 10^5$ V/cm o estado estacionário inicial quase não é observado. Como exemplo, com intensidade do campo de 8×10^4 V/cm, tem-se $t' = 250$ s e $t'' = 1400$ s.

O aumento da RIC, que tem início logo após o estado estacionário inicial, foi atribuído por Maeda et al [23] e Hughes [24] à injeção de elétrons pelo eletrodo, causada pela elevação do campo elétrico na região próxima ao eletrodo, como já citamos no capítulo I. Porém, os resultados experimentais por nós obtidos contradizem essa hipótese, como mostraremos no capítulo VIII. Consideramos essa elevação do valor da RIC como resultado da saturação de um dos níveis de armadilhas profundas (trap filling). Essa saturação leva a uma diminuição na captura de portadores e, em consequência, a um aumento da RIC. Com o aumento do número de portadores livres e capturados em armadilhas profundas, a recombinação começa a influir fortemente na RIC, diminuindo seu valor. Deste modo, teremos o aparecimento do máximo observado. Após um longo tempo de irradiação (~7 h), ocorre o equilíbrio entre a taxa de geração de portadores, recombinação, captura e liberação das armadilhas, e um estado estacionário é atingido. É interessante observar que a queda da RIC, após seu valor máximo ter sido atingido, é bem mais acentuada para intensidades do campo mais elevadas.

Para verificar a reprodutibilidade das medidas realizadas com diferentes amostras, foram feitas duas medidas, em idênticas con-

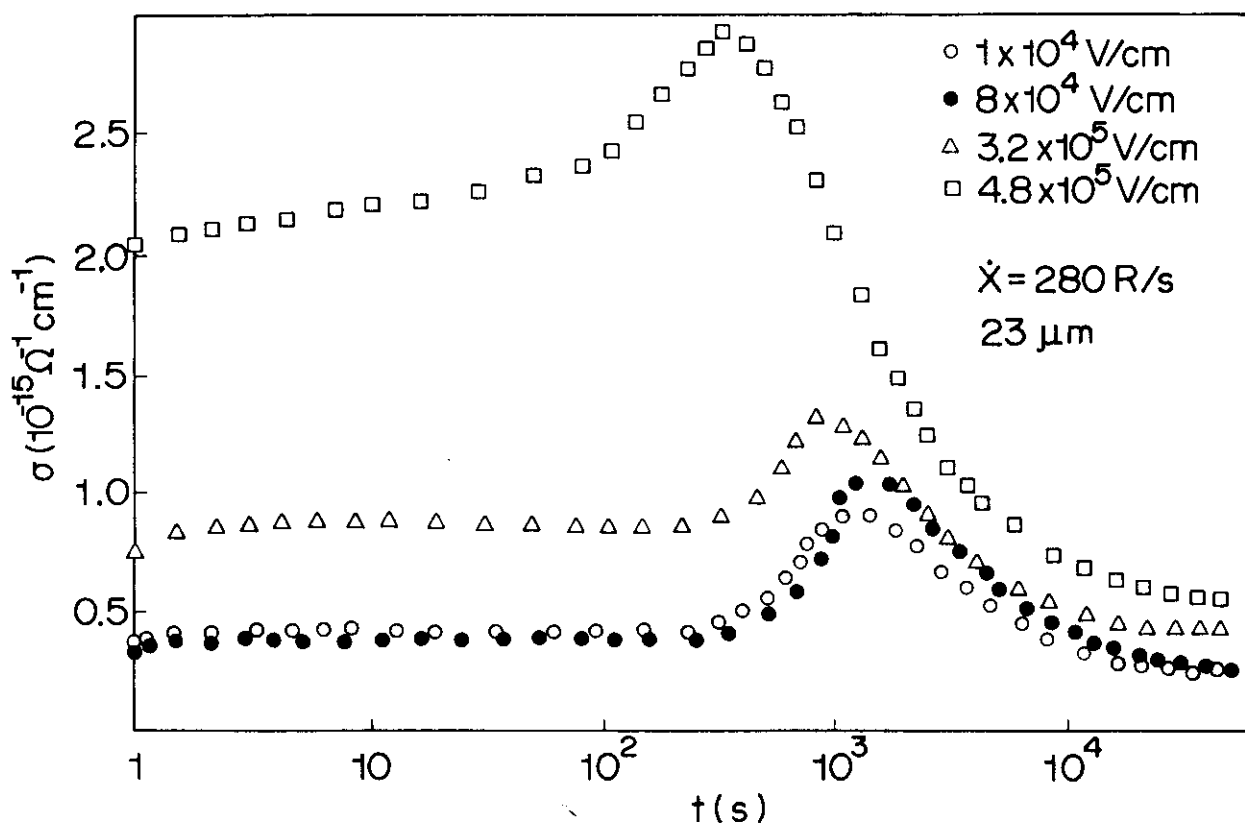


Figura 16. Condutividade induzida em função do tempo, para várias intensidades do campo elétrico aplicado à amostra.

dições, com amostras distintas, e o resultado é mostrado na figura 17. Como se pode observar a reprodutibilidade conseguida é satisfatória.

As figuras 18 e 19 mostram o valor da corrente induzida estacionária (atingida após 7 h de irradiação), em função da tensão aplicada, para vários valores da taxa de exposição e espessuras das amostras. Esses valores foram obtidos por dois métodos:

- a) A amostra, polarizada a uma dada tensão, foi irradiada até que o valor estacionário final da corrente induzida fosse atingido. Nesse instante, variou-se a tensão aplicada à amostra e os valores das correntes induzidas para as várias tensões foram obtidos.

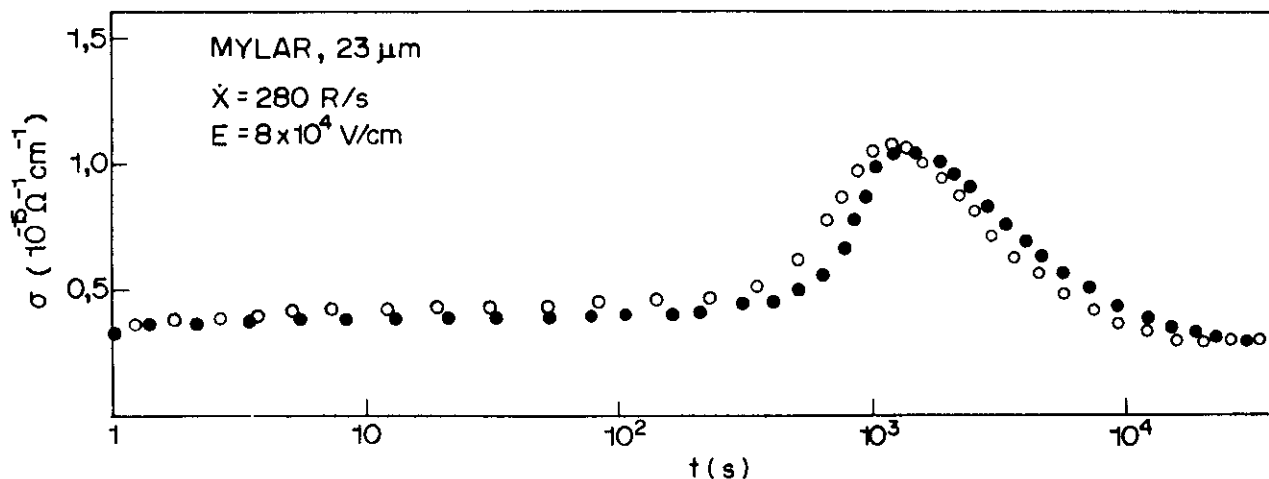


Figura 17. Verificação da reprodutibilidade na medida da RIC com distintas amostras.

b) Várias amostras foram polarizadas a diferentes tensões, e irradiadas até que o valor da corrente induzida estacionária fosse atingido.

Nos dois métodos os valores obtidos foram coincidentes.

Pode-se notar que a corrente induzida estacionária varia linearmente com o campo, para intensidades inferiores a $8 \times 10^4 \text{ V/cm}$ (comportamento ôhmico). Intensidades de campo superiores a essa fornecem um comportamento super linear da corrente, cuja variação passa a seguir uma lei de potência do tipo $I \propto E^n$, onde $n = 1,33 \pm 0,01$. Esse valor é praticamente independente da taxa de exposição e espessura da amostra, dentro do intervalo aqui estudado. O aumento super linear da RIC com o campo, que pode ser observado também na figura 20, em escala linear, será interpretado quantitativamente no capítulo VIII. Essa interpretação será dada em termos da teoria de Onsager [64] da recombinação geminativa.

A figura 21 mostra a variação da corrente induzida esta

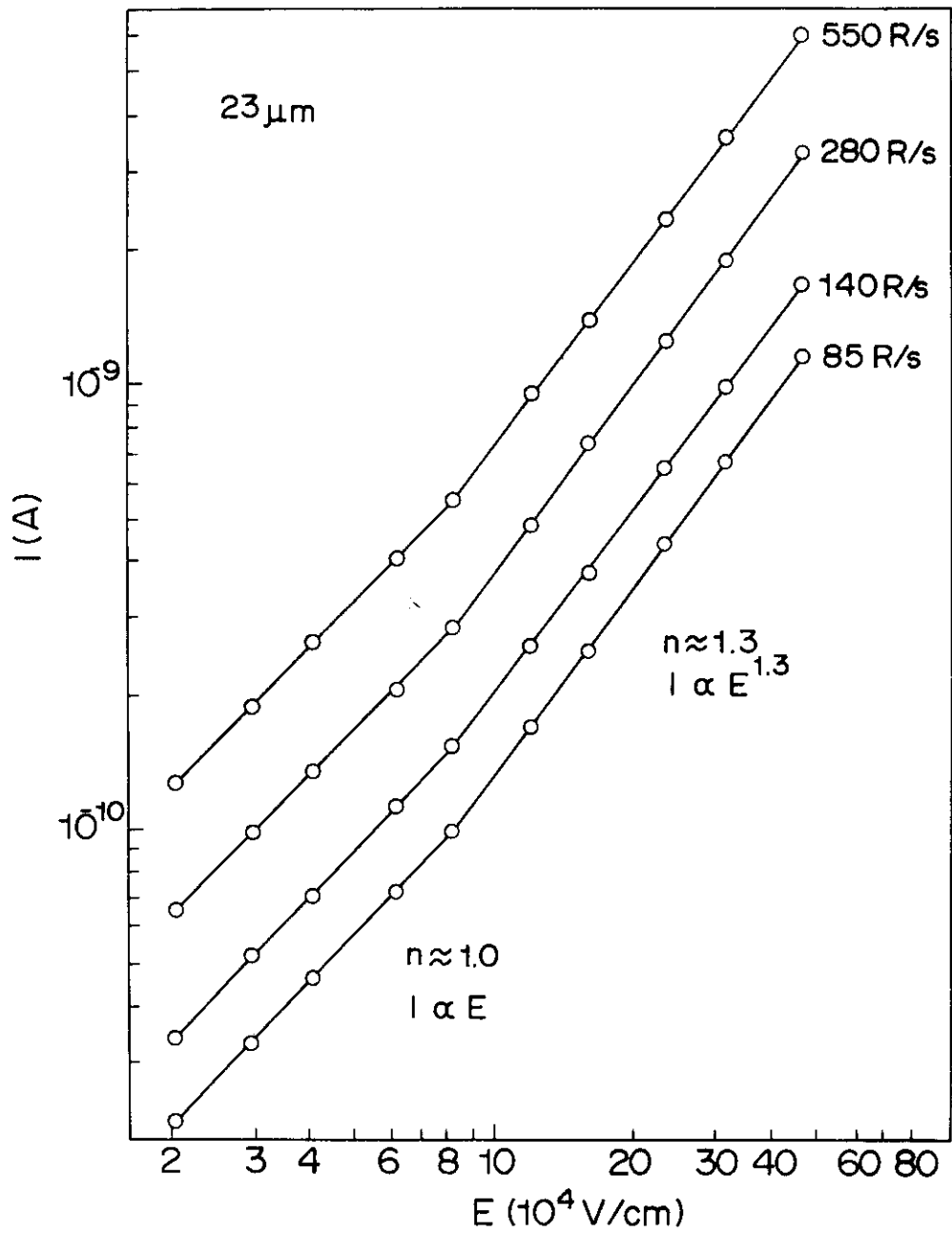


Figura 18. Corrente induzida estacionária final em função do campo aplicado à amostra, para várias taxas de exposições (escala dupla logarítmica).

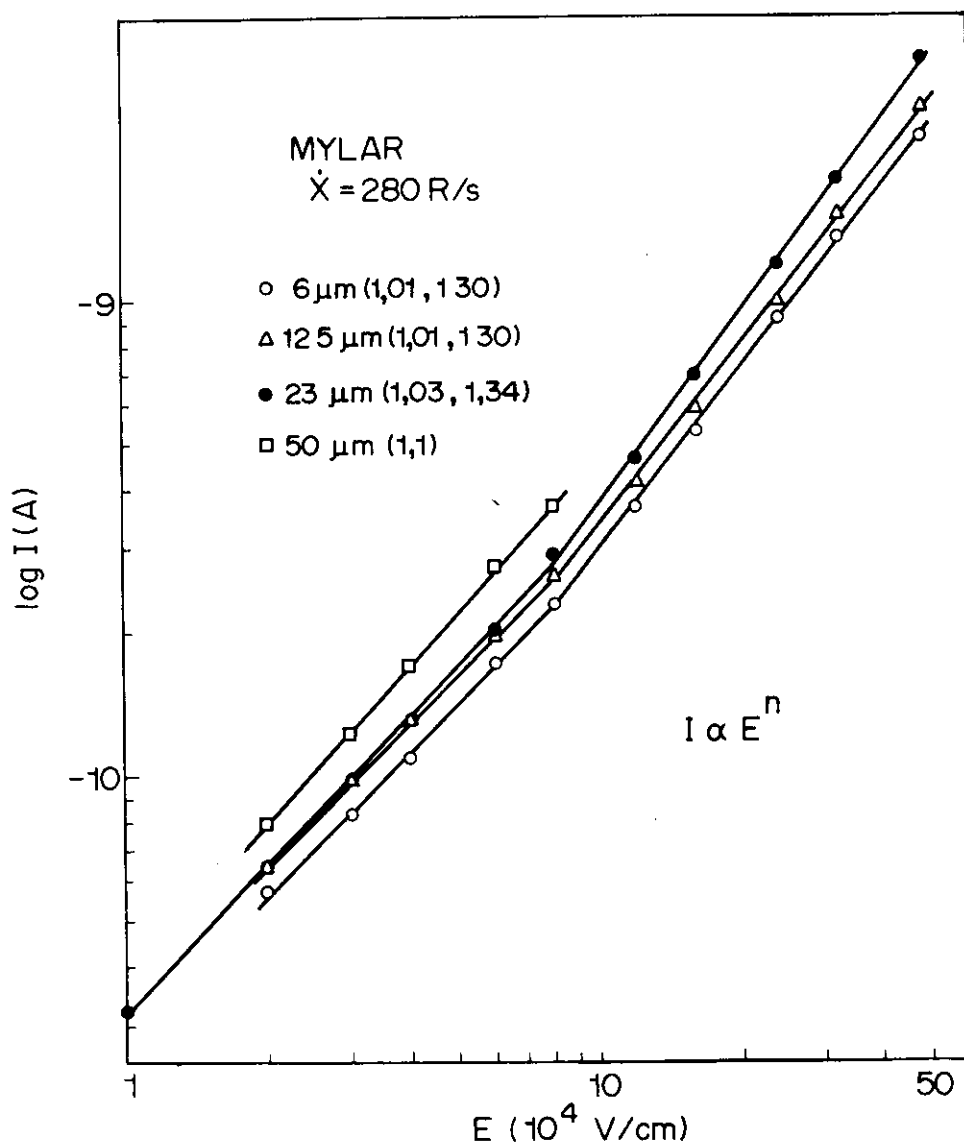


Figura 19. Corrente induzida estacionária em função do campo aplicado, para várias espessuras das amostras. Os valores de n , para as duas inclinações das curvas, são dados entre parênteses para cada espessura.

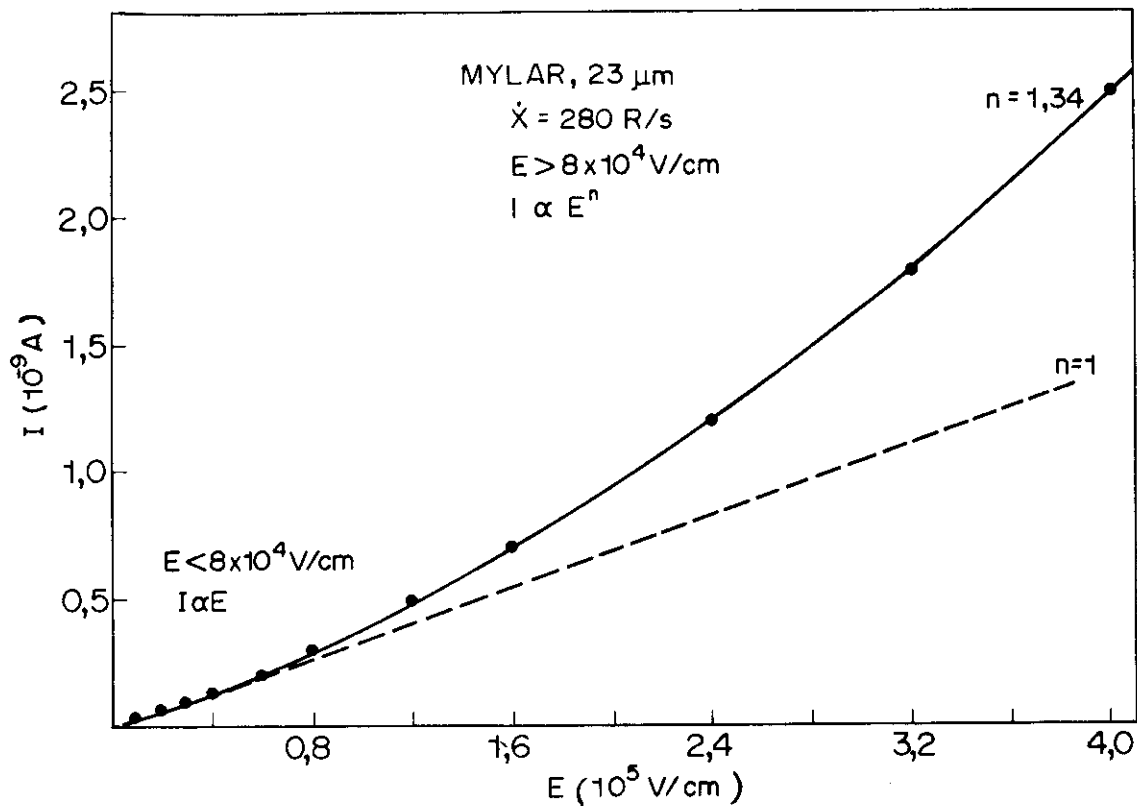


Figura 20. Corrente induzida em função do campo aplicado, para uma amostra de espessura 23 μm. A passagem da condução ôhmica para a superôhmica pode ser vista claramente quando $E = 8 \times 10^4$ V/cm.

cionária inicial, após 10 s de irradiação, em função do campo aplicado. Neste caso também se observa um comportamento ôhmico para $E < 8 \times 10^4$ V/cm, porém para campos superiores a dependência da corrente induzida estacionária inicial é bem maior que da corrente estacionária final, sendo o valor de n para o primeiro caso igual a 1,76.

3.A.1.2. EFEITO DA VARIAÇÃO DA TAXA DE EXPOSIÇÃO

A figura 22 mostra a RIC em função do tempo para

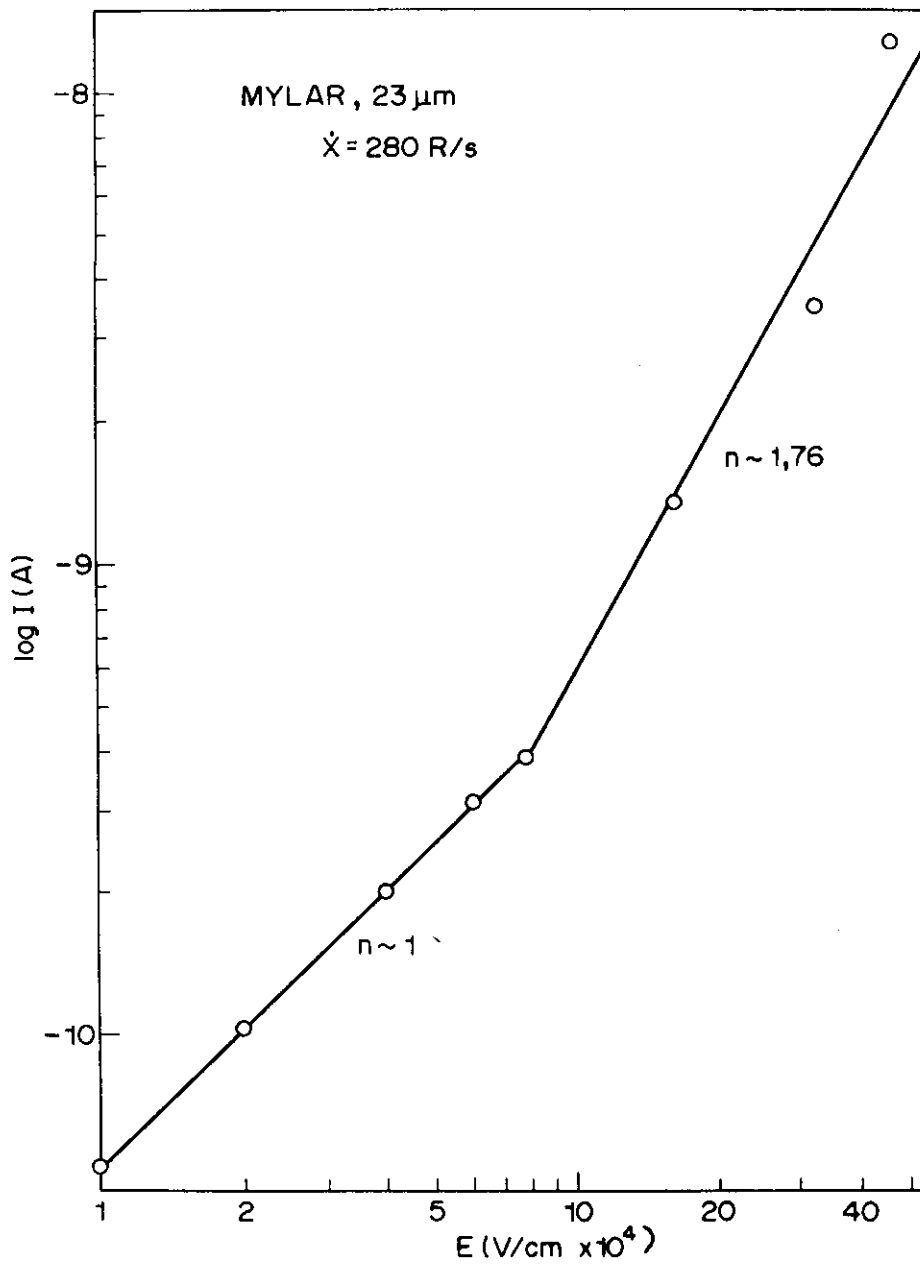


Figura 21. Corrente induzida estacionária inicial em função do campo aplicado.

amostras de 23 μm e campo aplicado de $8 \times 10^4 \text{ V/cm}$, com diferentes taxas de exposição.

Neste caso, os valores de t' e t'' são mais drasticamente alterados, até que para $\dot{X} = 420 \text{ R/s}$, o comportamento temporal da RIC se afasta bastante daquele observado para taxas de exposições menores.

A corrente induzida estacionária final (após 7 h de irradiação) em função da taxa de exposição é mostrada na figura 23,

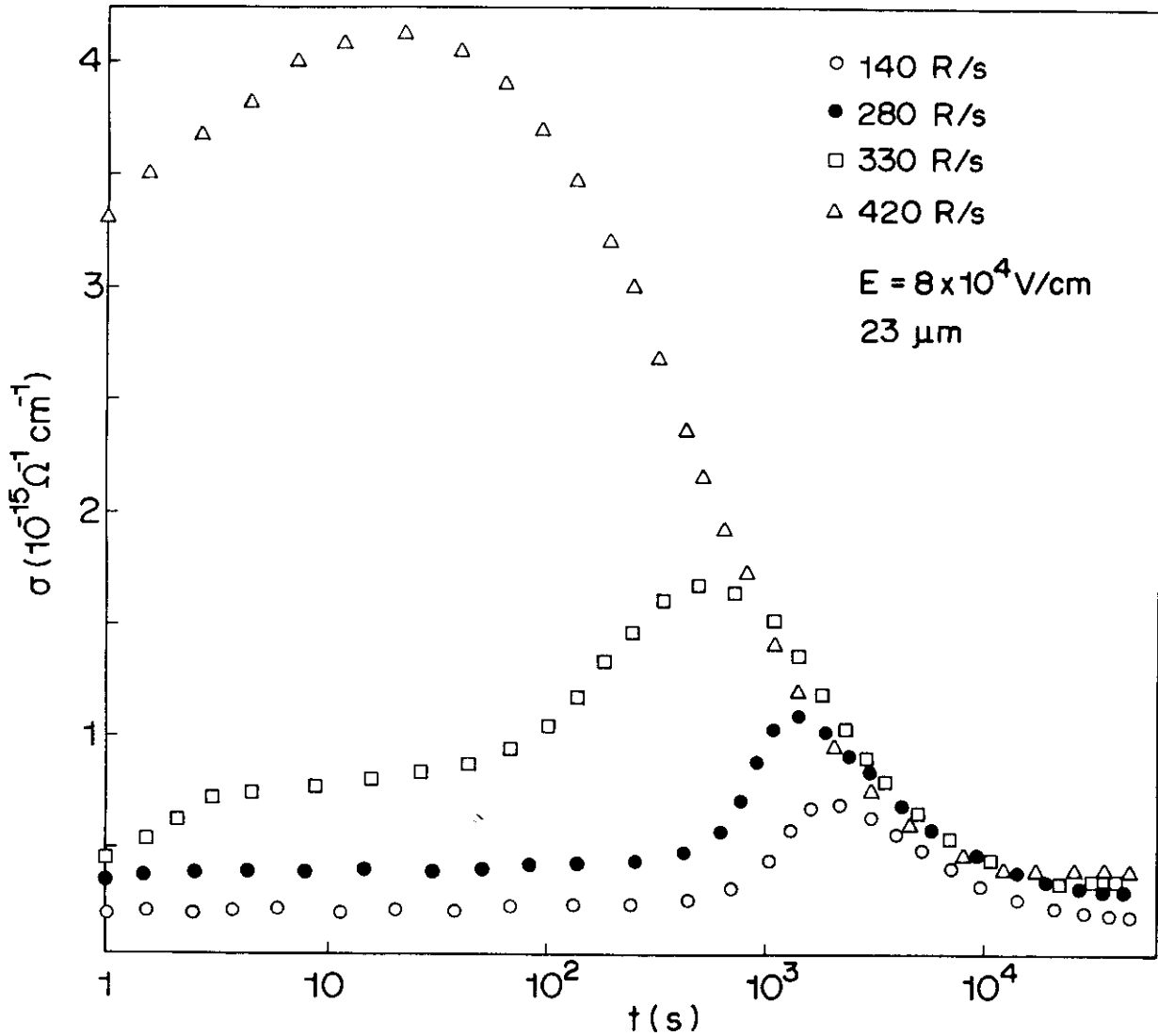


Figura 22. Condutividade induzida em função do tempo de irradiação para diferentes taxas de exposições.

para várias intensidades do campo elétrico aplicado e diferentes espessuras das amostras. Esses valores também foram obtidos por dois meios:

- a) A amostra foi irradiada a uma dada taxa de exposição até atingir o estado estacionário final. Nesse ponto, a taxa de exposição foi variada obtendo-se as respectivas correntes estacionárias.
- b) Várias amostras foram irradiadas, sujeitas a um mesmo campo elétrico, com diferentes taxas de exposições, até que a corrente estacionária fosse atingida.

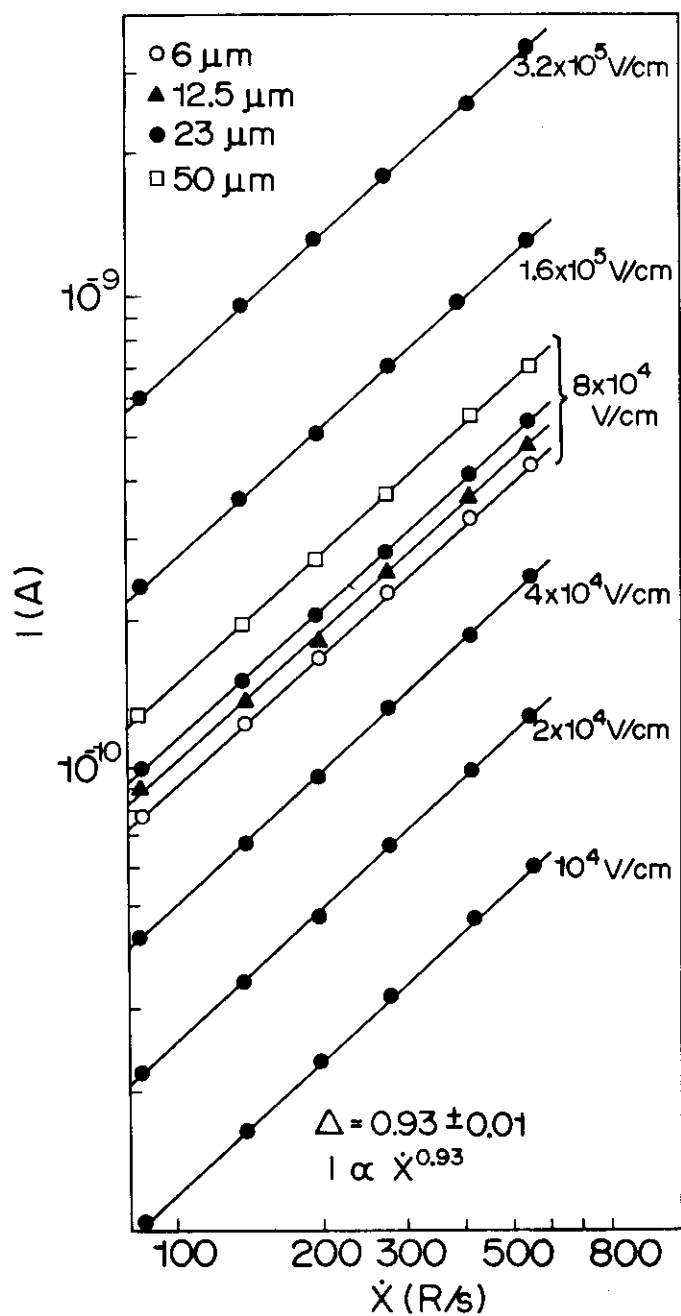


Figura 23. Corrente induzida estacionária em função da taxa de exposição, para vários campos aplicados e diferentes espessuras das amostras.

Neste caso também os valores obtidos foram coincidentes.

A relação entre a corrente induzida estacionária e a taxa de exposição segue uma lei de potência do tipo:

$$I \propto \dot{X}^{\Delta}$$

onde $\Delta = 0,93 \pm 0,01$, para todos os valores do campo aplicado e espessuras das amostras cobertas pelas presentes medidas. De acordo com a teoria desenvolvida por Fowler [13], o valor de Δ próximo a unidade é característico de materiais que possuem distribuição de armadilhas uniforme em energia.

3.A.1.3. EFEITO DA ESPESSURA DA AMOSTRA

Foram feitas medidas da RIC para amostras de várias espessuras, o resultado é mostrado na figura 24. O campo aplicado foi de 2×10^4 V/cm e a taxa de exposição de 280 R/s. Os valores de t' e t'' praticamente independem da espessura da amostra, o mesmo ocorrendo com o valor estacionário final. Porém este último valor passa a ter uma dependência maior com a espessura para intensidades do campo maiores. Este resultado é mostrado na figura 25, para dois valores do campo.

É interessante notar que a RIC estacionária inicial, que também varia muito pouco com a espessura da amostra, diminui ligeiramente com o aumento dessa espessura.

Na figura 24 é mostrada também a dependência da RIC com o tempo para uma amostra de 6 μm (Δ) de tipo diferente das amostras utilizadas em todas as medidas (foi utilizada uma amostra de Mylar tipo A). O comportamento bastante distinto observado possi

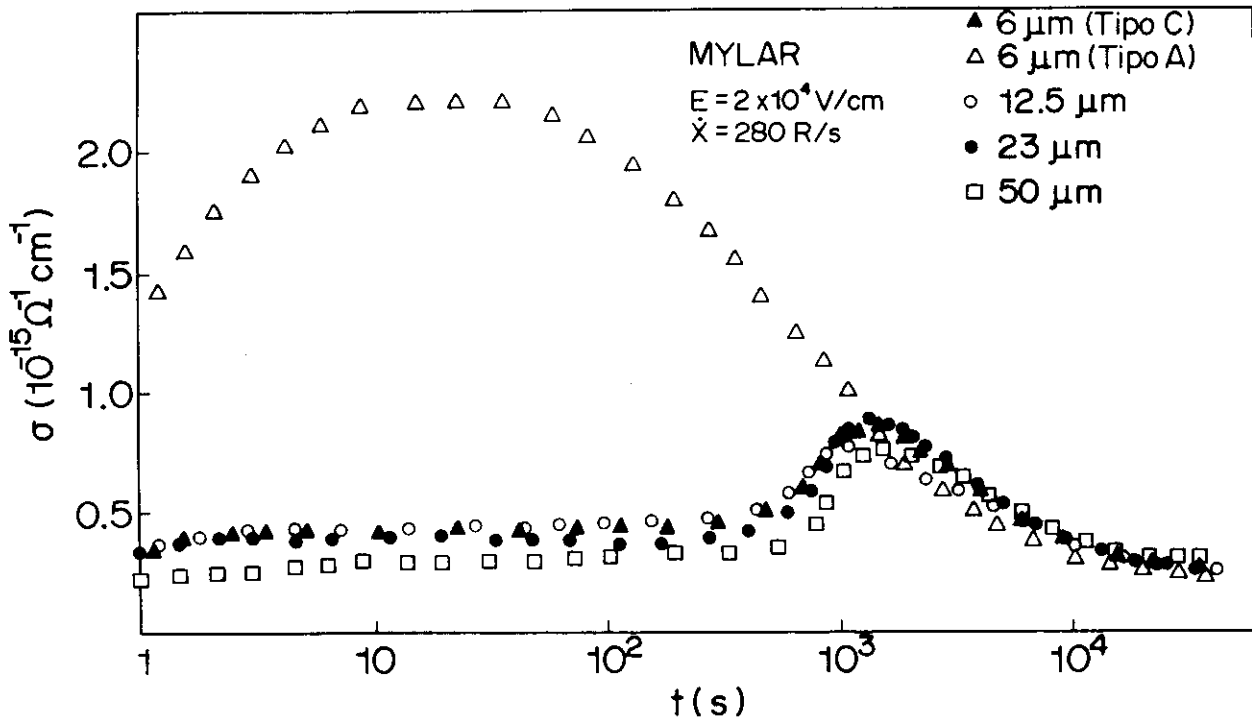


Figura 24. Condutividade induzida em função do tempo para diferentes espessuras da amostra.

velmente se deva a diferentes quantidades de dopantes (que funcionam como armadilha), nos diferentes tipos de materiais.

Quando comparamos resultados de amostras de diferentes espessuras, devemos levar em conta que normalmente essas amostras tem diferentes processos de fabricação.

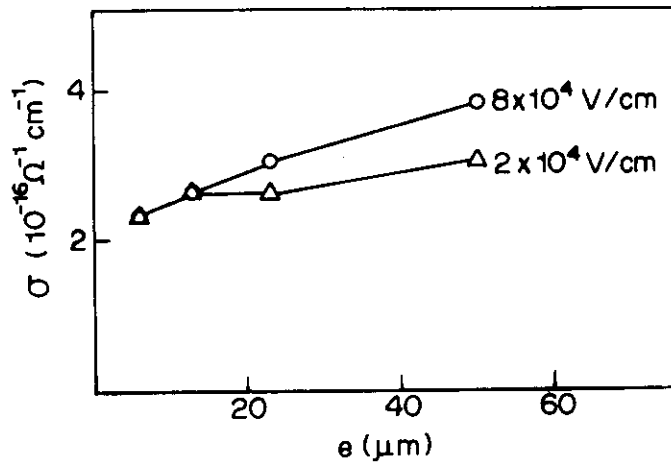


Figura 25. RIC em função da espessura da amostra, para dois campos aplicados.

3.A.1.4. EFEITO DOS ELETRODOS

A influência do material utilizado como eletrodo também foi verificada. A troca do eletrodo de Al por Au aumenta a taxa de exposição recebida pela amostra, sem alterar, no entanto, a dependência da corrente induzida estacionária final com o campo elétrico aplicado. A figura 26 mostra a dependência da corrente induzida estacionária com o campo para duas amostras com eletrodo de Al e sujeitas a taxas de exposição de 280 R/s e 420 R/s. Na mesma figura, temos essa mesma dependência para uma amostra com eletrodo de Au e sujeita a uma taxa de exposição de 280 R/s. Pode-se notar a coincidência nos valores obtidos para esta última medida ,

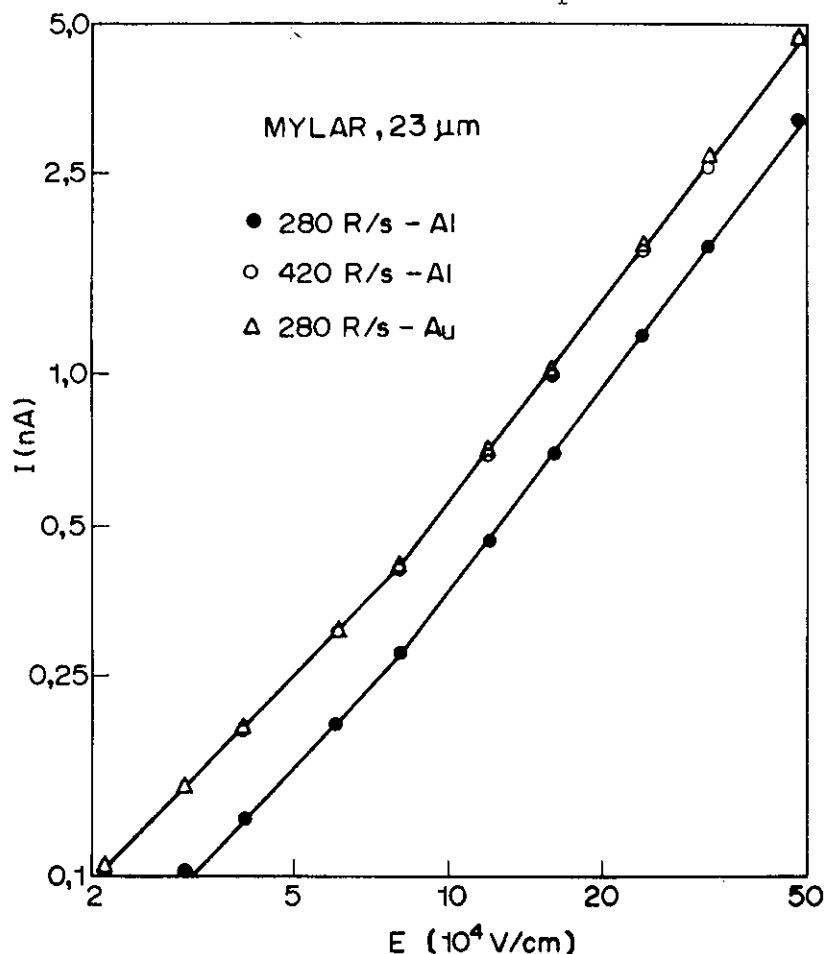


Figura 26. Corrente induzida estacionária em função do campo para amostras com diferentes eletrodos e taxas de exposição.

com os obtidos para a amostra com eletrodo de Al e 420 R/s. A evolução temporal da condutividade induzida com o tempo, para essas mesmas medidas, com um campo aplicado de 2×10^4 V/cm, é apresentada na figura 27. Neste caso também se nota muita semelhança entre os valores obtidos para as amostras com eletrodo de Al e Au e diferentes taxas de exposição.

Esses resultados nos permitem supor que a troca do eletrodo de alumínio pelo de ouro aumenta a taxa de exposição recebida pela amostra em aproximadamente 1,5 vezes. Este efeito surge devido ao maior número atômico do ouro, em relação ao do alumínio que, como vimos no capítulo I, resulta numa mais elevada produção

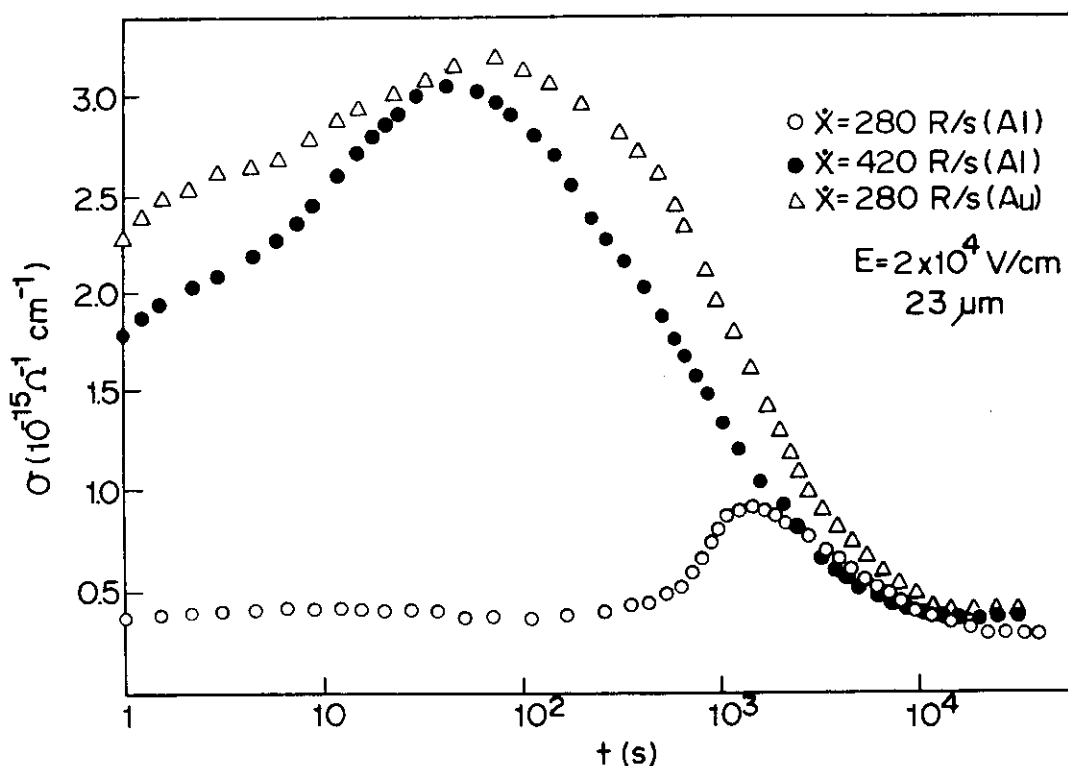


Figura 27. Condutividade induzida em função do tempo para:
(o) amostra com eletrodo de alumínio e 280 R/s;
(●) amostra com eletrodo de alumínio e 420 R/s; e
(Δ) amostra com eletrodo de ouro e 280 R/s.

de fotoelétrons quando o material do eletrodo sofre a interação com a radiação. Esses fotoelétrons são injetados na amostra produzindo uma maior ou menor taxa de exposição, dependendo do número injetado.

Como o alcance de elétrons de 35 KeV no PET é de ~ 22 μm [61], e a espessura da amostra medida é de 23 μm , é pouco provável ocorrer uma não uniformidade em profundidade na geração de portadores no interior da amostra. Se isto ocorresse, poderia causar a formação de carga espacial com conseqüente distorção do campo elétrico no interior da amostra [20].

Essa distorção se manifestaria alterando o comportamento da RIC para diferentes eletrodos. Porém, como vimos, a troca de eletrodo de Al por Au, aparentemente tem como única conseqüência o aumento da taxa de exposição recebida pela amostra. Porém, medidas da RIC em amostras mais espessas podem ocasionar o efeito descrito acima.

Foram feitas ainda, medidas com amostras de 23 μm contendo eletrodo de Al em um dos lados, e de ouro no outro, o resultado é mostrado na figura 28.

Dos resultados obtidos pode-se notar que, tanto o eletrodo superior (no qual incide a radiação), como o eletrodo inferior, influenciam a taxa de exposição recebida pela amostra. O eletrodo inferior contribui, provavelmente, com fotoelétrons nele produzidos e que são injetados em direções que formam com a direção de incidência do feixe de radiação ângulos superiores a 90° , atingindo, deste modo, a amostra. A curva representada pelo símbolo (\square), foi obtida para uma amostra com ambos eletrodos de ouro, porém o ouro utilizado na evaporação continha muita impureza.

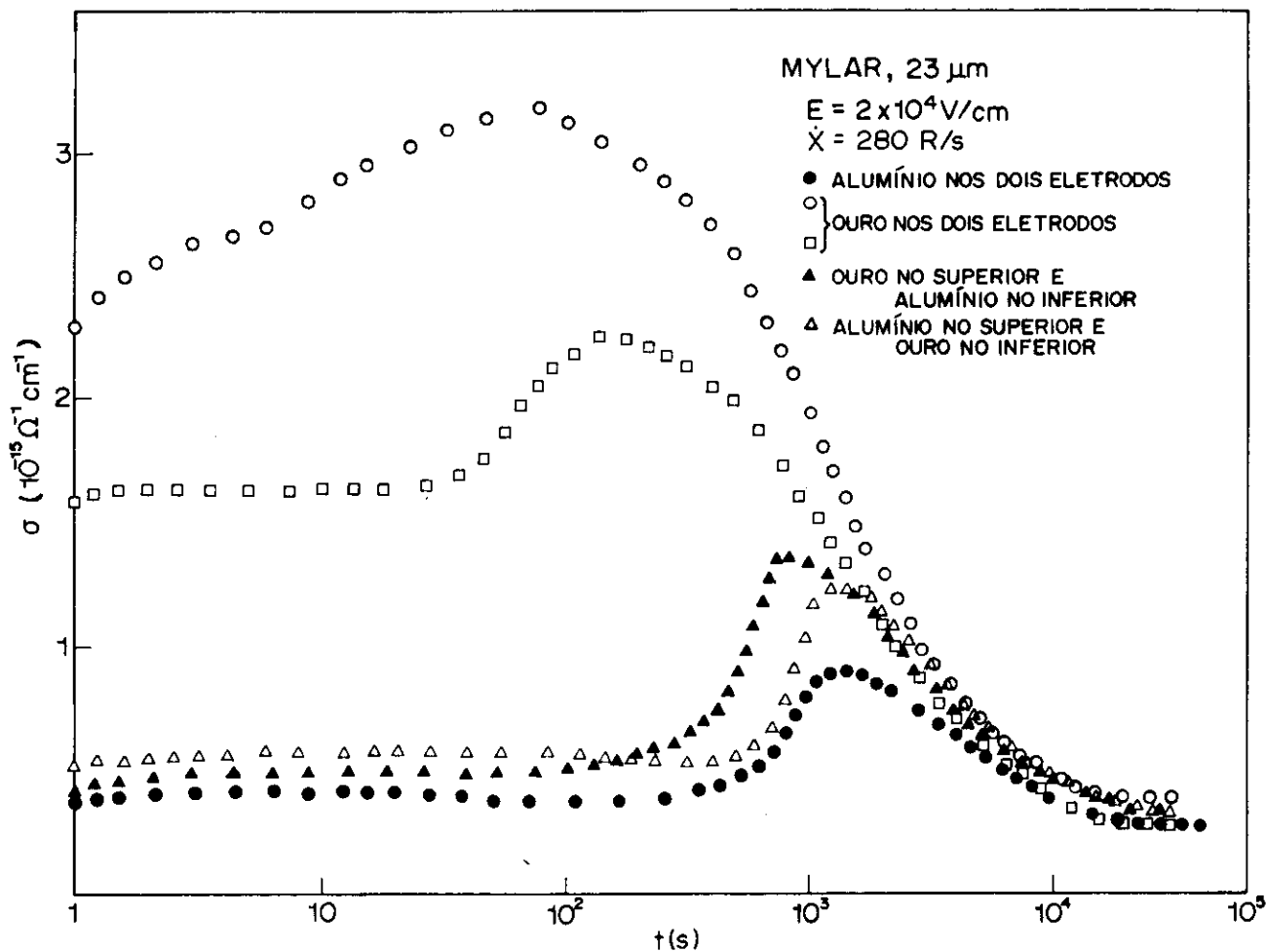


Figura 28. Condutividade induzida x tempo para:

- (●) ambos eletrodos de alumínio;
- (△) eletrodo superior de alumínio e inferior de ouro;
- (▲) eletrodo superior de ouro e inferior de alumínio; e
- (o) ambos eletrodo de ouro.

3.A.1.5. VARIAÇÃO DA ENERGIA DA RADIAÇÃO

A energia média do raio-X pode ser variada pela variação da tensão de aceleração dos elétrons no tubo. Na figura 29 temos três medidas realizadas com diferentes tensões aplicadas ao tubo. A corrente aplicada ao tubo foi de 10 mA, e o campo aplicado à amostra foi de $3,2 \times 10^5 \text{ V/cm}$, nas três medidas.

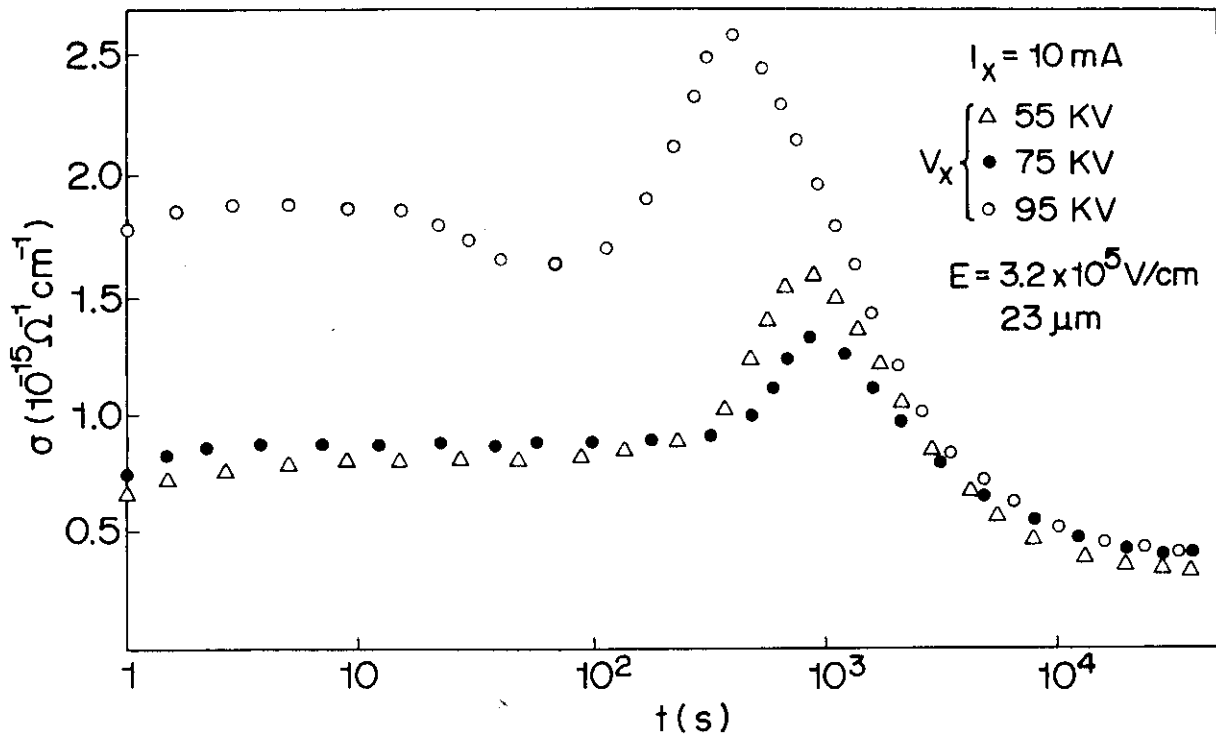


FIGURA 29. Condutividade induzida para diferentes energias médias da radiação.

3.A.2. CORRENTE INDUZIDA COM INVERSÃO DO CAMPO.

As figuras 30 e 31 mostram o comportamento da corrente induzida, quando o campo elétrico aplicado tem sua polaridade invertida durante a irradiação.

Se o efeito da corrente de absorção é subtraído, a inversão de polaridade do campo aplicado só inverte o sentido da corrente induzida, praticamente não alterando seu valor absoluto.

Aparentemente a evolução temporal da RIC não depende do campo elétrico aplicado, nem de qualquer efeito de polarização causado pelo eletrodo, sendo determinada pela interação da radia

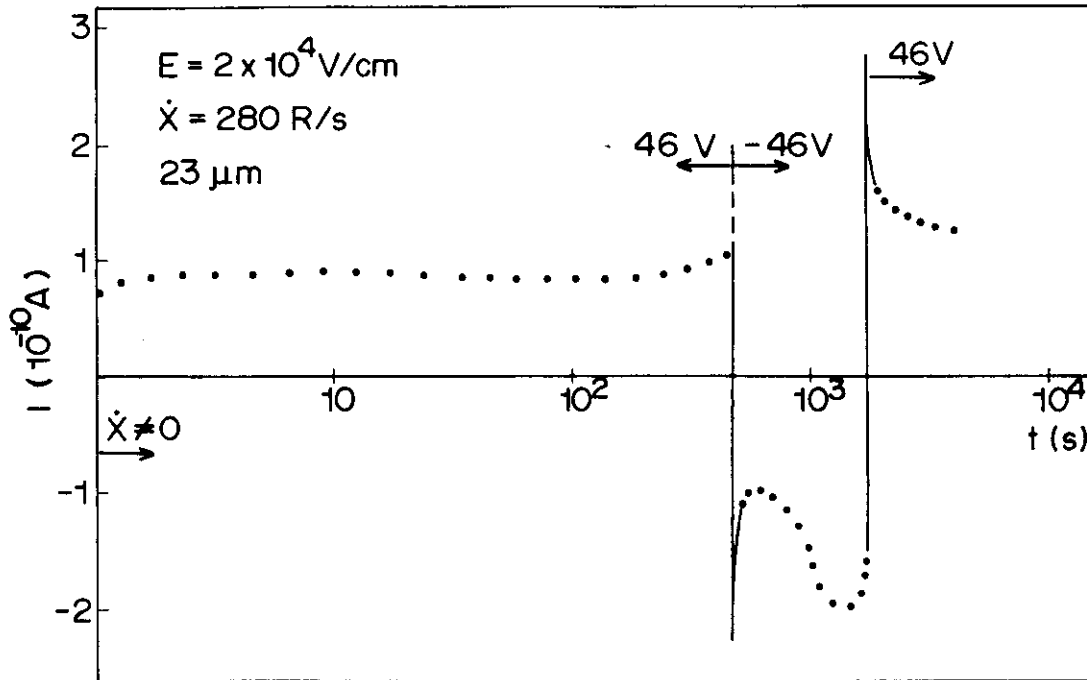


Figura 30. Corrente induzida com inversão do campo elétrico. $\dot{X} = 280$ R/s e $E = 2 \times 10^4$ V/cm.

ção com o material e das características intrínsecas deste. Foi realizada ainda uma medida com a aplicação intermitente do campo, e os valores obtidos são muito próximos daqueles com aplicação contínua do campo.

3.A.3. CORRENTE INDUZIDA COM APLICAÇÃO INTERMITENTE DA RADIAÇÃO

Uma amostra de $23 \mu\text{m}$, sujeita a uma tensão de 184 V, foi irradiada com uma taxa de exposição de 280 R/s durante 350 segundos. Nesse instante a irradiação foi interrompida e a amostra permaneceu, ainda sob tensão, por 330 segundos sem irradiação, sendo novamente irradiada por mais 1180 segundos. Novamente a irradiação

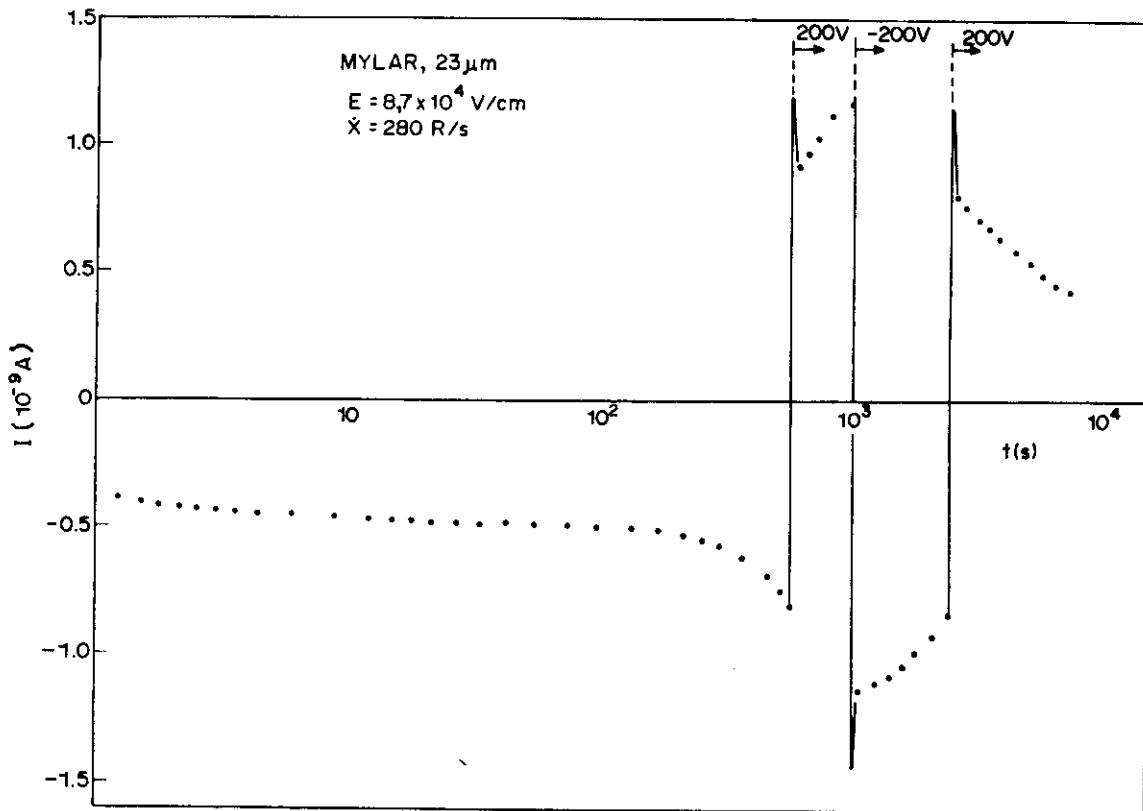


Figura 31. Corrente induzida com inversão do campo.
 $X = 280 \text{ R/s}$ e $E = 8,7 \times 10^4 \text{ V/cm}$.

ção foi interrompida, agora por 5540 segundos, voltando outra vez a incidir na amostra. O resultado é mostrado na figura 32.

Podemos observar que, na primeira interrupção, reinicia da a irradiação a corrente induzida voltou ao valor que possuía quando a irradiação foi cessada. Houve uma perfeita continuidade da evolução temporal da corrente induzida, demonstrando que seu comportamento temporal só depende da interação da radiação com o material e das características intrínsecas deste, tendo o processo cessado durante o período em que a amostra não foi irradiada. Porém, após a segunda interrupção, que durou 5540 segundos, reirradiada a amostra a corrente induzida atingiu um valor ligeiramen

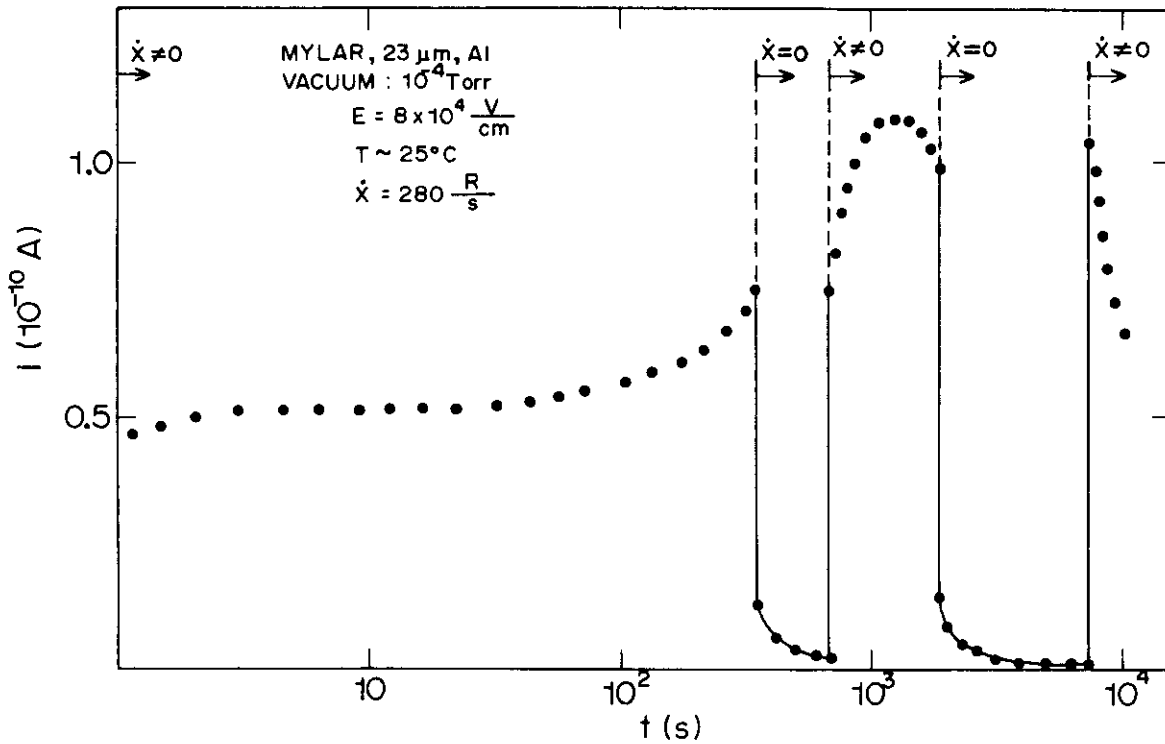


Figura 32. Corrente induzida com aplicação intermitente da radiação.

te maior que aquele que possuía no instante da interrupção. Essa diferença, ainda que pequena, pode indicar um leve efeito de polarização, que também poderia contribuir para a queda monotônica da corrente induzida. Durante o período em que a amostra permaneceu sem irradiação, esse efeito poderia ter se dissipado, ocasionando uma corrente ligeiramente maior no instante da reirradiação. Um provável efeito de polarização na amostra será discutido no capítulo VII.

3.A.4. RECUPERAÇÃO DE AMOSTRA IRRADIADA

Sucessivas irradiações em uma mesma amostra, fornecem resultados que dependem do intervalo de tempo entre as medidas, isto é, do tempo que a amostra permanece sem irradiação. Amostras virgens, quando irradiadas, apresentam sempre semelhantes compor-

mentos da corrente induzida com o tempo. Iniciada a irradiação, a corrente sobe rapidamente para um valor estacionário inicial, permanecendo com esse valor até um tempo t' , subindo em seguida para um máximo e, lentamente, caindo para um valor estacionário.

Porém, medidas realizadas com amostras já irradiadas mostram diferentes comportamentos da corrente induzida, sendo que esse comportamento depende do tempo decorrido entre duas medidas consecutivas. Se esse tempo for inferior a 10^5 segundos, a corrente induzida vai para o valor inicial quase estacionário, assim que se inicia a radiação, e após aproximadamente 400 segundos cai lentamente para o valor final estacionário, não apresentando qualquer elevação durante a irradiação. Gradualmente, se observa a recuperação da amostra com o aumento do tempo em que ela permanece sem irradiação.

A figura 33 mostra o comportamento da corrente induzida

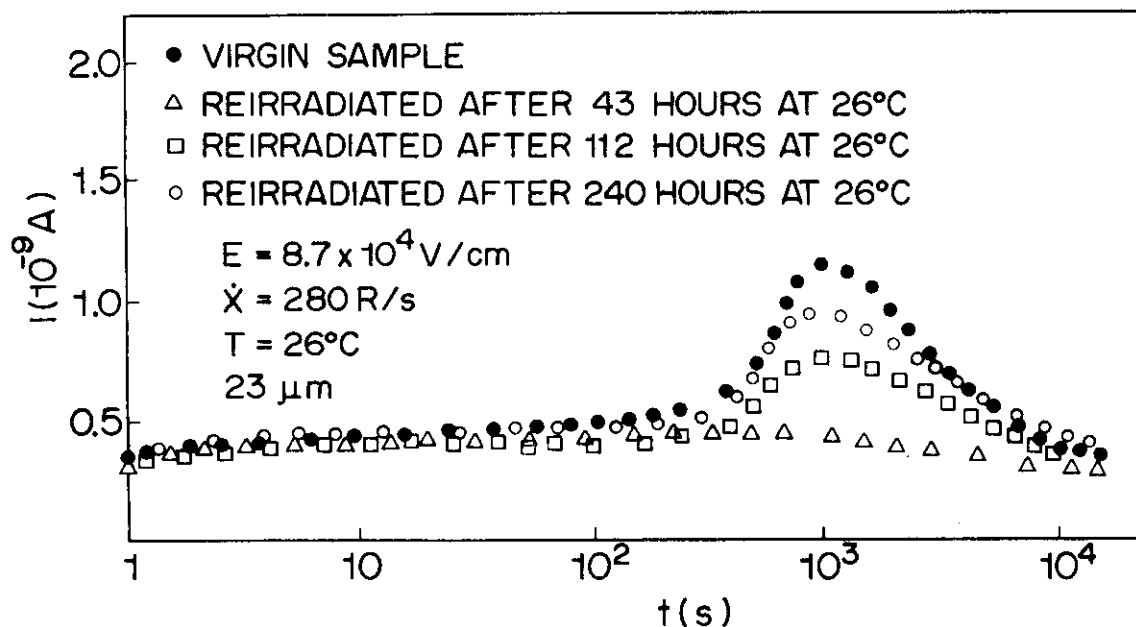


Figura 33. Recuperação da amostra irradiada (da referência 84).

quando uma mesma amostra é reirradiada, após ter permanecido pe-
ríodos crescentes sem sofrer irradiação. Essa amostra, de 23 μm , i-
nicialmente virgem, foi irradiada com uma taxa de exposição de
280 R/s e sob uma tensão de 200 V, por 7 horas (●). Após permane-
cer por 43 horas, contadas a partir do término da irradiação ante-
rior, a amostra foi novamente irradiada, nas mesmas condições (Δ).
Sucessivamente, a amostra foi reirradiada com intervalos de tempo
entre irradiações 112 horas (\square) e 240 horas (o). Entre as irradia-
ções a amostra permaneceu em curto, a 26°C e pressão atmosférica
(60% de umidade relativa do ar). A recuperação é lenta e, mesmo a
pós 240 horas, ainda não é total.

Em outro experimento, uma amostra virgem foi irradiada
por 7 horas, com $\dot{X} = 280$ R/s e $E = 1 \times 10^4$ V/cm. Após esse perío-
do a amostra permaneceu em curto, a pressão atmosférica e a uma
temperatura de 85°C por 2 horas. Em seguida a amostra foi nova-
mente irradiada, nas mesmas condições anteriores. Os resultados
são mostrados na figura 34. Nota-se uma evidente aceleração no
processo de recuperação da amostra devido ao aquecimento.

Os resultados obtidos fortalecem nossa hipótese de que o au-
mento da RIC, que tem início logo após o estado estacionário ini-
cial, é causado pela saturação de um nível de armadilhas. Esse ní-
vel deve ter um tempo de liberação (detrapping) muito longo à
temperatura ambiente, o que justifica a demora na recuperação da
amostra. O aquecimento causaria a depopulação das armadilhas por
ativação térmica, acelerando o processo de recuperação da amostra.

3.A.5. CORRENTE INDUZIDA ATRASADA (DRIC)

Depois de interrompida a irradiação em uma medida da
RIC, esta não desaparece instantaneamente, mas persiste durante

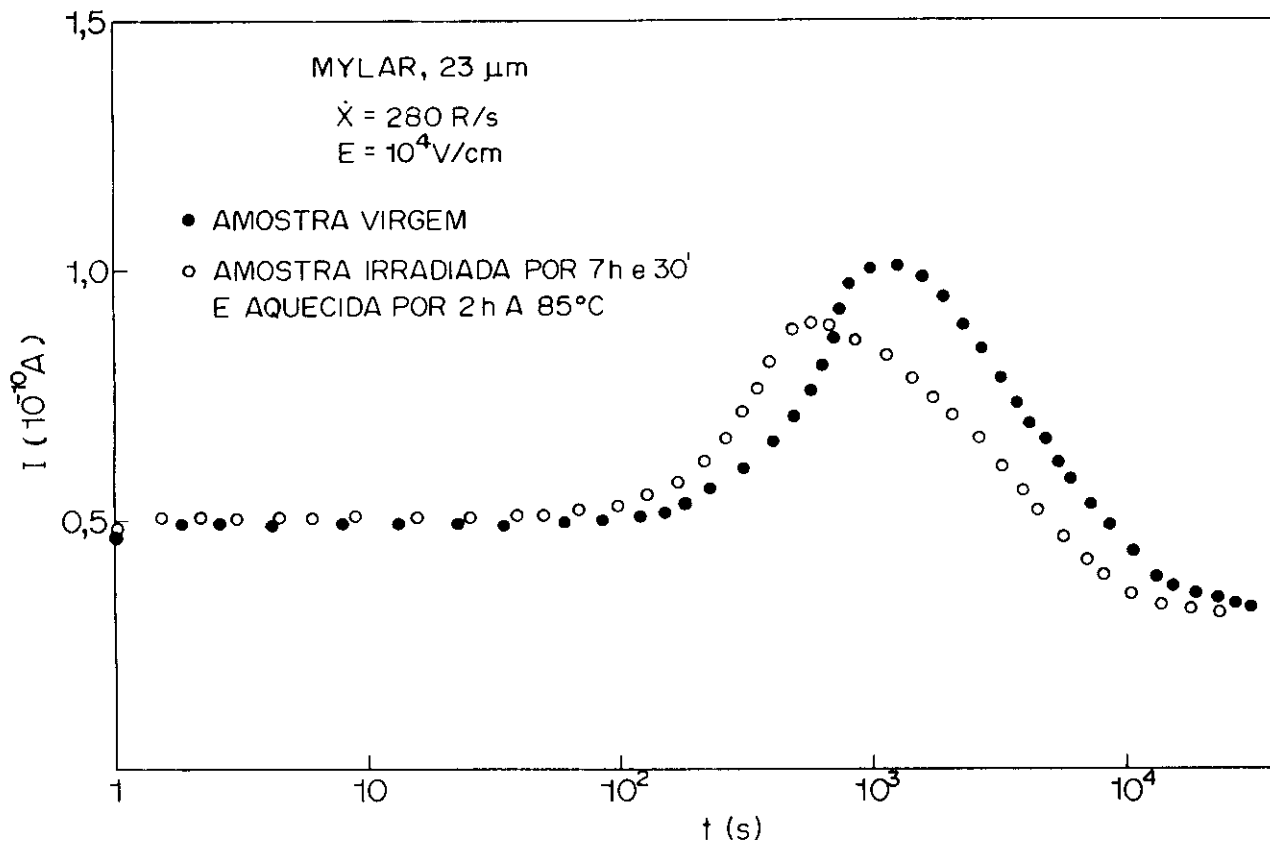


Figura 34. Recuperação por aquecimento. (●) Amostra não irradiada. (○) Amostra irradiada por 7 h e aquecida por 2 h a 85 °C.

algum tempo. Logo após a interrupção da irradiação, a corrente induzida cai bruscamente para uma fração do valor que possuía antes da interrupção. Essa fração depende do tempo de irradiação da amostra, como pode ser visto na figura 37. Logo após essa forte queda, tem início um decaimento mais lento, cuja evolução temporal é mostrada na figura 35, em escala log-log, para diferentes campos e taxas de exposição. Esta corrente que permanece mesmo após cessada a irradiação denomina-se corrente induzida atrasada, DRIC, e pode perdurar por várias horas.

A queda brusca inicial é causada pela interrupção da geração de portadores pela radiação ($g = 0$). A corrente induzida que persiste por um tempo muito mais longo que o tempo de vida dos

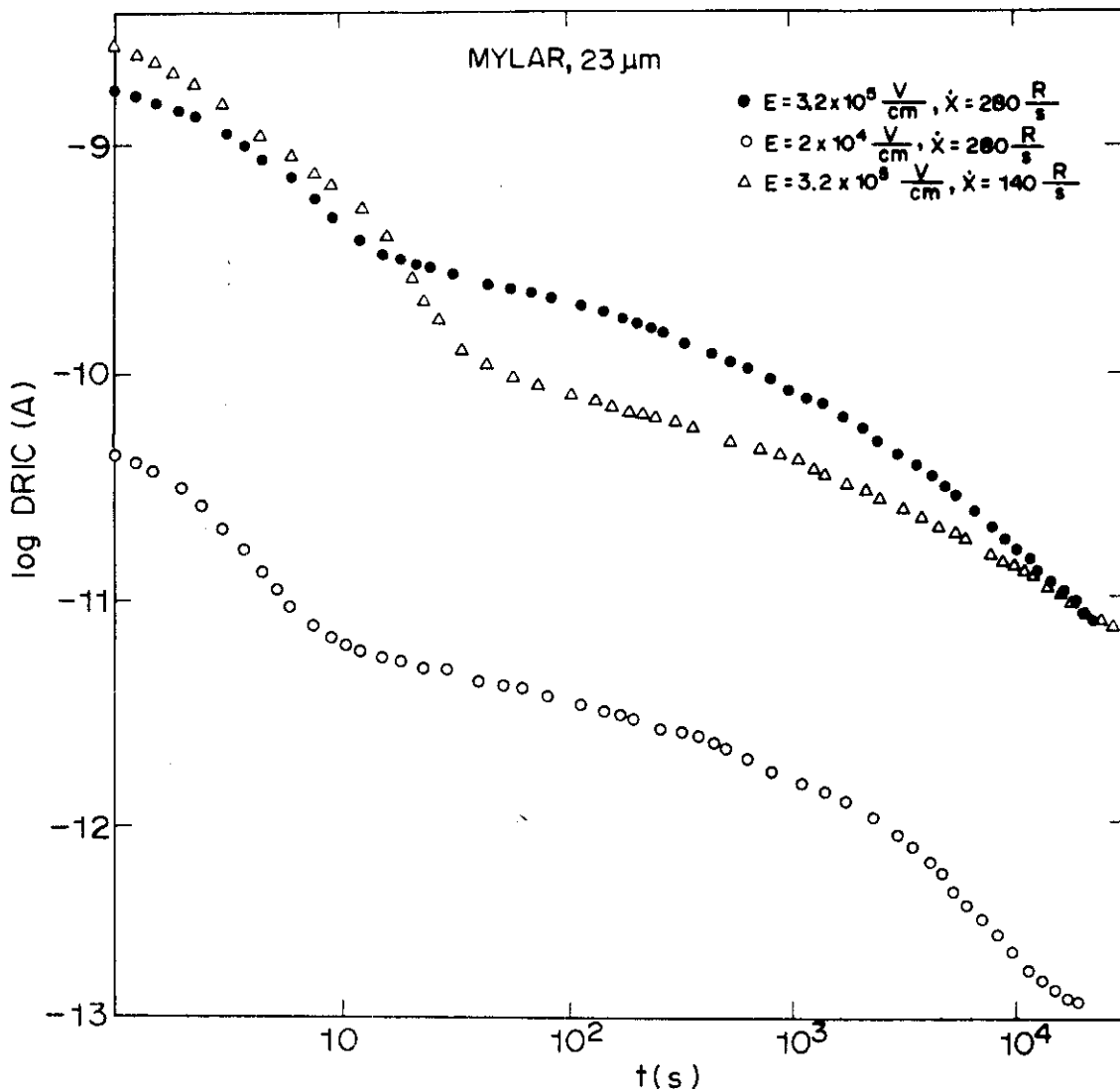


Figura 35. DRIC para diferentes campos e taxas de exposição (amostras irradiadas por aproximadamente 5 horas).

portadores fotoexcitados no material, é causada pela reemissão dos portadores aprisionados nas armadilhas profundas de volta à banda de condução.

Na figura 35 nota-se a presença de dois níveis com tempos de emissões diferentes (detrapping time). Pode-se observar ainda como a emissão do nível de maior tempo de escape inicia antes na amostra que recebeu maior dose total de irradiação (●). Esta

tem suas armadilhas mais preenchidas e, deste modo, maior será sua taxa inicial de emissão. O nível de menor tempo de escape praticamente não tem sua emissão influenciada pela dose total recebida pela amostra. Este resultado pode estar demonstrando que esse nível após 5 h de irradiação, já estará saturado com qualquer das duas doses, e portanto terá o mesmo número de portadores aprisionados.

Outra observação interessante, ainda na figura 35, é que as duas amostras que receberam a mesma dose total, porém sujeitas a intensidades de campos diferentes, apresentam semelhantes quedas das DRIC. Isto demonstra que o campo está tendo pouca ou nenhuma influência na taxa de emissão de portadores das armadilhas. Portanto, se estiver ocorrendo efeito Poole-Frenkel [62] sua influência na emissão é muito pequena para a intensidade do campo utilizada.

A figura 36 mostra o comportamento da DRIC, em função do tempo, para diferentes tempos de irradiação sofrida pela amostra.

- a) Irradiada por 3 minutos. A irradiação foi interrompida quando a corrente induzida se encontrava no estado estacionário inicial (●).
- b) Irradiada por 10 minutos. Nesse instante a corrente induzida aumentava, quase atingindo seu máximo valor (Δ).
- c) Irradiada por 5 horas, estando o estado estacionário final quase atingido (o).

Pode-se notar claramente como a queda da DRIC na amostra que sofreu só 3 minutos de irradiação é mais acentuada. Nesse tempo, poucas armadilhas foram preenchidas, causando uma baixa taxa de emissão.

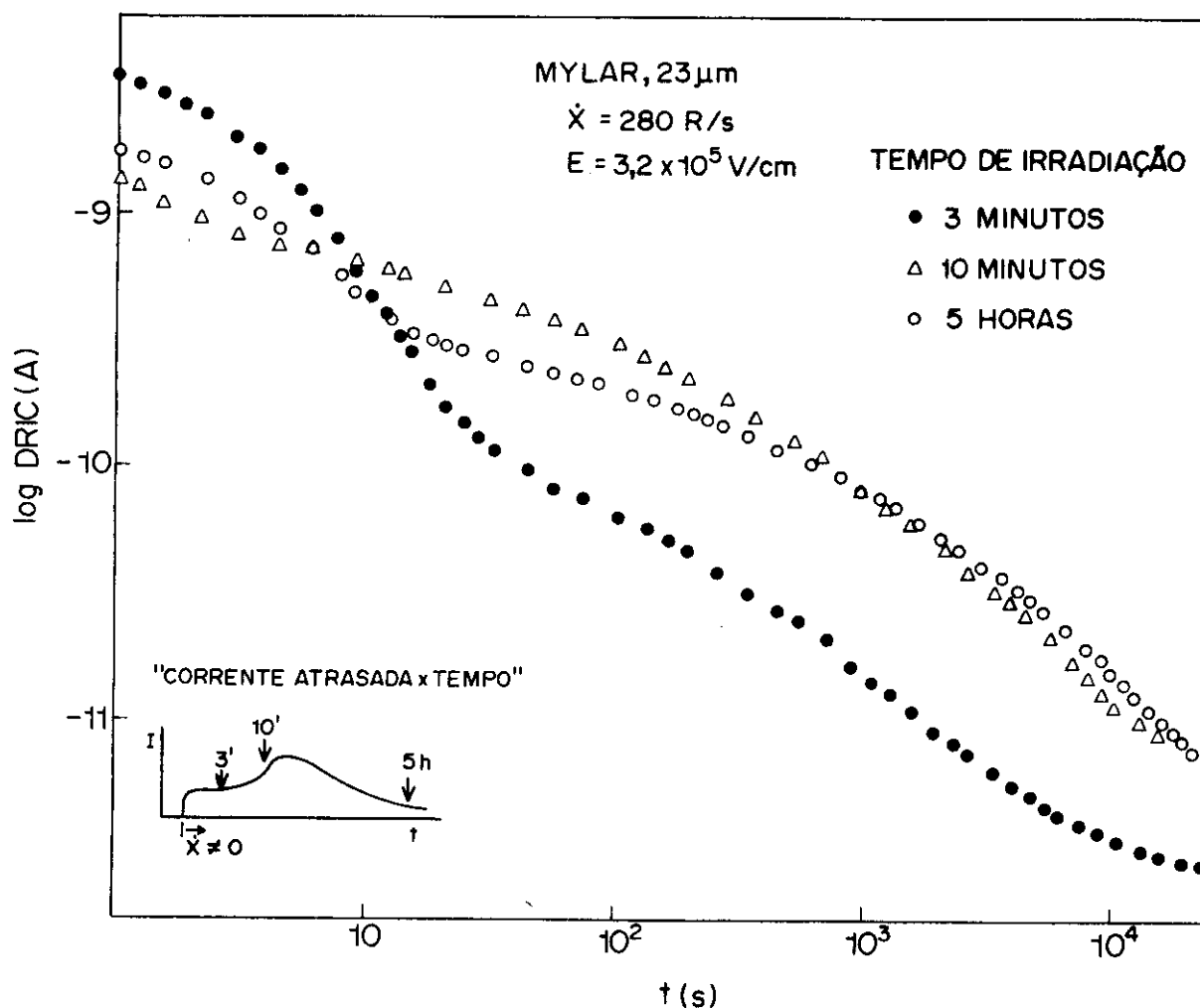


Figura 36. Corrente atrasada para diferentes tempos de irradiação.

É interessante observar a queda brusca da corrente atrasada, que ocorre no instante em que a irradiação é interrompida. A figura 37 mostra essa queda para as três medidas citadas. Para a amostra menos irradiada, a corrente cai mais lentamente no início, porém, após 7 segundos de cessada a irradiação, sua queda é mais acentuada que para as amostras mais irradiadas. A amostra irradiada por 10 minutos, apresentou uma queda bastante brusca na corrente atrasada nos 3 primeiros segundos, porém sua queda passou a ser a mais lenta desse instante em diante.

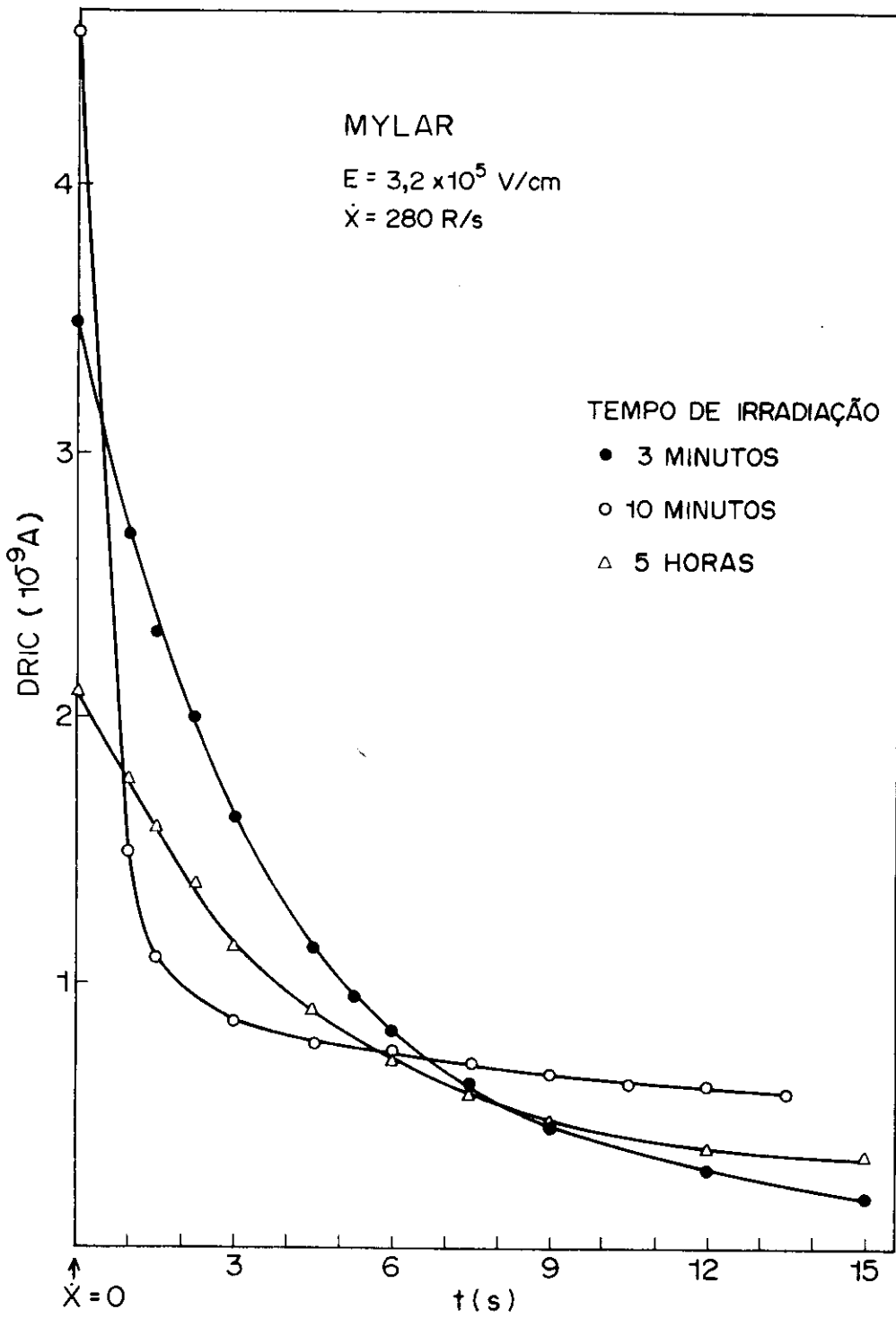


Figura 37. Comportamento da corrente atrasada, nos primeiros segundos após cessada a irradiação, para diferentes tempos de irradiação (diferentes doses absorvidas).

3.B. MEDIDAS NO KAPTON

3.B.1. MEDIDAS DA RIC

Para o Kapton também foram realizadas várias medidas da RIC em diferentes condições. Todas as medidas foram feitas no vácuo (10^{-4} Torr), à temperatura ambiente (26°C) e utilizando eletrodos de alumínio (com excessão dos resultados apresentados no item 3.B.1.4.).

3.B.1.1. EFEITO DA VARIAÇÃO DO CAMPO

As figuras 38 e 39 mostram a variação da RIC com o tem-

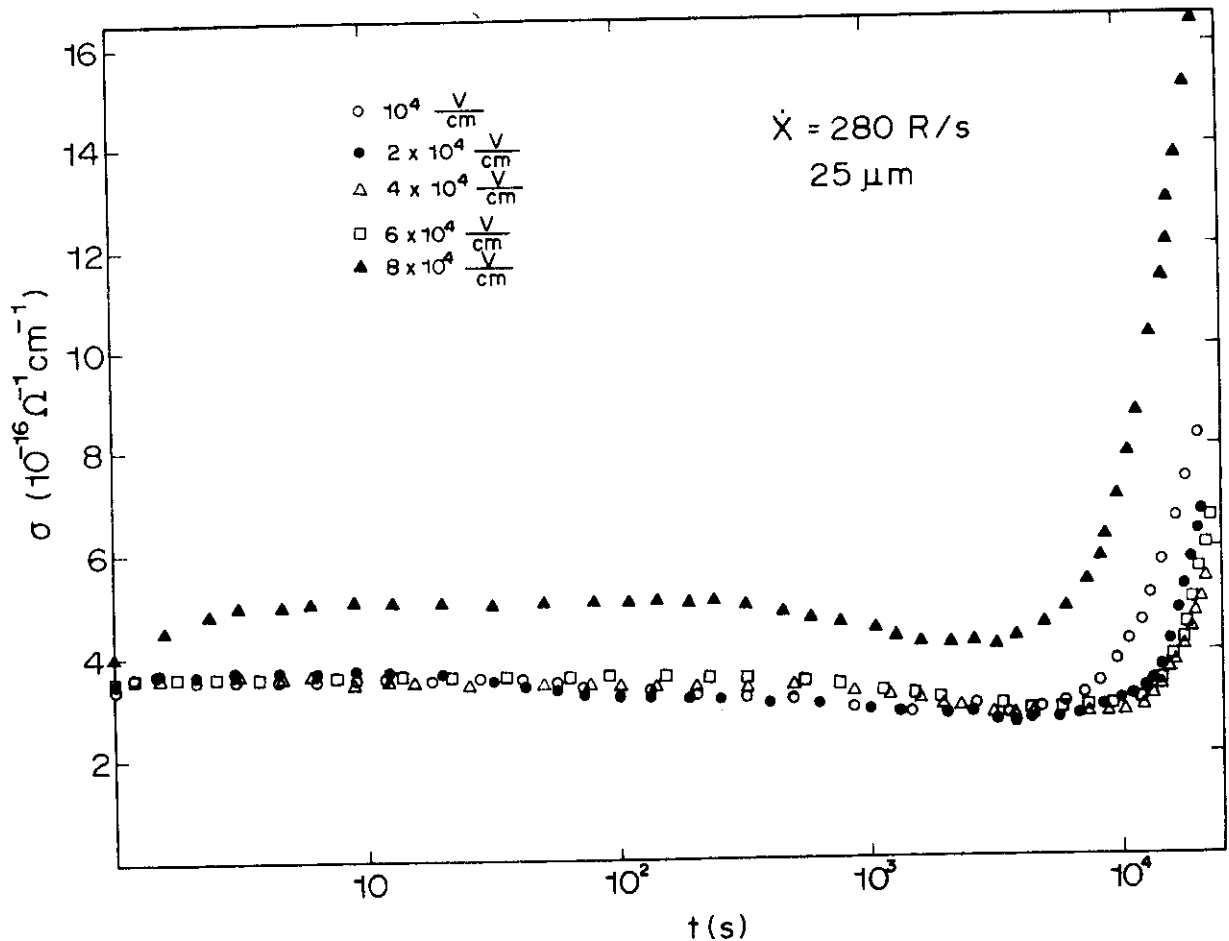


Figura 38. RIC para diferentes campos (intensidades baixas).

po, este em escala logarítmica, para uma taxa de exposição de 280 R/s e espessura da amostra de 25 μm , com diferentes campos aplicados.

A RIC apresenta um rápido crescimento, assim que se inicia a irradiação, permanecendo em um valor quase estacionário por um tempo t' , em seguida tem um ligeiro decréscimo até atingir outro estado estacionário, no qual permanece um tempo t'' . Após esse tempo, a RIC apresenta um forte crescimento, que continua mesmo após 7 horas de irradiação. Os tempos t' e t'' dependem do campo aplicado, como se pode observar nas figuras 38 e 39. Como exemplo, para um campo de $8 \times 10^4 \text{ V/cm}$, $t' = 250$ segundos e $t'' = 1800$ segundos.

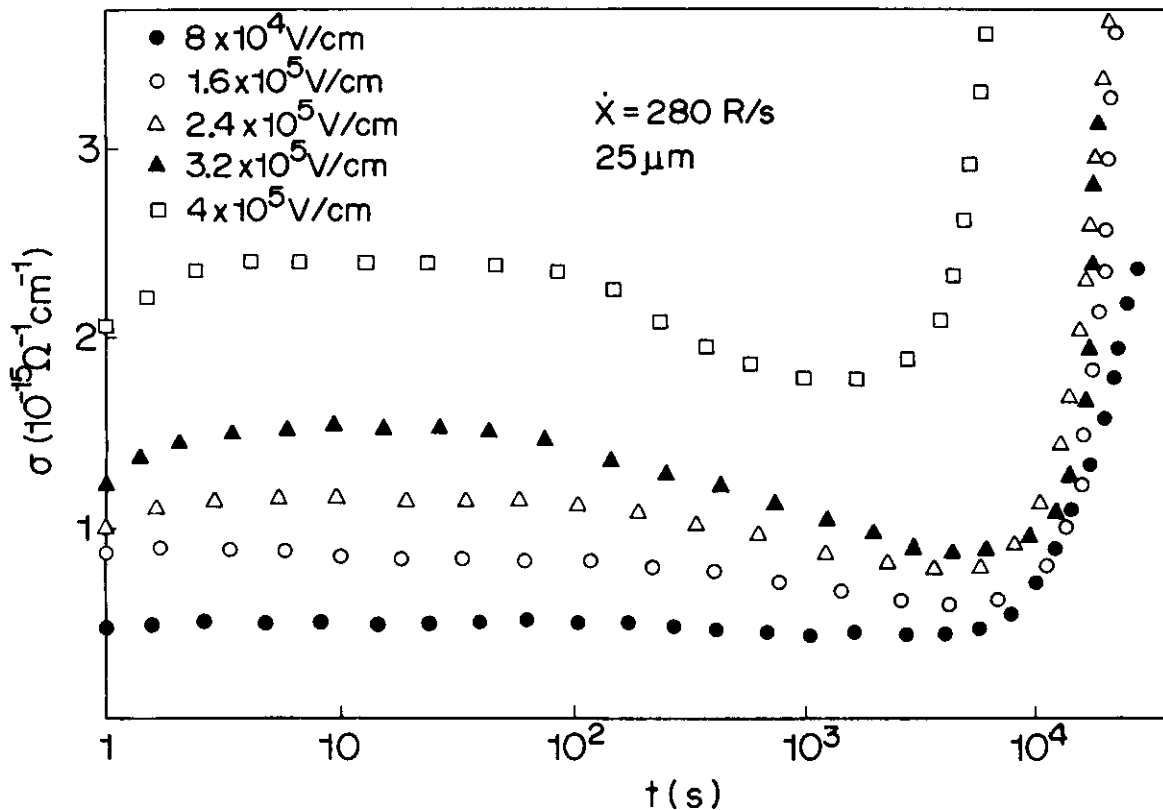


Figura 39. RIC para diferentes campos (intensidades altas).

A RIC estacionária inicial e a estacionária que antecede seu forte crescimento, praticamente independem da intensidade do campo aplicado para $E < 6 \times 10^4$ V/cm. Campos com intensidades superiores alteram fortemente esses valores. Esse resultado pode ser visto na figura 40, que mostra a variação da corrente induzida estacionária inicial, após 10 segundos de irradiação, com o campo aplicado. Para baixas intensidades do campo a RIC apresenta um comportamento ôhmico. Com a aplicação de campos superiores a 6×10^4 V/cm a corrente induzida passa para um comportamento superôhmico. Esse resultado será interpretado no capítulo VIII segundo a teoria de Onsager [64].

Ainda na figura 39 pode-se observar que o aumento do campo não só influi no tempo de início do decréscimo da RIC, mas também na intensidade desse decréscimo. Campos mais elevados causam diminuição mais brusca da RIC.

O forte crescimento da RIC, que tem início logo após o segundo estado estacionário, pode ter como causa a saturação de um ou mais níveis de armadilha.

3.B.1.2. EFEITO DA VARIAÇÃO DA TAXA DE EXPOSIÇÃO

Foram realizadas medidas da RIC com diferentes taxas de exposição, conforme ilustra a figura 41. As amostras foram de 25 μm e sob um campo de 8×10^4 V/cm.

Neste caso o aumento da taxa de exposição provoca inicialmente um decréscimo mais acentuado na RIC e, posteriormente, uma antecipação e intensificação no seu forte crescimento. Essa antecipação corrobora com a hipótese de que a elevação da RIC é causada pela saturação de um ou mais níveis de armadilhas. Maior taxa de exposição leva a uma maior geração de portadores, e mais

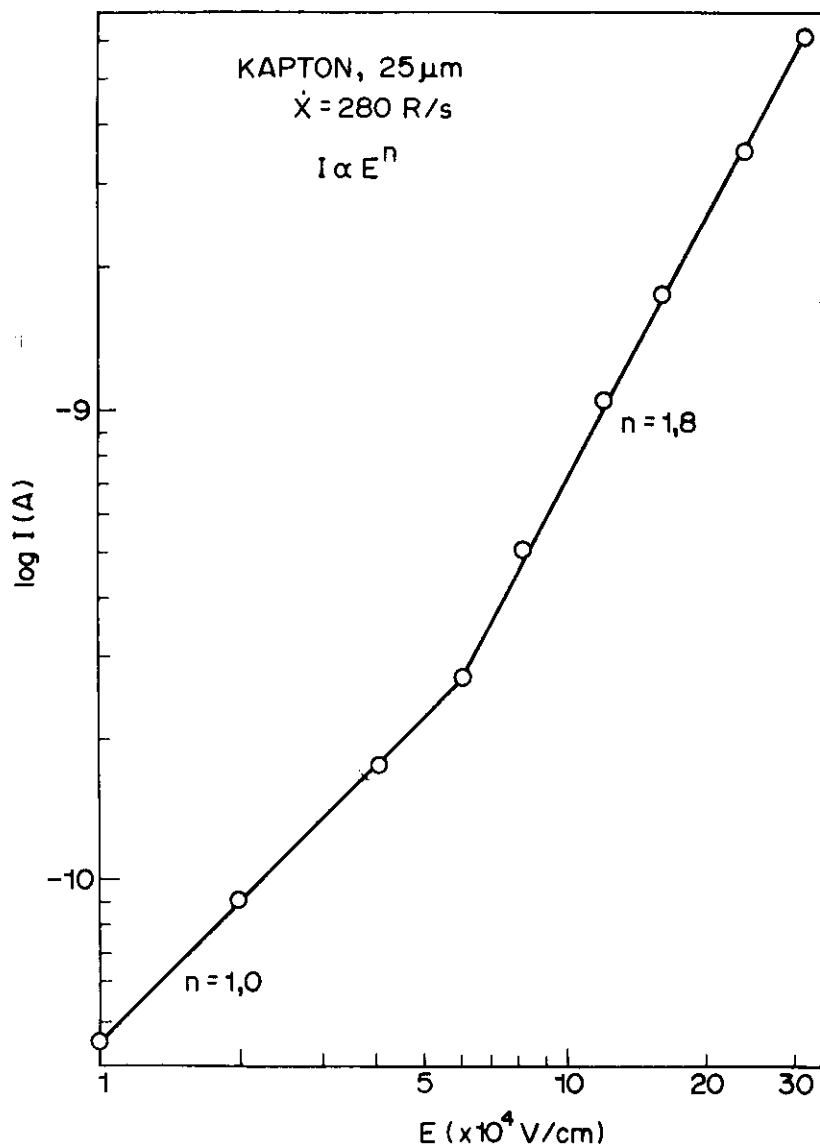


Figura 40. Corrente induzida estacionária inicial, após 10 segundos de irradiação, em função do campo elétrico aplicado.

rapidamente as armadilhas são preenchidas.

O valor da corrente induzida estacionária, que antecede o forte crescimento, em função da taxa de exposição é mostrado na figura 42, para vários campos aplicados e espessuras das amostras.

A corrente induzida estacionária para o Kapton segue uma lei de potência semelhante a obtida para o PET:

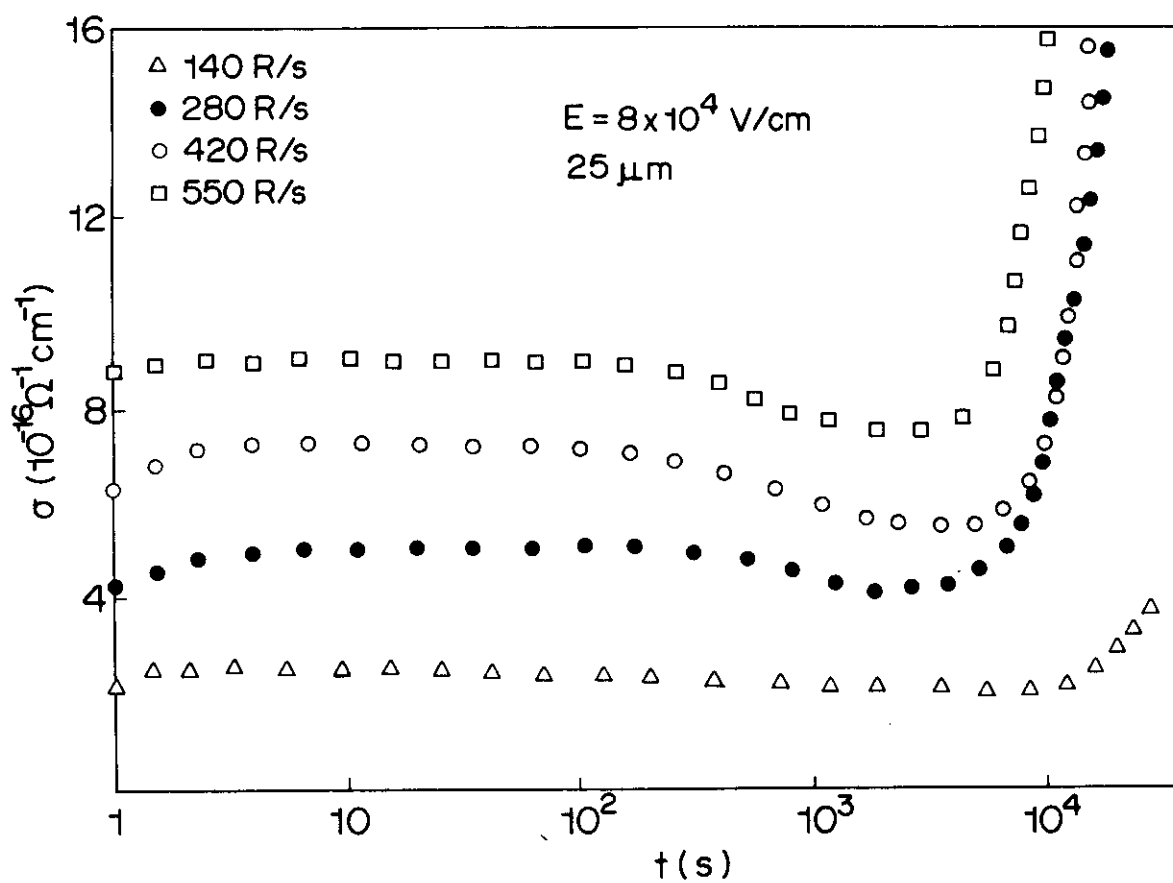


Figura 41. RIC para diferentes taxas de exposição.

$$I \propto \dot{X}^\Delta$$

onde $\Delta = 0,93 \pm 0,01$, independente do campo e da espessura da amostra, para os valores cobertos em nossas medidas.

3.B.1.3. EFEITO DA ESPESSURA DA AMOSTRA

As medidas da RIC em função do tempo para diferentes espessuras da amostra estão na figura 43.

A influência da espessura da amostra é mais notável no Kapton que no PET. Com exceção das amostras de 6 e 12,5 μm , a RIC estacionária inicial é fortemente influenciada pela espessura da amostra. O início e a intensidade do decréscimo apresentado pe

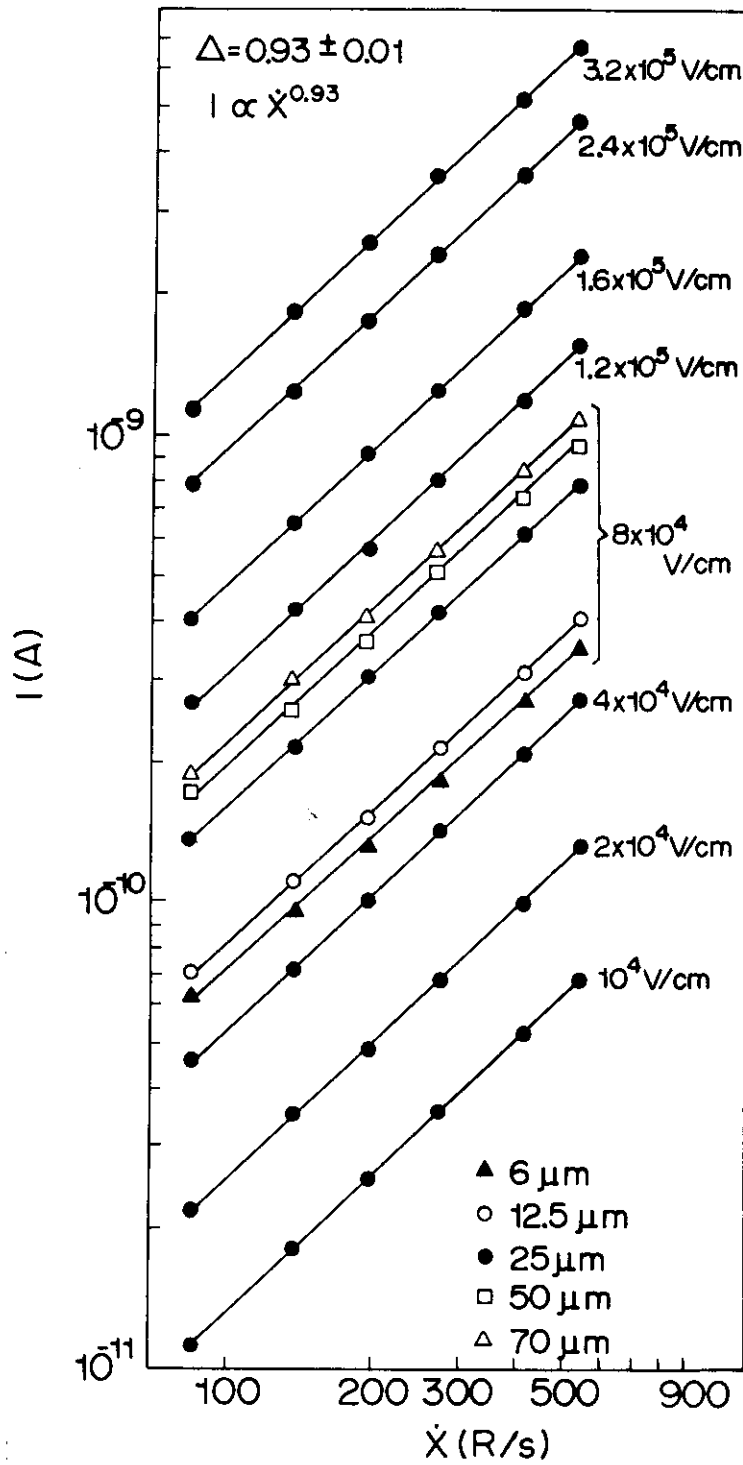


Figura 42. Corrente induzida estacionária em função da taxa de exposição, para vários campos e espessuras das amostras (corrente estacionária que antecede o seu forte crescimento).

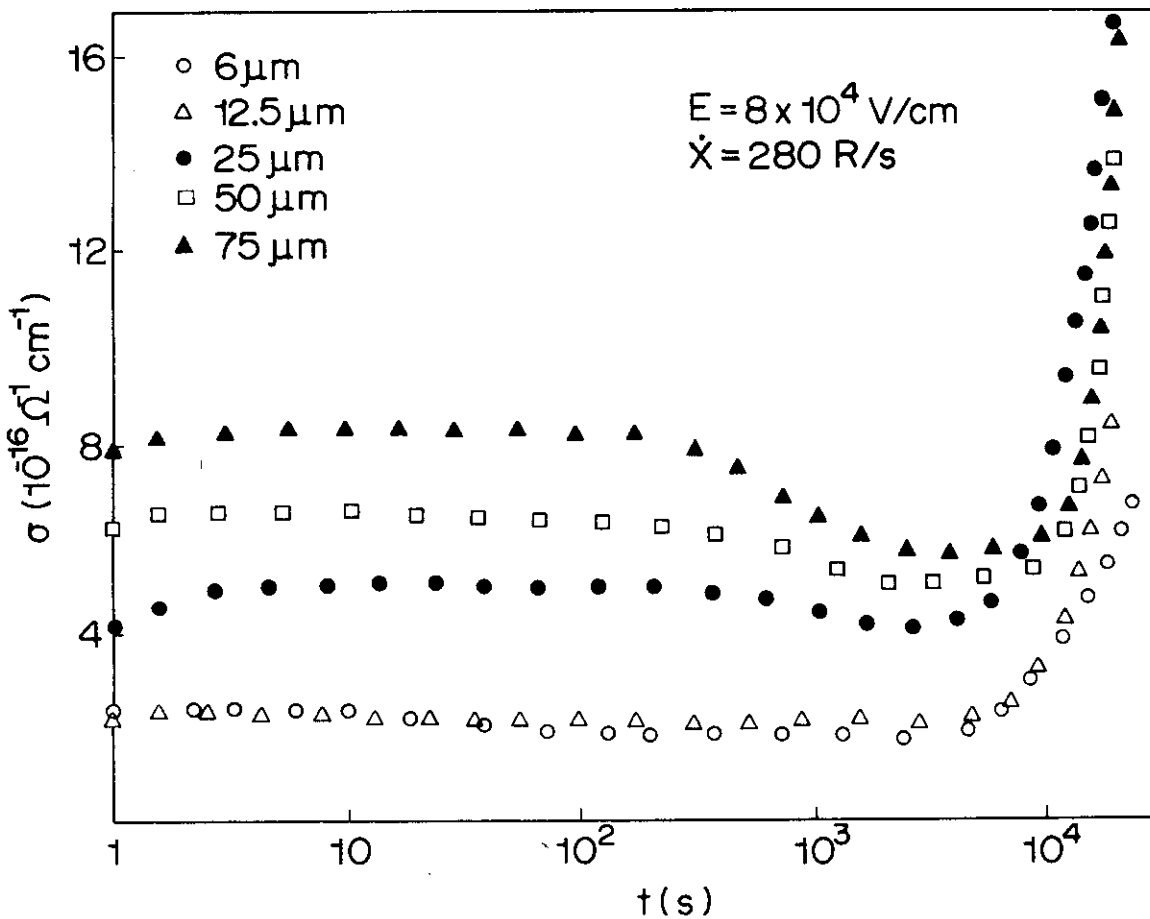


Figura 43. RIC em função do tempo para diferentes espessuras da amostra.

la RIC também são dependentes da espessura da amostra. Amostras mais espessas apresentam essa diminuição antecipada e mais intensa. Esse efeito é semelhante ao causado pelo aumento do campo e será discutido no capítulo VII.

3.B.1.4. EFEITO DOS ELETRODOS

A figura 44 apresenta os resultados da medida da RIC para duas amostras de $25 \mu\text{m}$, com $E = 8 \times 10^4 \text{ V/cm}$ e $\dot{\chi} = 280 \text{ R/s}$, uma com eletrodos de ouro (o) e a outra de alumínio (●). A troca do eletrodo de alumínio pelo de ouro causou um aumento no valor

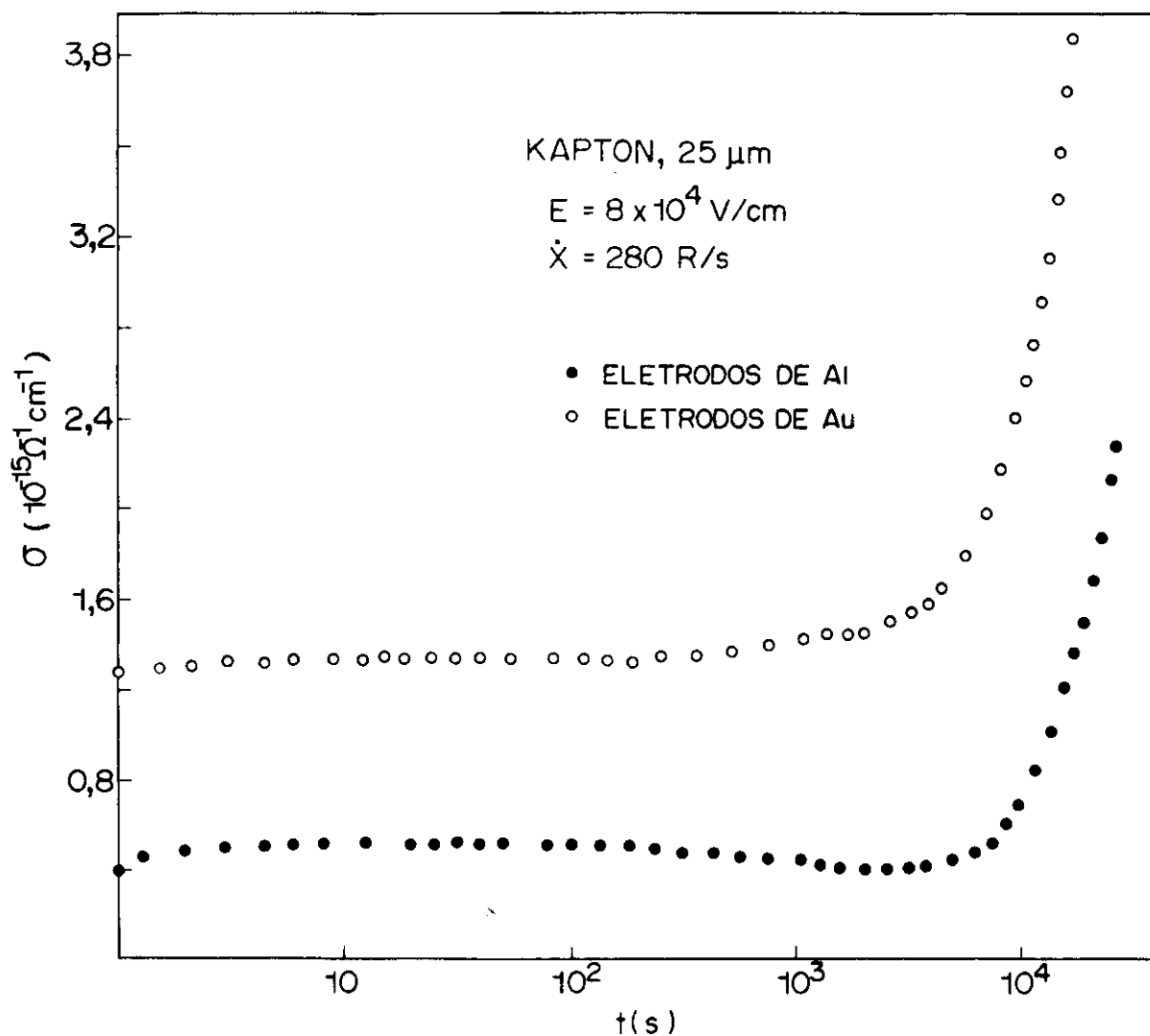


Figura 44. RIC para diferentes eletrodos.

da RIC. Este resultado já era esperado, uma vez que essa troca causa um aumento na taxa de exposição recebida pela amostra. Um resultado inesperado foi a inexistência de qualquer decréscimo da RIC na medida que utilizou eletrodo de ouro. Como vimos na figura 41, esse decréscimo é intensificado pelo aumento da taxa de exposição. Portanto era de se esperar uma diminuição mais acentuada na RIC quando o eletrodo de ouro foi usado. Porém, essa medida não apresentou, em nenhum instante durante a irradiação, qualquer diminuição da RIC. Aparentemente o efeito que causa essa queda no valor da RIC não se manifesta, ou é desprezível, quando eletrodo de ouro é usado. Este resultado será discutido no Cap. VII.

3.B.1.5. VARIACÃO DA ENERGIA DA RADIAÇÃO

Variando-se a tensão aceleradora dos elétrons no dispositivo produtor de raio-X, pode-se variar a energia média da radiação. Nas medidas apresentadas na figura 45, a corrente do tubo foi mantida constante e igual a 10 mA, e a tensão foi de 75 KV em uma medida e 95 KV em outra. As amostras foram de 25 μm e sob um campo de 8×10^4 V/cm. Pode-se notar a pouca influência da variação da energia média da radiação no comportamento da RIC.

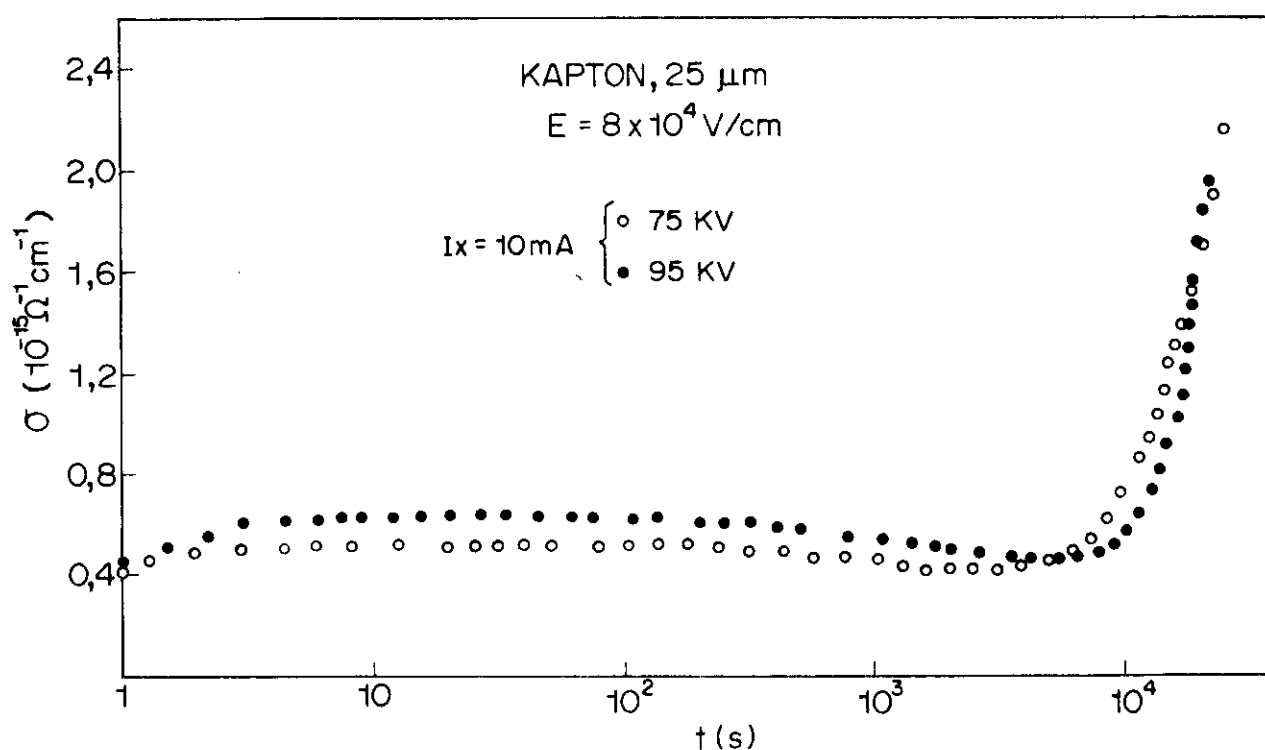


Figura 45. RIC para diferentes energias médias da radiação.

3.B.2. CORRENTE INDUZIDA COM INVERSÃO DO CAMPO

A figura 46 mostra o comportamento da corrente induzida quando a polaridade da tensão aplicada é invertida. Pode-se notar que a inversão da polaridade causou uma ligeira diminuição no valor da corrente induzida. Este resultado, diferente daquele obser

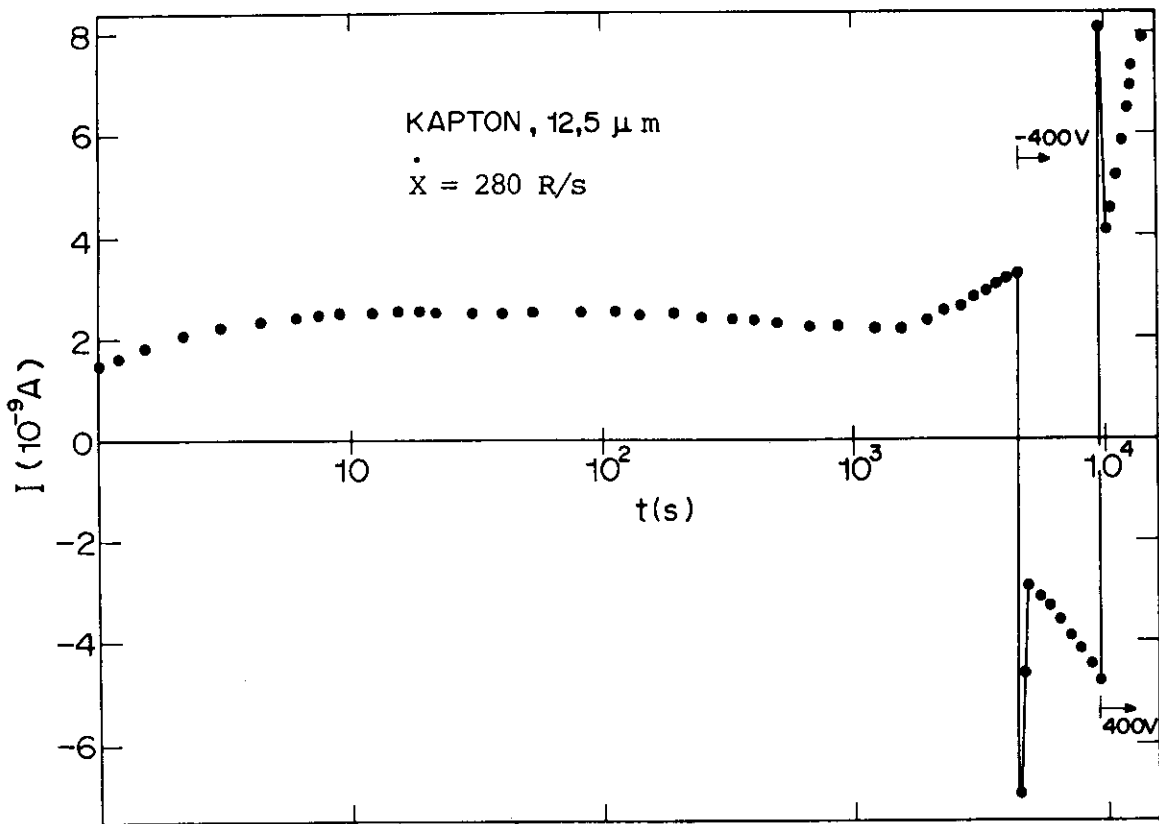


Figura 46. Corrente induzida com inversão da polaridade. A medida iniciou com 400 V aplicado. Após 4570 segundos de irradiação, a tensão teve a polaridade invertida (- 400 V), permanecendo assim por 4890 segundos. Em seguida a polarização foi novamente invertida (400 V).

vado no PET, pode indicar a existência de um efeito de polarização nesse material. Esse efeito, apesar de alterar ligeiramente o valor da corrente induzida, não deve ser o responsável pelo forte crescimento desta, pois, se fosse, a corrente deveria cair para um valor próximo daquele que possuía no início da sua subida, em cada inversão de polaridade. Discutiremos este efeito no capítulo VII. A hipótese de que a elevação da RIC seja causada pela saturação de um ou mais níveis de armadilhas fica agora mais fortalecida.

3.B.3. RECUPERAÇÃO DE AMOSTRA IRRADIADA

Semelhante ao que ocorreu com o PET, amostras de Kapton irradiadas apresentaram comportamento da RIC com o tempo diferentes em uma segunda irradiação. Na figura 47 são mostradas três medidas realizadas com uma mesma amostra, cuja espessura foi de 25 μm .

- a) Amostra ainda virgem. Irradiada por 7 horas, com uma taxa de exposição de 280 R/s e um campo elétrico de $1,2 \times 10^5$ V/cm (●).
- b) Reirradiada, nas mesmas condições, após permanecer por 15 horas sem irradiação, em curto, no ar e a temperatura ambiente (o).
- c) Reirradiada, ainda nas mesmas condições, após permanecer por 3 horas a 80°C , em curto e no ar (Δ).

Houve uma aceleração no processo de recuperação da amostra com o aquecimento. Foi observado também que a recuperação da amostra à temperatura ambiente é muito lenta, não sendo completa mesmo após 10 dias.

A suposição da saturação de um ou mais níveis de armadilhas, durante a irradiação, fica agora mais evidenciada. O aquecimento auxiliaria a liberação dos portadores aprisionados nas armadilhas profundas, recuperando mais rapidamente a amostra.

3.B.4. CORRENTE INDUZIDA ATRASADA (DRIC)

Foram feitas várias medidas da corrente atrasada para diferentes campos aplicados e diferentes taxas de exposição. As figuras 48 e 49 mostram os resultados obtidos para a parte lenta

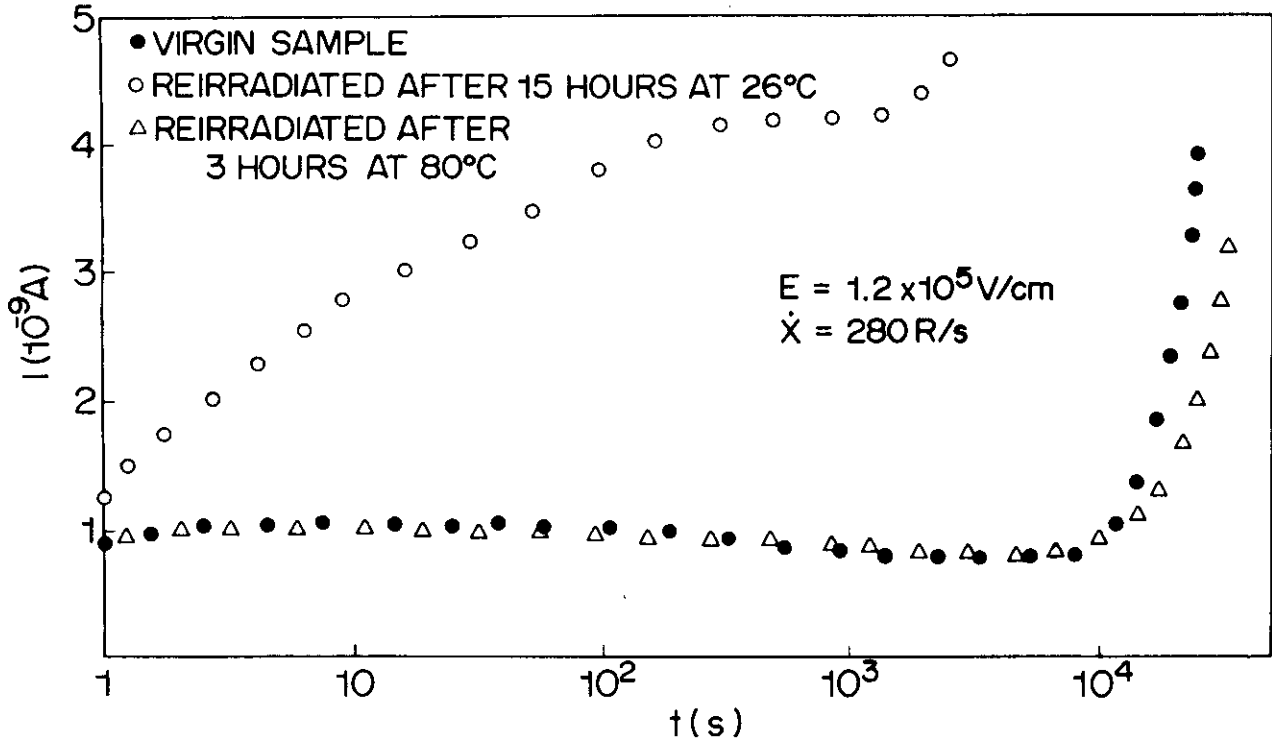


Figura 47. Recuperação da amostra (da referência 84).

da DRIC.

Neste caso a queda da DRIC com o tempo parece indicar a presença de armadilhas distribuídas uniformemente. O aumento da taxa de exposição e da intensidade do campo só influenciaram no valor da DRIC, praticamente não alterando a intensidade da queda. Novamente os resultados mostram que, se houver efeito Poole-Frenkel [62], sua influência é muito pequena para as intensidades de campos utilizadas.

Foram feitas, ainda, medidas da DRIC para amostras irradiadas por tempos diferentes. Uma amostra, de 25 μm de espessura e sob um campo elétrico de 8×10^4 V/cm, foi irradiada por 37 minutos, instante em que o estado estacionário da corrente induzida, que antecede a rápida subida, foi atingido. Nesse momento a irradiação foi interrompida e a DRIC medida, estando o resultado na figura 50 (o). Outra amostra foi irradiada, nas mesmas condições

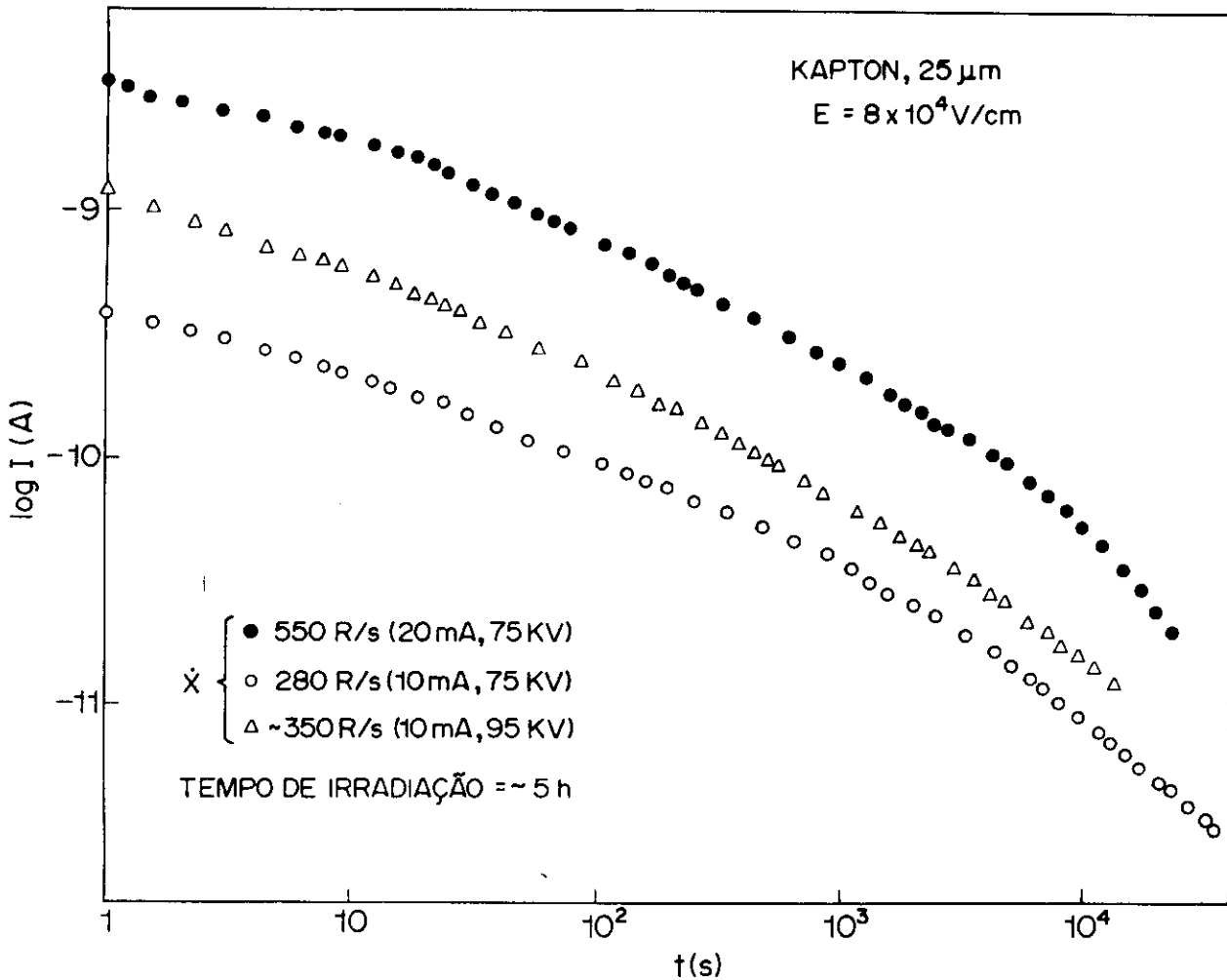


Figura 48. DRIC em função do tempo para diferentes taxas de exposição. As amostras foram irradiadas por 5 horas antes de cada medida.

da primeira, por 4 horas e 40 minutos, e cessada a irradiação a DRIC foi medida (●). Nota-se, claramente, a diferença no comportamento temporal da DRIC para as amostras irradiadas, por tempos diferentes. A DRIC da amostra irradiada por menos tempo cai mais rapidamente e apresenta dois níveis de armadilhas com diferentes tempos de emissão.

É interessante notar a diferença na queda rápida da DRIC, logo após os primeiros segundos em que a irradiação é interrompida, para os dois casos citados. A figura 51 mostra que para a amostra mais irradiada, a queda da DRIC no primeiro segundo, após cessada a irradiação, é bastante acentuada. Por outro lado, a DRIC para a amostra menos irradiada cai bem mais lentamente nesse

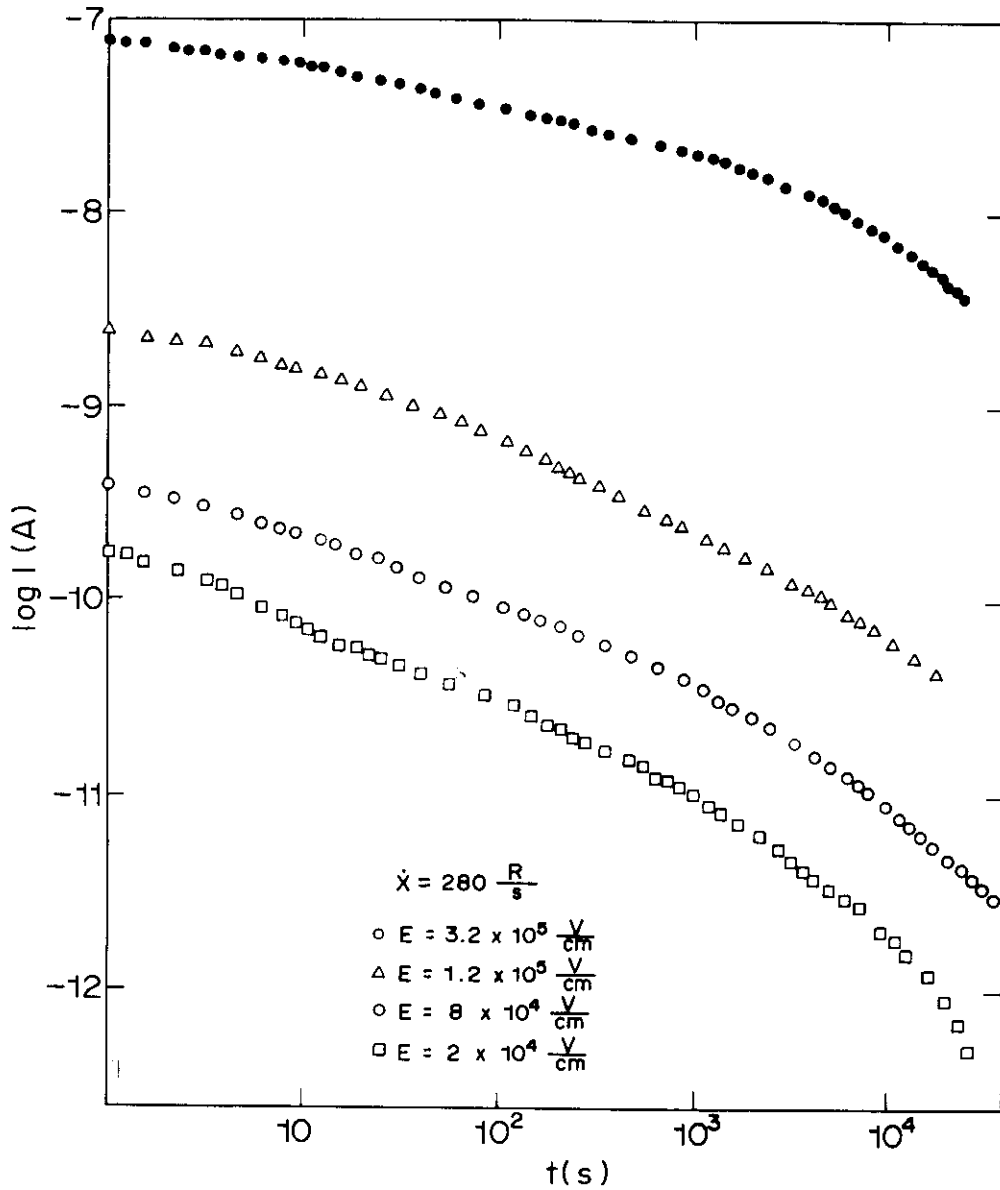


Figura 49. DRIC em função do tempo para diferentes campos aplicados. As amostras foram irradiadas por ~ 5 horas antes de cada medida.

mesmo instante, resultando valores da DRIC praticamente iguais para as duas amostras, após 1 segundo de interrompida a irradiação. Nos instantes seguintes a DRIC da amostra menos irradiada cai

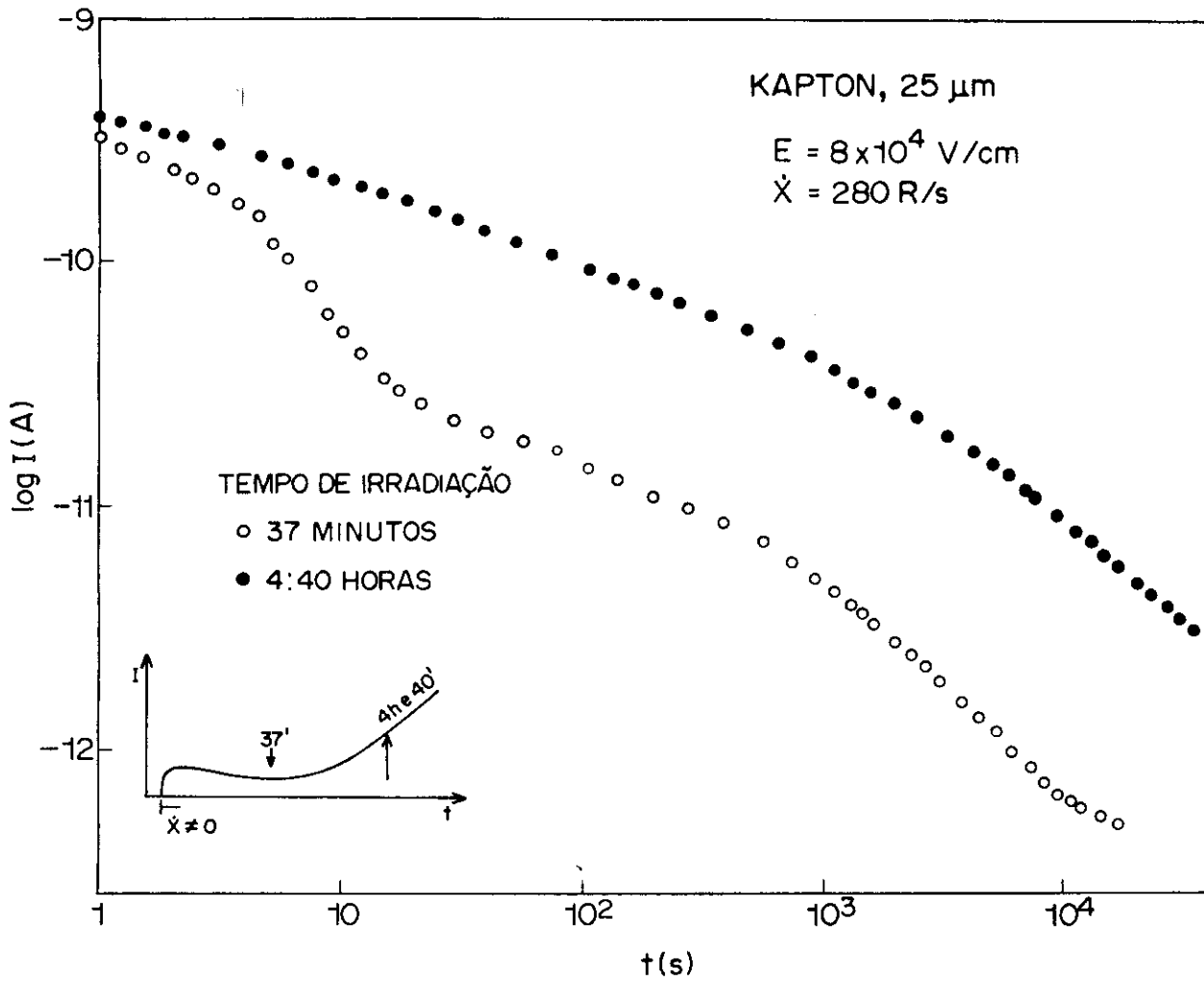


Figura 50. DRIC em função do tempo para amostras irradiadas por tempos diferentes.

mais rapidamente, como já havíamos observado.

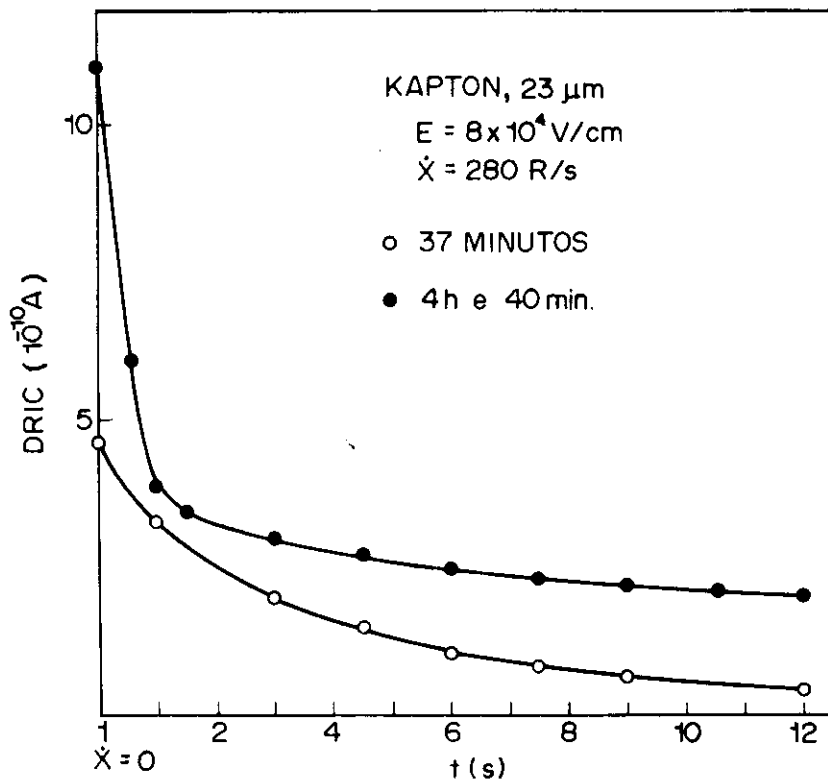


Figura 51. DRIC em função do tempo, nos primeiros segundos após interrompida a irradiação, para amostras irradiadas por tempos diferentes.

CAPÍTULO IV

CORRENTE FOTÔNICA

4.1. PET

No Capítulo I nos referimos a corrente que surge em uma amostra irradiada mesmo sem tensão aplicada. Essa corrente gerada pelo feixe direcional de raio-x que incide no material, tem direção oposta ao de incidência da radiação. Portanto, em todas as medidas apresentadas neste trabalho, esta corrente foi subtraída ou somada à corrente induzida, dependendo da tensão aplicada à amostra ser positiva ou negativa, respectivamente. Foram feitas várias medidas da corrente fotônica, sem e com a amostra compensadora mencionada no Capítulo II. A Figura 52 mostra a relação entre a fotônica e a taxa de exposição, para amostras de várias espessuras, sem a amostra compensadora e com eletrodos de alumínio.

Essa corrente aumenta consideravelmente para amostras de menores espessuras. A variação da fotônica em função da espessura da amostra, para três taxas de exposições, pode ser vista na Figura 53.

Quando a amostra compensadora é introduzida no sistema de medida, a corrente fotônica diminui em cerca de 30 vezes, tornando, deste modo, seu valor muito menor que o da corrente induzida. A variação da fotônica, com a amostra compensadora, em função da taxa de exposição é mostrada na Figura 54.

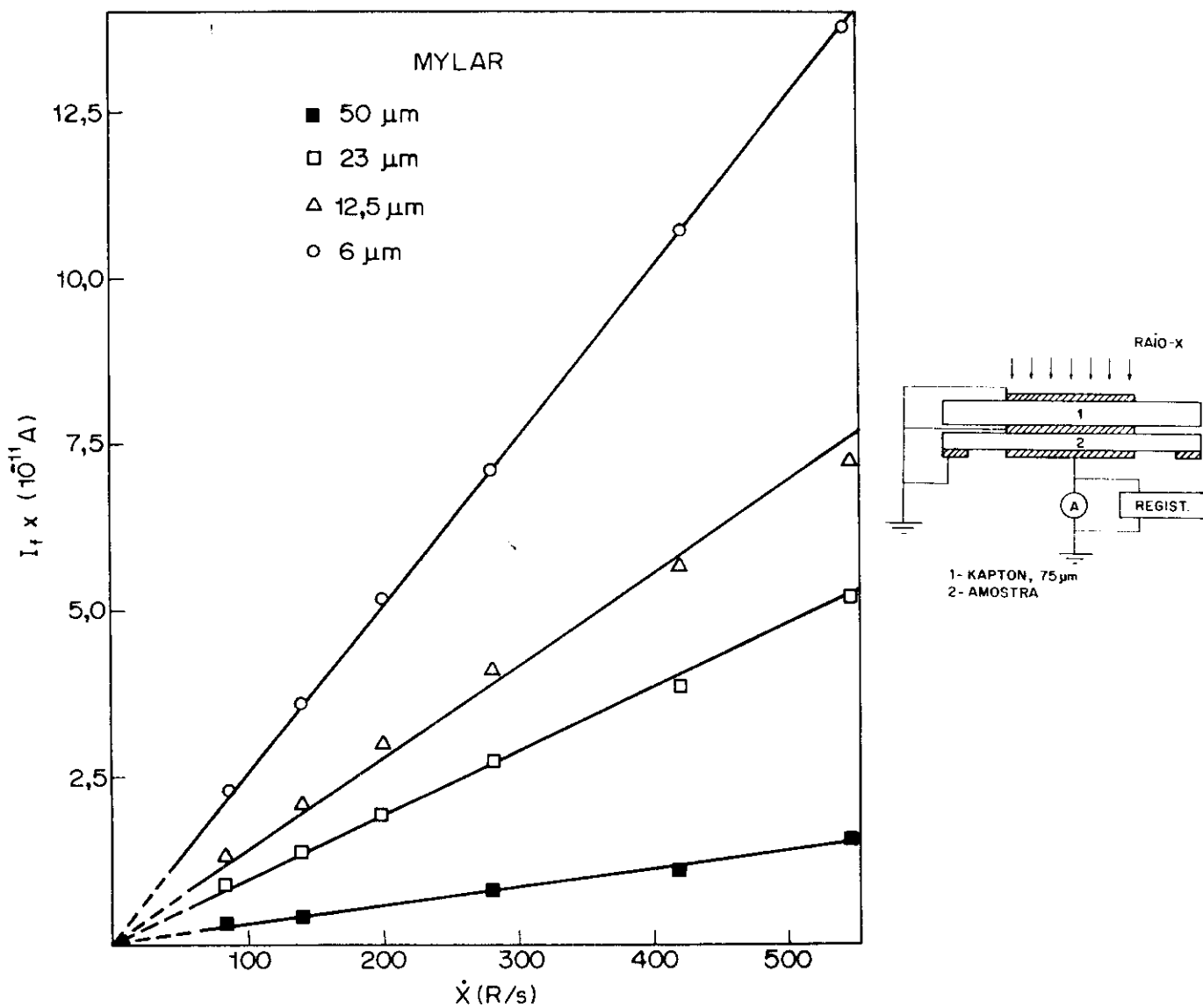


Figura 52. Corrente fotônica em função da taxa de exposição, para várias espessuras da amostra, sem a amostra compensadora (conforme ilustra esquema ao lado).

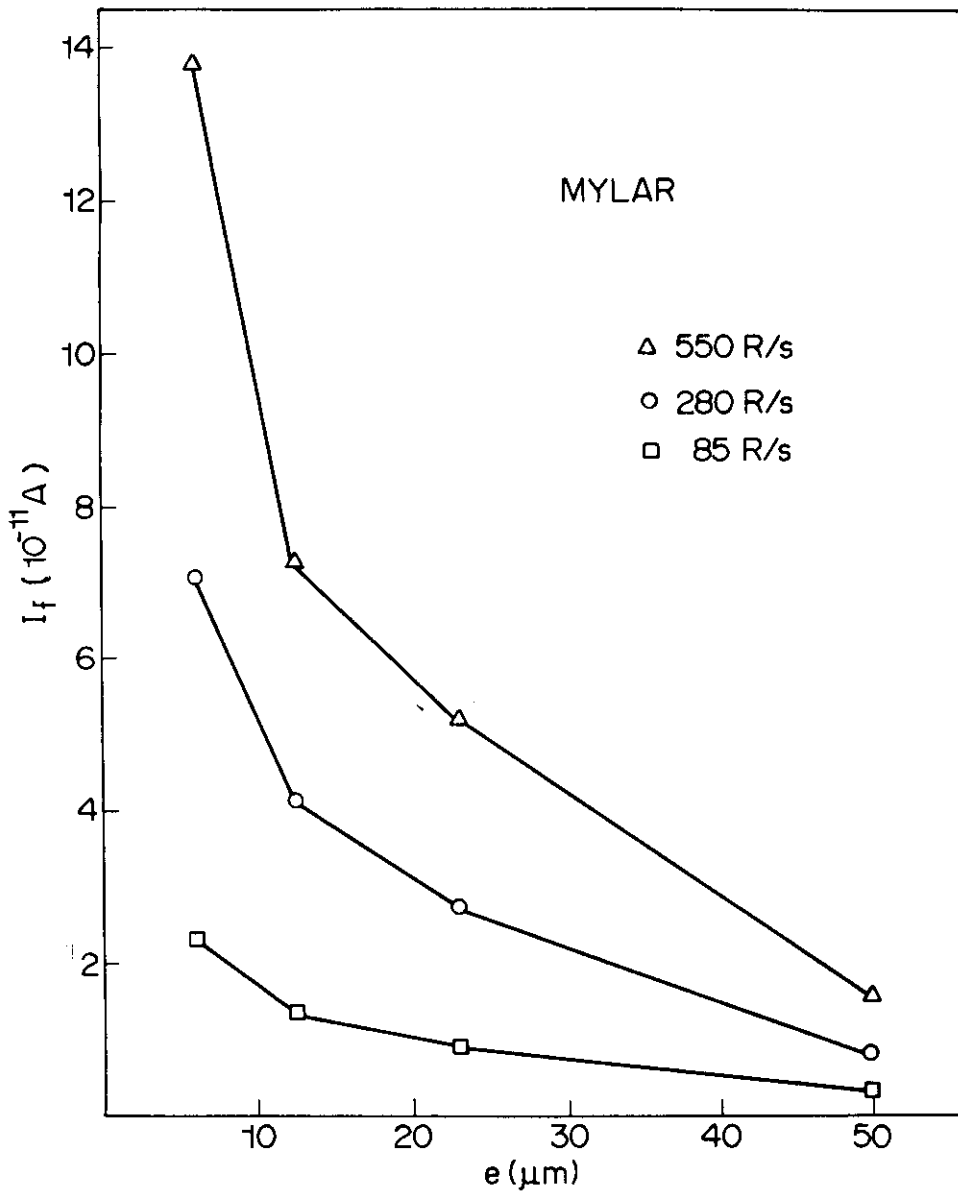


Figura 53. Corrente fotônica em função da espessura da amostra, para três taxas de exposições (sem amostra compensadora).

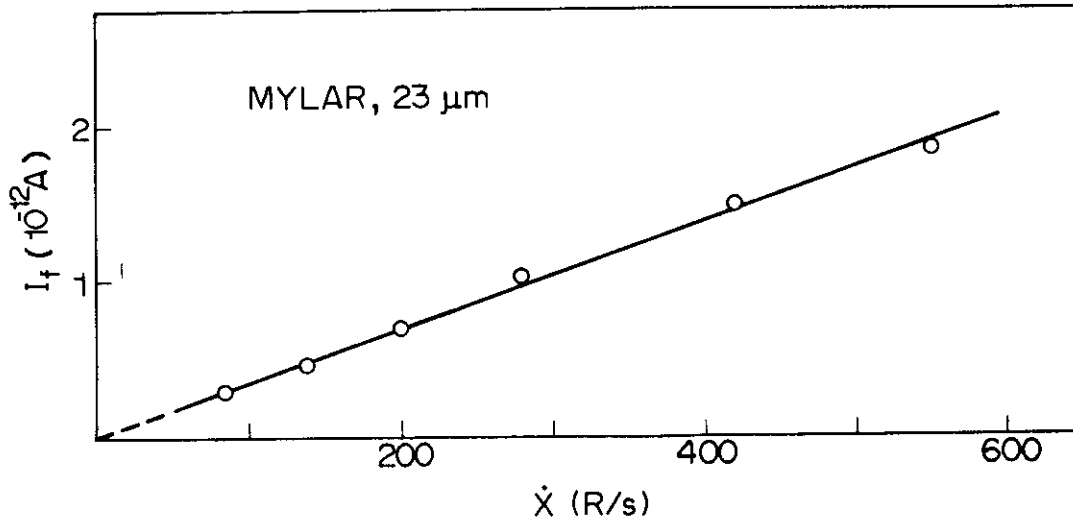


Figura 54. Corrente fotônica, com a amostra compensadora, em função da taxa de exposição. (Ver esquema ao lado da figura 55).

4.1.1. Influência do Eletrodo na Corrente Fotônica

Se a corrente fotônica é causada pelo fluxo de eletrons energéticos que atravessa a amostra e, como uma boa parte desses eletrons é arrancada do eletrodo superior pela radiação, uma dúvida surgiu: qual a influência na fotônica do material utilizado como eletrodo?

Várias medidas da fotônica foram realizadas, com amostras possuindo eletrodos de materiais diferentes. A Figura 55 mostra os resultados para amostras com eletrodos de alumínio ou ouro em ambos os lados, e amostras com eletrodo de alumínio em um dos lados e de ouro do outro. Em todos os casos foi utilizada a amostra compensadora, conforme esquema ao lado da Figura 55.

Pode-se observar que a utilização de ambos eletrodos de ouro, não só aumenta o valor da fotônica em cerca de 50 vezes, como também inverte seu sentido. Quando o eletrodo superior (onde incide a radiação), é de ouro e o inferior de alumínio, a corrente fotônica *mantêm seu sentido*, porém aumenta em

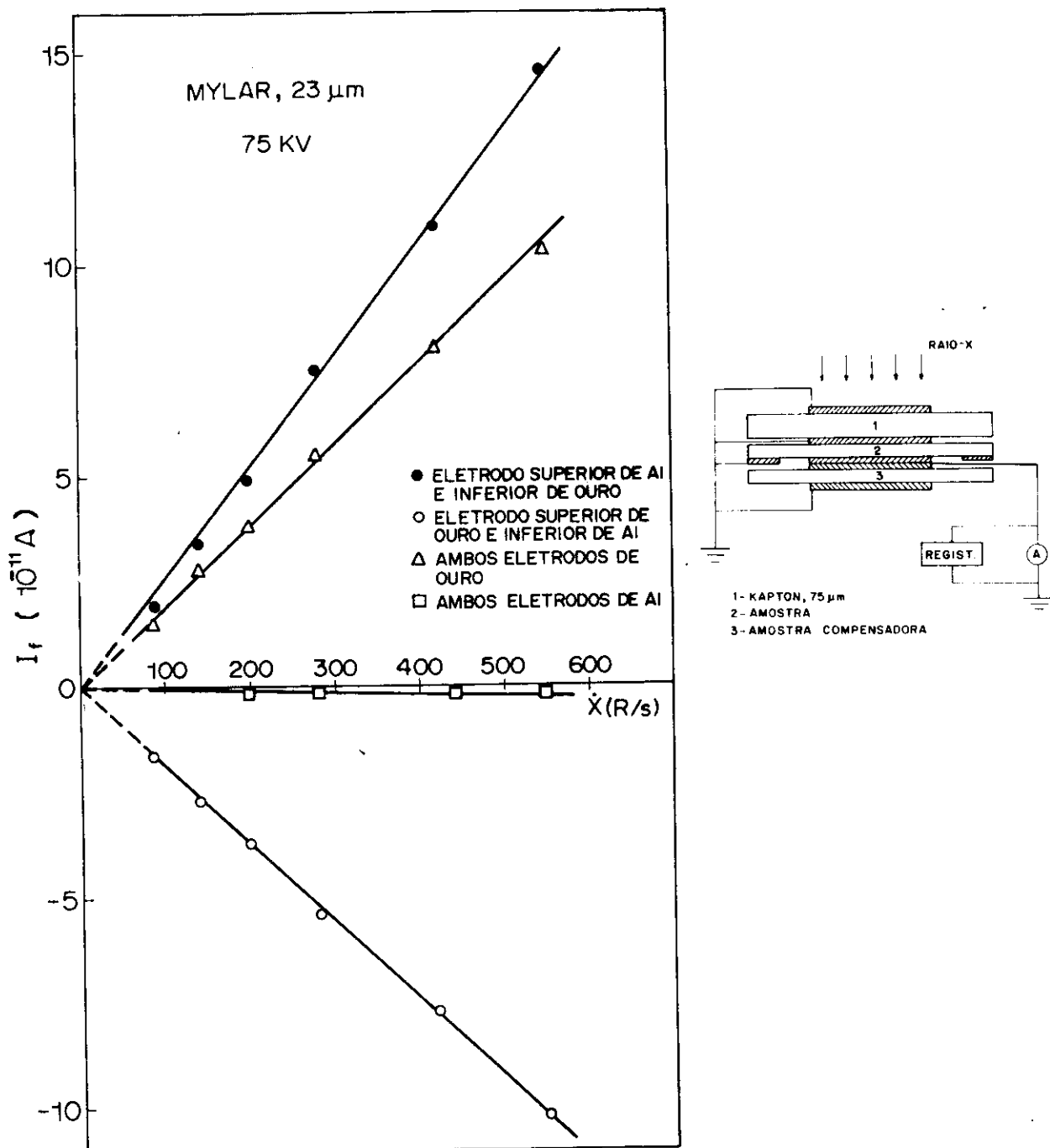


Figura 55. Corrente fotônica em função da taxa de exposição, para diferentes eletrodos. (A corrente medida é a diferença entre a fotônica produzida na amostra medida e a produzida na amostra compensadora).

cerca de 50 vezes o valor da obtida com ambos eletrodos de alumínio. Invertendo-se a posição dos eletrodos, Al no superior e Au no inferior, a fotônica aumenta em cerca de 70 vezes, ainda em relação a ambos de Al, e *inverte seu sentido*. Esses resultados, que mostram a grande influência dos eletrodos na injeção de cargas na amostra, serão discutidos no Capítulo VIII.

4.2. Kapton

Da mesma forma que para o PET, foram realizadas várias medidas da corrente fotônica para o Kapton, com variação da taxa de exposição e para várias espessuras da amostra. Todas as medidas foram feitas sem a utilização da amostra compensadora e com eletrodos de alumínio. Os resultados, mostrados na Figura 56, são semelhantes aos obtidos para o PET; o valor da fotônica é inversamente proporcional a espessura da amostra. Para o Kapton, a utilização da amostra compensadora também diminuiu o valor da fotônica em cerca de 30 vezes.

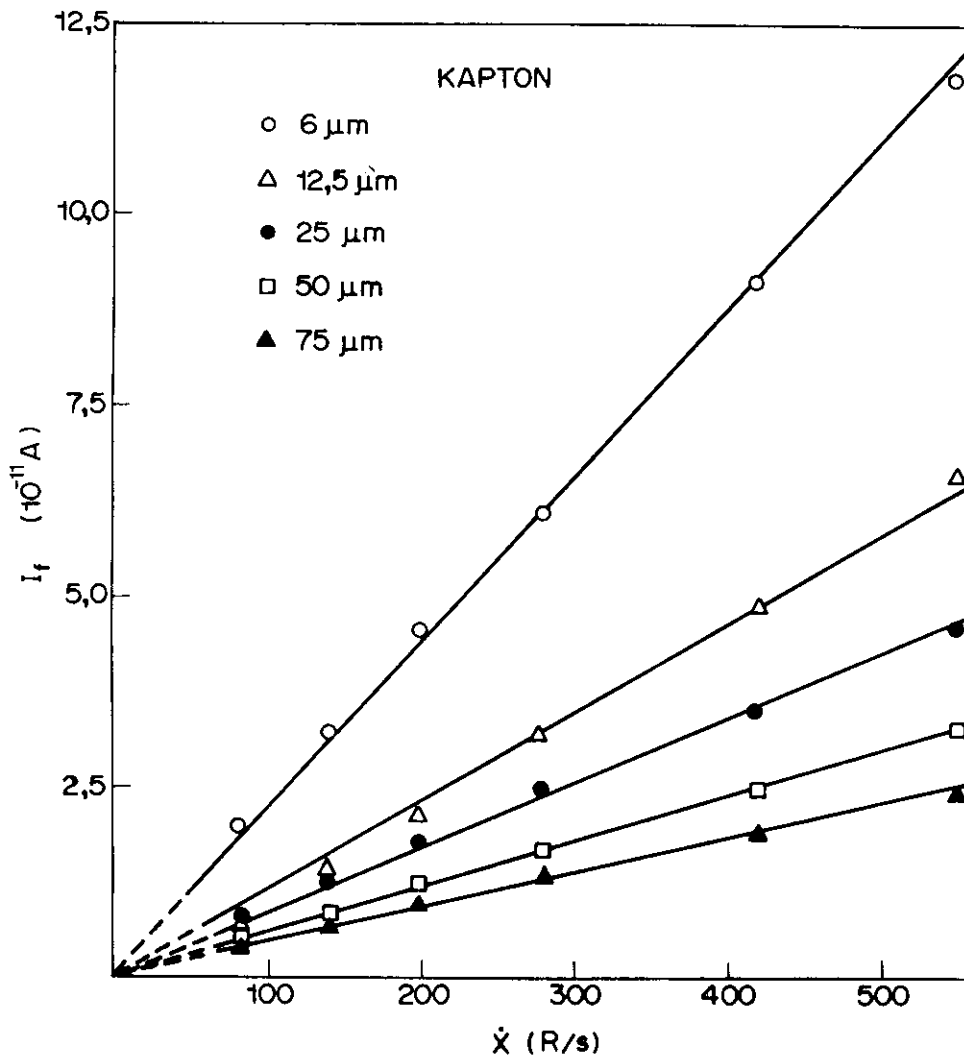


Figura 56. Corrente fotônica, em função da taxa de exposição, para amostras de várias espessuras (sem amostra compensadora - ver esquema ao lado da Figura 52).

Uma comparação entre a variação da corrente fotônica, para o PET e o Kapton, em função da espessura da amostra é mostrada na Figura 57.

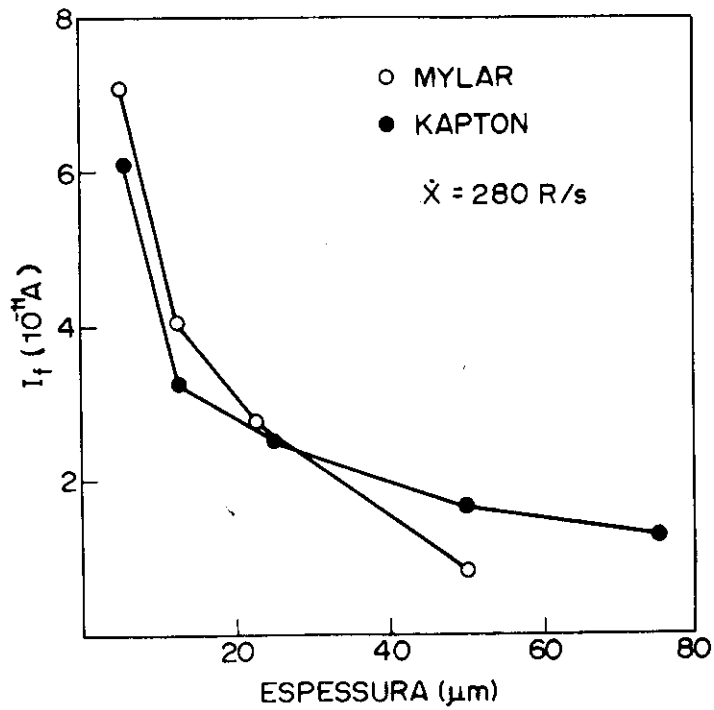


Figura 57. Corrente fotônica, em função da espessura da amostra para o Kapton (●) e para o PET (○), em ambos os casos $\dot{X} = 280$ R/s. (sem amostra compensadora).

CAPÍTULO V

MEDIDAS DE TSC - CIRCUITO FECHADO

5.1. TSC no PET

A técnica de corrente-termo-estimulada (TSC) foi utilizada para depopular armadilhas eletrônicas profundas, preenchidas por portadores produzidos durante a irradiação do material. Os resultados dessas medidas complementaram as informações obtidas pelos experimentos com corrente induzida. As amostras utilizadas foram idênticas as usadas nas medidas da RIC.

Com o dispositivo esquematizado na Figura 10, já descrito no Capítulo II, foram efetuadas várias medidas de TSC. As amostras foram de 23 μm e polarizadas com uma tensão positiva de 200 V ($E = 8,7 \times 10^4 \text{ V/cm}$). Em todas as medidas, após a aplicação da tensão, esperou-se um tempo necessário para que a corrente de absorção dielétrica atingisse um valor quase estacionário. A taxa de aquecimento foi de $1,0^\circ\text{C/min}$ e a temperatura final de 120°C . Nas medidas de amostras irradiadas, esperou-se 20 h após a irradiação para iniciar a medida de TSC. Esta espera foi necessária para que a componente atrasada da corrente induzida atingisse um valor suficientemente baixo para não causar interferência.

As medidas realizadas, representadas na Fig. 58, foram as seguintes:

- a (o) - Amostra não irradiada (virgem).
- b (●) - Amostra irradiada por 6 h a 280 R/s (6,05 MR).
- c (Δ) - Mesma amostra do item (b), após resfriada à temperatura ambiente e realizado um 2º TSC.

d (□) - A mesma amostra dos itens (b) e (c). Irradiada por 1 h a 280 R/s (LMR) e uma nova medida de TSC realizada.

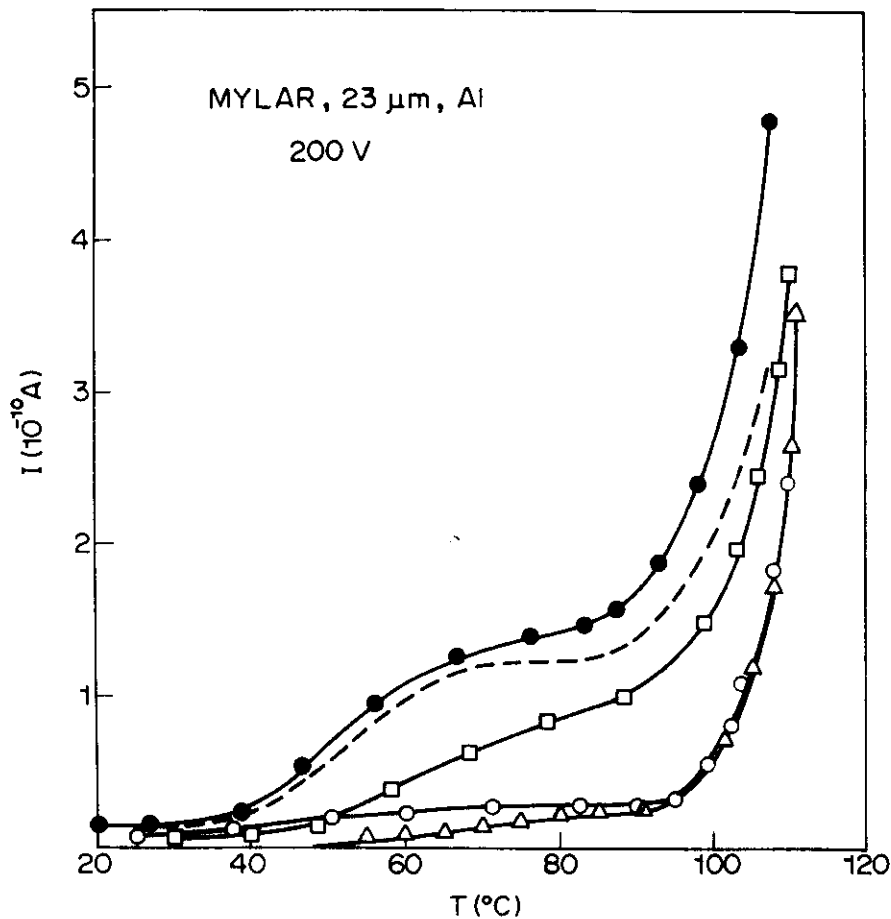


Figura 58. Medidas de TSC

(o) Amostra virgem.

(●) Amostra irradiada por 6 horas a 280 R/s.

(Δ) Mesma amostra, 2 $^{\circ}$ TSC.

(□) Mesma amostra, irradiada por 1 h a 280 R/s.

(---) Diferença entre as medidas (●) e (Δ).

Dos termogramas obtidos pode-se observar que as amostras irradiadas apresentaram um máximo na corrente de TSC, em torno de 80°C . Esse máximo é mais pronunciado para a amostra que recebeu maior dose de radiação. Isto significa que o aumento na dose recebida pela amostra provocou um aumento na carga liberada pela ativação térmica. Podemos, portanto, supor a existência de uma distribuição de armadilhas profundas no material, as quais são preenchidas parcialmente pelos portadores gerados pela radiação e, depopuladas durante o aquecimento da amostra.

O máximo observado na medida de TSC poderia ter sido ocasionado pela despolarização térmica de dipolos orientados pelas tensões sofridas pelo material durante sua fabricação [63]. Porém, se este fosse o caso, a amostra não irradiada deveria também apresentar esse máximo, fato não observado. Além disso, a amostra que já sofreu um aquecimento, não deveria mais apresentar esse máximo em outra medida de TSC. Seus dipolos já teriam se desorientado durante o primeiro aquecimento. Porém, como mostra a Figura 58 (□), a amostra após ter sofrido dois aquecimentos, apresentou o máximo no 3º TSC. Em vista disso, a hipótese de que o máximo observado na medida de TSC é causado pela liberação de cargas aprisionadas em armadilhas profundas durante a irradiação, nos parece factível.

5.2. TSC no Kapton

Com procedimentos iguais aos realizados para o PET, foram efetuadas medidas de TSC também no Kapton. Uma amostra de $25\ \mu\text{m}$, sujeita a uma tensão positiva de 200V ($E = 8 \times 10^4\ \text{V/cm}$), foi aquecida a uma taxa de 1°C/min da tempera-

tura ambiente (26°C) até 135°C . Os resultados, apresentados na Figura 59, são referentes às seguintes medidas:

- a (o) - Amostra ainda não irradiada (virgem).
- b (●) - Mesma amostra, após resfriada à temperatura ambiente, irradiada por 7 h e 30 minutos a 280 R/s (7,56 MR). Após 18 h de cessada a irradiação um 2 ϕ TSC foi realizado.
- c (Δ) - Novo TSC na mesma amostra, após resfriada.
- d (\square) - Diferença entre as medidas (b) e (c).

Pode-se notar a existência de dois máximos de corrente em torno das temperaturas 75° e 120°C . Além disso, observa-se também que a medida de TSC realizada com a amostra virgem (o) apresenta corrente maior que a feita na amostra já aquecida (Δ). Este resultado indica que mesmo antes de irradiada, algumas armadilhas profundas presentes na amostra já estavam preenchidas com portadores. Estas foram depopuladas durante o aquecimento, fornecendo maior corrente de TSC. Durante a irradiação essas armadilhas foram preenchidas e, no processo de aquecimento, depopuladas, fornecendo os dois máximos observados (●).

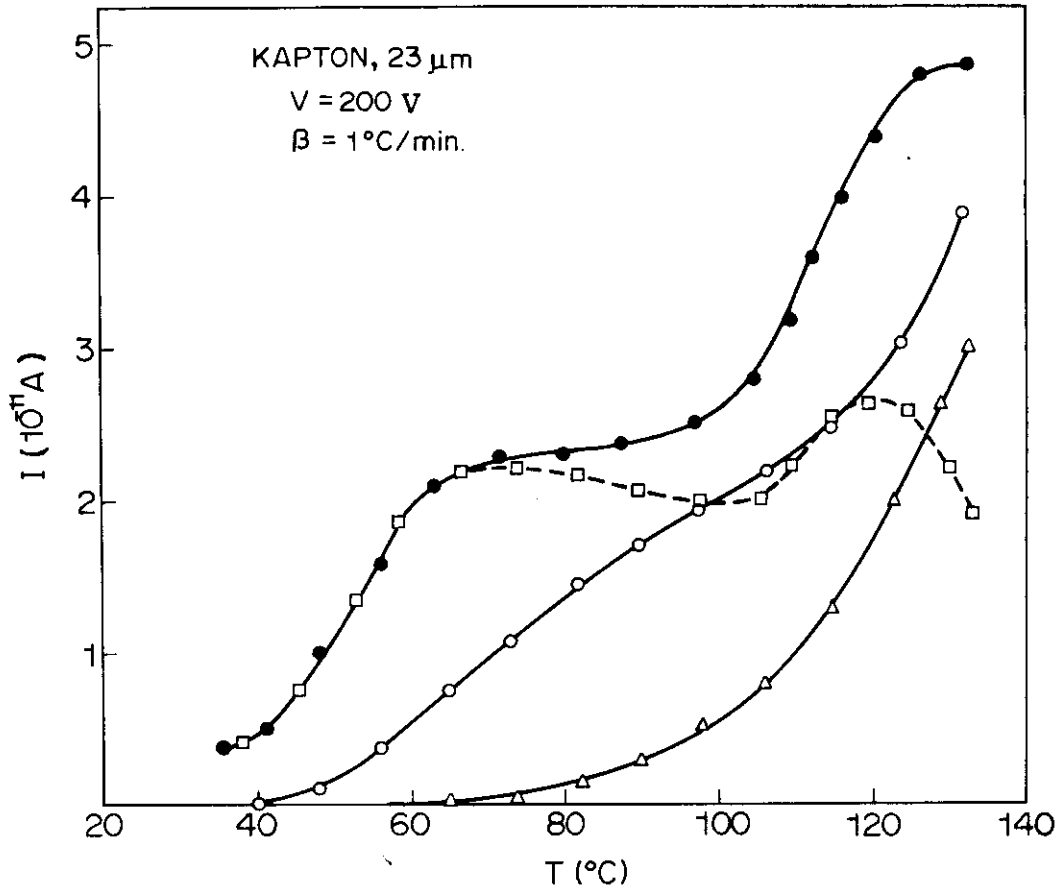


Figura 59. Medidas de TSC no Kapton

- (o) Amostra virgem.
- (●) Mesma amostra, após um tempo de irradiação de 7h e 30 minutos a 280 R/s.
- (Δ) Mesma amostra, após resfriamento.
- (□) Diferença entre as medidas (●) e (Δ).

5.3. Energia de Ativação

Com auxílio das curvas de TSC pode-se avaliar a energia de ativação para os níveis de armadilhas. Vários métodos foram desenvolvidos para esse cálculo [66-68], sendo aqui utilizado o calculado por Chen [67], onde cinética de segunda ordem foi considerada. A expressão encontrada foi:

$$U = 1,813 \frac{kT_m^2}{\alpha_1} - 2 (2kT_m) \quad (31)$$

onde k é a constante de Boltzmann, T_m a temperatura associada ao máximo valor da corrente termoestimulada, T_1 a temperatura associada a metade do máximo valor da corrente, do lado de menor temperatura e $\alpha_1 = T_m - T_1$.

Para o PET, obtém-se $T_m = 353$ K, $T_1 = 328$ K e $\alpha_1 = 25$ K. O valor calculado para a energia de ativação foi 0,66 eV.

Da Figura 59, para o Kapton, obtém-se $T_m = 346$ K, $T_1 = 327$ K e $\alpha_1 = 19$ K, para o 1º máximo. $T_m = 393$ K, $T_1 = 370$ K e $\alpha_1 = 23$ K, para o 2º máximo. Desses valores as energias de ativação avaliadas para as armadilhas foram 0,87 eV e 0,91 eV, respectivamente para o 1º e 2º máximos. Esses valores encontrados são apenas avaliações, uma vez que T_m depende da taxa de aquecimento.

Taylor [21], bombardeando filmes de PET (Melinex) com elétrons de 5 KeV e, em seguida, realizando medidas de TSC obteve energias de ativação de 0,4 eV, 0,8 eV e 1,5 eV. Creswell e Perlman [69], carregando amostras de PET (Mylar) pelo processo de descarga corona, obteve armadilhas com profundidades de 0,55 eV, 0,85 eV e 1,4 eV. O máximo correspondente a energia de ativação em torno dos valores 1,4 eV e 1,5 eV, obtidos nos trabalhos citados, não pode ser identificado em nosso experimento porque a máxima temperatura atingida em nosso sistema, em que se mantinha linearidade entre a temperatura e o tempo, foi de 120°C. A energia de ativação de 0,66 eV, obtida em nosso trabalho, pode ter sido resultado da superposição dos máximos correspondentes às energias entre 0,4-0,5 eV e 0,8-0,85 eV, encontrados por Taylor e Perlman, devido a baixa resolução de nosso sistema.

CAPÍTULO VI

MEDIDAS DA RIC NO AR

Recentemente foi observado por Faria e Ferreira [70] que a medida da corrente de absorção dielétrica em amostra de PET (Mylar) apresenta diferença quando realizada no ar (60% hr) ou no vácuo (10^{-3} Torr). Nesse trabalho foi demonstrado também a ocorrência de uma despolarização na amostra quando, durante uma medida de polarização efetuada no ar úmido, se faz vácuo. A interpretação dada a esse resultado foi a expulsão de dipolos orientados do interior da amostra, que ocorre quando o ar úmido é retirado. Esses dipolos foram identificados como sendo moléculas de água.

Diante de tal resultado podemos concluir que a difusão de ar úmido no interior da amostra altera seu comportamento elétrico. Para verificar a influência do ar úmido nas medidas da RIC foi realizada uma série de medidas no ar, no vácuo e alternadamente nos dois meios.

Uma amostra virgem de PET de 23 μ m, sujeita a um campo elétrico de 8×10^4 V/cm, foi irradiada no vácuo (10^{-4} Torr), e o resultado é mostrado na Figura 60 (●) em escala linear. Outra amostra, nas mesmas condições, foi irradiada no ar úmido (66% hr) (Δ). Em outra medida, ainda nas mesmas condições, uma amostra foi irradiada inicialmente no vácuo por 20 minutos e, em seguida, introduzido ar úmido (74% hr). Após 21 minutos de irradiação fez-se novamente o vácuo (o). Uma outra amostra foi irradiada, nas mesmas condições, no ar seco (10%hr) (□).

Pode-se observar que a medida realizada no ar úmido diminui e atrasa a subida que apresenta a RIC após uns poucos minutos do início da irradiação. A medida da RIC no ar seco se

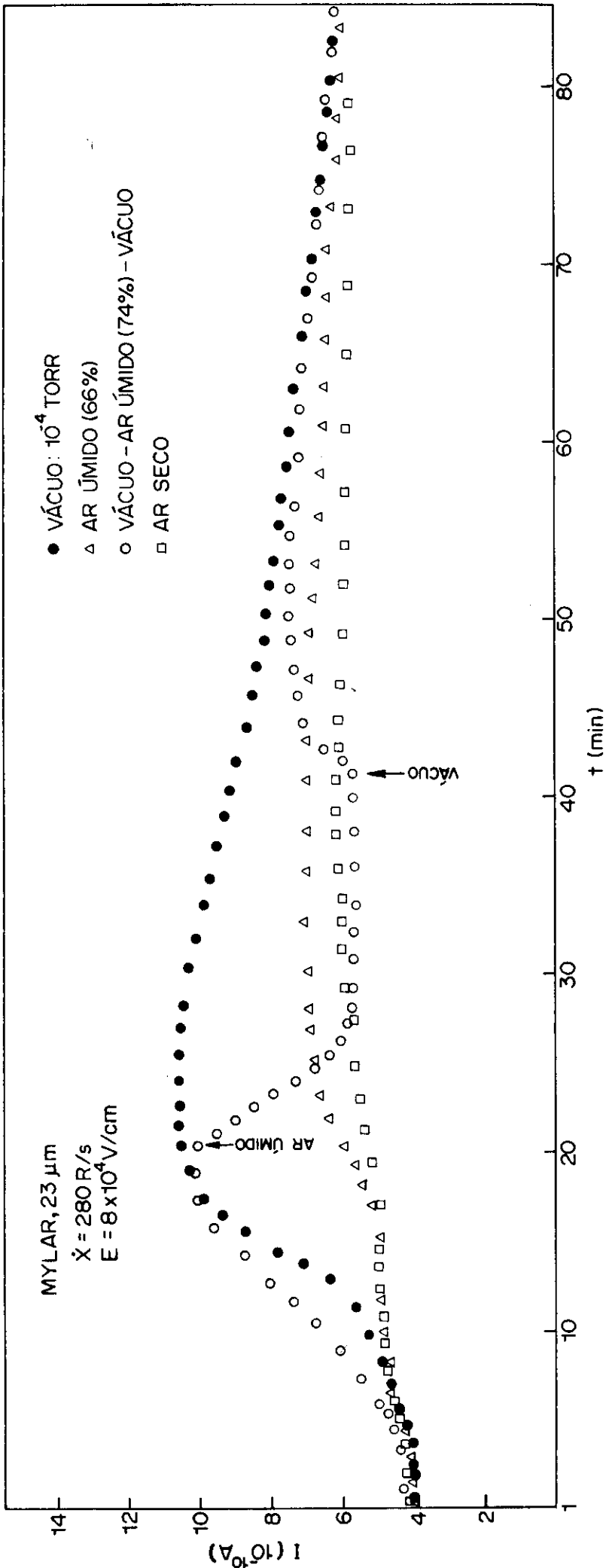


Figura 60. Medidas da RIC no PET: feita no vácuo (●); no ar úmido (△); alternadamente no vácuo e ar úmido (○) e no ar seco (□).

aproxima bastante da realizada no ar úmido, o que pode indicar que a diferença observada nas medidas no ar e no vácuo não deve ser causada pela umidade.

Procedimento semelhante foi feito com amostras de Kapton. A Figura 61 mostra os resultados de duas medidas da corrente induzida em função do tempo, realizadas com amostras virgens de 25 μm e com um campo de $9 \times 10^4 \text{ V/cm}$. A primeira medida iniciou no ar úmido (60%hr) e a amostra foi irradiada por 14 h e 30 minutos com uma taxa de exposição de 280R/s. Como se pode observar no gráfico da Figura 61 (●), a corrente induzida não apresentou seu forte crescimento que, nessas condições e no vácuo, ocorre após aproximadamente 5000 segundos de irradiação. Iniciada a irradiação, a corrente induzida vai rapidamente para um valor quase estacionário, permanecendo aí por uns 10 segundos, e em seguida cai monotonicamente tendendo para um valor estacionário. Passadas as 14 h e 30 minutos de irradiação, foi feito o vácuo, e a corrente induzida começou a crescer rapidamente. Na segunda medida (○), iniciada no vácuo (10^{-4} Torr), a amostra foi irradiada por 5500 seg e, nesse instante, quando a corrente induzida já se encontrava em rápida ascensão, foi injetado ar úmido, caindo rapidamente a corrente para o valor que teria se a forte elevação não tivesse ocorrido. Feito novamente o vácuo, a corrente começou sua forte subida.

Em vista dos resultados obtidos nos parece que a difusão de ar na amostra introduz armadilhas ou centros de recombinação. O aumento na densidade de armadilhas retarda a saturação destas, diminuindo e retardando o máximo valor da RIC atingido no PET. No Kapton, essas armadilhas impedem a saturação, provocando a não ocorrência do forte crescimento da corrente induzida. No Capítulo VIII discutiremos essas hipóteses com auxílio do modelo teórico proposto.

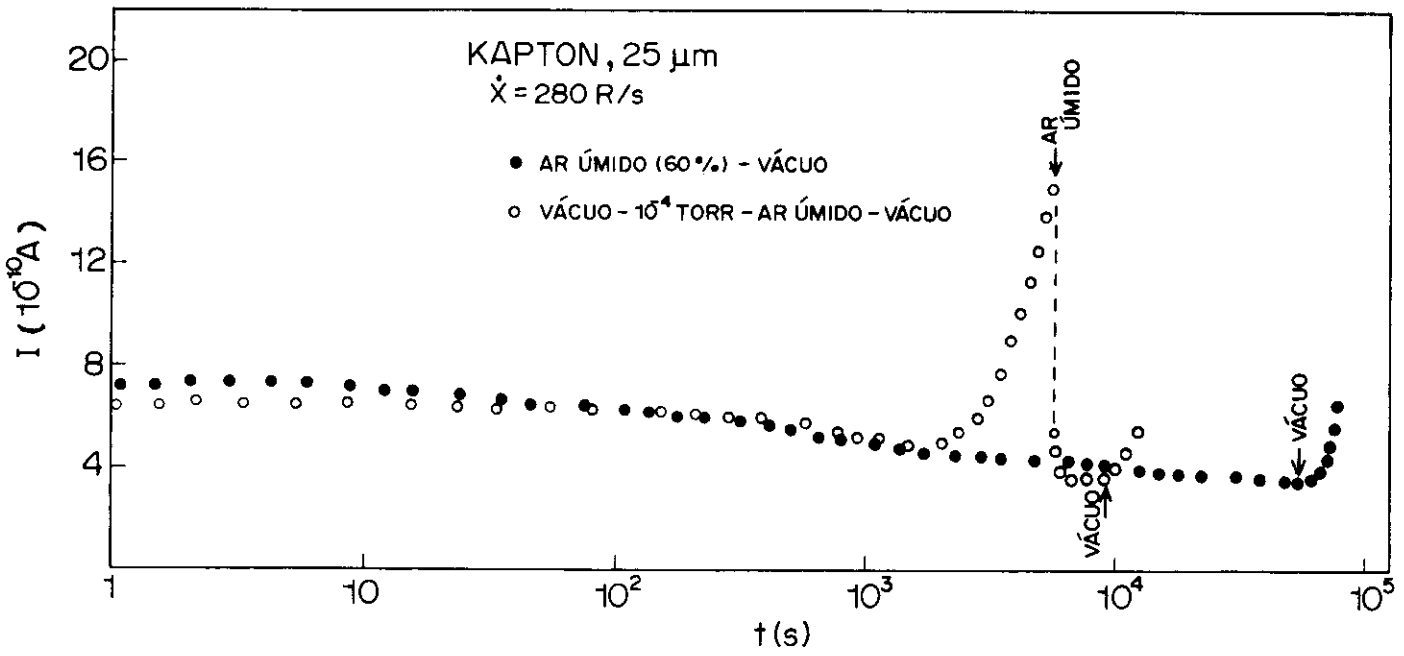


Figura 61. Medida da corrente induzida no ar e no vácuo alter_{na}damente.

CAPÍTULO VII

MODELO TEÓRICO PROPOSTO

Este capítulo tem por objetivo apresentar um modelo teórico que visa explicar a variação da RIC com o tempo, para ambos materiais, com diferentes campos elétricos e taxas de exposições. Este estudo considera válida a aplicação da teoria de bandas para os materiais policristalinos aqui estudados.

7.1. TEORIA DE BALANÇO DOS PORTADORES GENERALIZADA

No capítulo I foi comentado que vários autores investigaram o comportamento da RIC no PET para o caso de curtos e intensos pulsos de radiação, quase sempre no intervalo de μs para ns . Contudo, como já havia sido observado por Fowler [13], o tempo necessário para que o estado estacionário da RIC seja atingido para alguns materiais pode ser da ordem de horas. Porém a teoria desenvolvida por Fowler só é válida para o estado estacionário da RIC. Para descrever o transiente, que ocorre antes do estado estacionário ter sido atingido, é mais apropriada a teoria utilizada por Weingart et al [18] e Lee et al [60] e posteriormente complementada por Gross et al [47].

Como foi visto no capítulo I, as equações dessa teoria foram desenvolvidas para o caso da RIC gerada por um curto pulso de irradiação. Porém nenhuma das suposições da teoria a restringe para esse caso particular. Podemos, portanto, generalizá-la assumindo que ela permanece válida desde a aplicação da irradiação até que o estado estacionário da RIC tenha sido atingido [47,58]. O modelo teórico aqui pro-

posto se utilizará dessa teoria generalizada, com algumas modificações , como descreveremos a seguir, das quais a principal é a introdução da variação da taxa de geração de portadores com o campo aplicado, explicada pela teoria de Onsager [64].

No capítulo I, vimos que resultados experimentais [17, 32, 33] concluíram que no PET os portadores predominantes são os elétrons. Em nosso modelo consideraremos condução unipolar. Os portadores predominantes serão os elétrons, enquanto as lacunas se ráo consideradas aprisionadas no local de sua origem. Os elétrons gerados pela radiação podem passar da banda de valência para a de condução. As lacunas capturadas se comportarão como centro de recombinação. A estrutura de armadilhas em um dielétrico real, ge ralmente apresenta armadilhas rasas e profundas. Consideremos, por tanto, esses dois tipos de armadilhas. Os elétrons, na banda de condução, podem ser capturados nas armadilhas ou sofrer recombina ções. O modelo de banda aqui utilizado é esquematizado na figura 62.

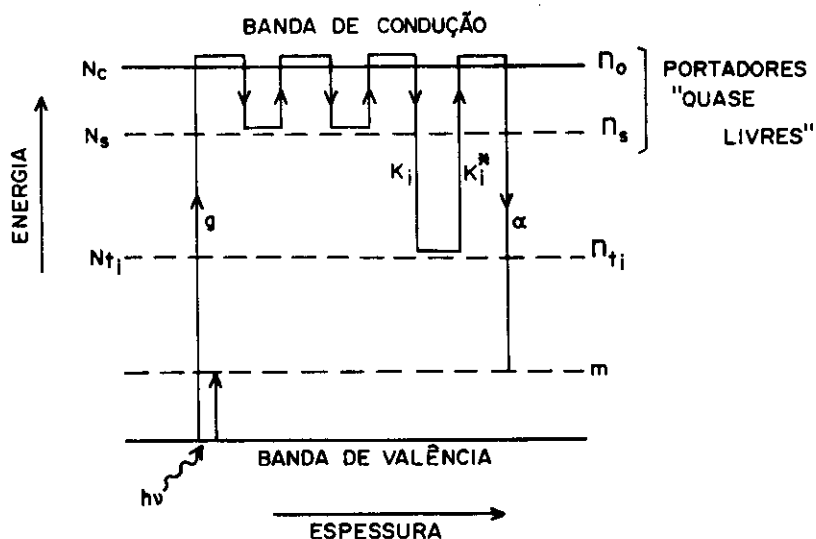


Figura 62 - Esquema do modelo de banda utilizado.

Em geral existe um grande número de níveis de armadi

lhas na região de energia proibida de um isolante. Estas armadilhas consistem de estados localizados, causados por imperfeições no material devido a defeitos estruturais ou a existência de impurezas. Os níveis discretos de armadilhas, normalmente, estão associados a impurezas químicas, enquanto as distribuições quase contínuas de níveis se relacionam a imperfeições estruturais do material.

Será assumido que o equilíbrio térmico entre os portadores livres, na banda de condução, e os aprisionados nas armadilhas rasas, seja atingido em frações de segundos. Após esse tempo, os portadores livres, n_o , e os aprisionados nas armadilhas rasas, n_s , podem ser agrupados, fornecendo uma nova concentração de portadores, n , que denominaremos de portadores "quase livres".

Estes portadores terão uma mobilidade efetiva dada por $\mu = \theta \mu_o$, denominada mobilidade modulada por armadilhas rasas, onde μ_o é a mobilidade livre e $\theta = \frac{n_o}{n_o + n_s}$ [71].

A densidade de corrente de condução será dada por:

$$i(t) = (n_o + n_s) e \mu E = n e \mu E \quad (12)$$

onde e é a carga elementar e E é o campo elétrico aplicado. Logo após o transiente inicial, o número de portadores capturados nas armadilhas rasas excede grandemente àsquelas livres, portanto θ é um número muito pequeno, entre 10^{-10} - 10^{-6} [58].

Designando os níveis de armadilhas profundas pelo índice i , o balanço de portadores aprisionados no i -ésimo nível será dado pela equação:

$$\frac{dn_{t_i}}{dt} = K_i n_o (N_{t_i} - n_{t_i}) - K_i^* n_{t_i} (N_c - n_o) \quad (13)$$

onde K_i e K_i^* são, respectivamente, o coeficiente de captura (trapping) e de liberação (detrapping) da i -ésima armadilha profunda. N_c é a densidade total de estados na banda de condução, n_{t_i} e N_{t_i} são, respectivamente, a densidade de portadores capturados e a densidade total de estados localizados no i -ésimo nível de armadilha e t o tempo medido. Sendo o polímero eletricamente neutro, a densidade de lacunas imóveis m será:

$$m = n_o + n_s + \sum_i n_{t_i} \quad (14)$$

O termo que leva em conta a recombinação, poderá ser escrito como:

$$\alpha_o n_o (n_o + n_s + \sum_i n_{t_i}) = \alpha_o n \theta m = \alpha n m \quad (15)$$

onde $\alpha = \alpha_o \theta$ é o coeficiente de recombinação modulado pelas armadilhas rasas. Convém novamente salientar que a introdução desse coeficiente de recombinação modulado foi primeiramente utilizada por Gross [47], complementando deste modo a teoria de Weingart - Lee.

Para descrever as armadilhas profundas, é conveniente introduzir os tempos de captura e liberação (trapping and detrapping time). Assim, teremos como termo de captura:

$$\begin{aligned} K_i n_o (N_{t_i} - n_{t_i}) &= K_i n \theta N_{t_i} \left[1 - \frac{n_{t_i}}{N_{t_i}}\right] \\ &= \frac{n}{\tau_i} \left[1 - \frac{n_{t_i}}{N_{t_i}}\right] \end{aligned} \quad (16)$$

onde $\tau_i = \frac{1}{K_i \theta N_{t_i}}$ é o tempo de captura modulado pelas armadilhas.

O termo de liberação, torna-se:

$$K_i^* n_{t_i} [N_c - n_o] = K_i^* N_c n_{t_i} \left[1 - \frac{n\theta}{N_c}\right] \approx \frac{n_{t_i}}{\tau_i^*} \quad (17)$$

onde $\tau_i^* = \frac{1}{K_i^* N_c}$ é o tempo de liberação do i-ésimo nível.

O termo $\frac{n\theta}{N_c}$ foi desprezado por ser muito menor que a unidade.

A equação que determina a densidade de portadores "quase livres" pode agora ser escrita como:

$$\frac{dn}{dt} = g - \alpha n m - \sum_i \frac{n}{\tau_i} \left[1 - \frac{n_{t_i}}{N_{t_i}}\right] + \sum_i \frac{n_{t_i}}{\tau_i^*} \quad (18)$$

A variação da densidade de portadores capturados no i-ésimo nível será dada por:

$$\frac{dn_{t_i}}{dt} = \frac{n}{\tau_i} \left[1 - \frac{n_{t_i}}{N_{t_i}}\right] - \frac{n_{t_i}}{\tau_i^*} \quad (19)$$

Complementando, temos ainda a equação que descreve o balanço de lacunas aprisionadas:

$$\frac{dm}{dt} = g - \alpha n m \quad (20)$$

Formalmente, as armadilhas rasas poderiam ter sido es

critas pela soma dos termos de captura e liberação, como o foram as armadilhas profundas. Contudo, sendo os tempos de captura e liberação extremamente curtos, foram incluídas no termo da esquerda da equação (18) que por isso passou a ser escrito como $\frac{dn}{dt}$.

Novamente voltamos a salientar que esta teoria considera os eletrodos neutros (ou ôhmicos). Esta suposição é confirmada pelos resultados experimentais, onde a corrente induzida se mostra dependente exclusivamente do número de portadores "quase-livres". Outra consideração implícita na teoria é a uniformidade na geração de portadores ao longo da amostra. Essas suposições levam a neutralidade de carga no material, não havendo formação de carga espacial. Deste modo a densidade de corrente de condução total na amostra se restringe ao termo dado pela equação (12), não havendo componente de difusão ou de transporte de excesso de carga.

7.2. APLICAÇÃO DO MODELO PROPOSTO

O modelo proposto será aplicado para explicar o comportamento temporal da RIC para o PET e o Kapton. Em ambos os casos serão considerados dois níveis de armadilhas profundas e, deste modo, o conjunto de equações que determina as concentrações de portadores pode ser escrito como:

$$\frac{dn}{dt} = g - \alpha n m - \frac{dn_1}{dt} - \frac{dn_2}{dt} \quad (21)$$

$$\frac{dn_1}{dt} = \frac{n}{\tau_1} \left[1 - \frac{n_1}{N_1} \right] - \frac{n_1}{\tau_1^*} \quad (22)$$

$$\frac{dn_2}{dt} = \frac{n}{\tau_2} \left[1 - \frac{n_2}{N_2} \right] - \frac{n_2}{\tau_2^*} \quad (23)$$

$$\frac{dm}{dt} = g - \alpha n m ; \quad m = n + n_1 + n_2 \quad (24)$$

Os índices 1 e 2 indicam os dois níveis de armadilhas profundas considerados.

7.2.1. AJUSTE TEÓRICO-EXPERIMENTAL PARA O PET

O sistema de equações diferenciais (21) - (24) foi resolvido numericamente pelo método de Runge-Kutta (5.^a e 6.^a ordem) com auxílio da subrotina DVERK. Em seguida, o ajuste entre a curva teórica obtida e os resultados experimentais foi feito pelas subrotinas VA05AD e MB11AD (HARWELL SUBROUTINE LIBRARY). O melhor ajuste foi conseguido variando-se os parâmetros contidos nas equações e utilizando o método que minimiza a soma dos quadrados.

Os parâmetros g , μ , τ_1 , τ_2 , τ_1^* , τ_2^* e N_2 foram inicialmente determinados como descritos a seguir.

O valor da taxa de geração de portadores, g , varia com a taxa de exposição. Além disso, introduziremos aqui a suposição que esse valor também depende da intensidade do campo aplicado. Esta suposição será justificada no capítulo VIII pela recombinação geminativa de Onsager [64].

Como valor inicial de g , utilizamos a equação (6), com $w = 850$ eV e $\rho = 1,395$ g/cm³ para o PET. Deste modo, obtém-se:

$$g = 1,026 \times 10^{11} \text{ D cm}^{-3} \text{ s}^{-1} \quad (25)$$

Para $\dot{X} = 280$ R/s, que com auxílio da equação (5) resulta em $\dot{D} = 252$ rad/s, obtêm-se $g = 2,58 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$. Este valor foi utilizado como parâmetro inicial no processo de ajuste teórico-experimental, para $E = 8 \times 10^4$ V/cm.

Os valores das taxas de geração para diferentes intensidades de campo e taxas de exposições, foram determinados a partir das relações obtidas experimentalmente entre g e essas grandezas.

No início da irradiação pode-se desprezar os termos de recombinação e escape. Deste modo, a equação (21) torna-se:

$$\frac{dn}{dt} = g - \frac{n}{\tau_1} - \frac{n}{\tau_2}$$

que fornece a solução assintótica:

$$n(t) = g \tau (1 - e^{-\frac{t}{\tau}}) \text{ com } \tau = \frac{\tau_1 \tau_2}{\tau_1 + \tau_2} \quad (26)$$

A corrente inicial é controlada pelas armadilhas. Após alguns segundos da irradiação a RIC atinge um estado estacionário inicial, cujo valor é dado por:

$$\sigma = g \tau \mu e \quad (27)$$

onde foi considerado $n = g \tau$. Para $E = 8 \times 10^4$ V/cm, o valor estacionário inicial da RIC foi de $3,9 \times 10^{-16} \Omega^{-1} \text{ cm}^{-1}$. Pela análise da subida inicial da RIC, que ocorre no instante em que a irradiação é aplicada, obteve-se $\tau_1 = 0,8$ s e $\tau_2 = 5,0$ s. Deste modo, determinou-se o valor de μ , pela equação (27), obtendo-se $1,4 \times 10^{-10} \text{ cm}^2/\text{Vs}$. Este valor é da ordem de grandeza dos obtidos para

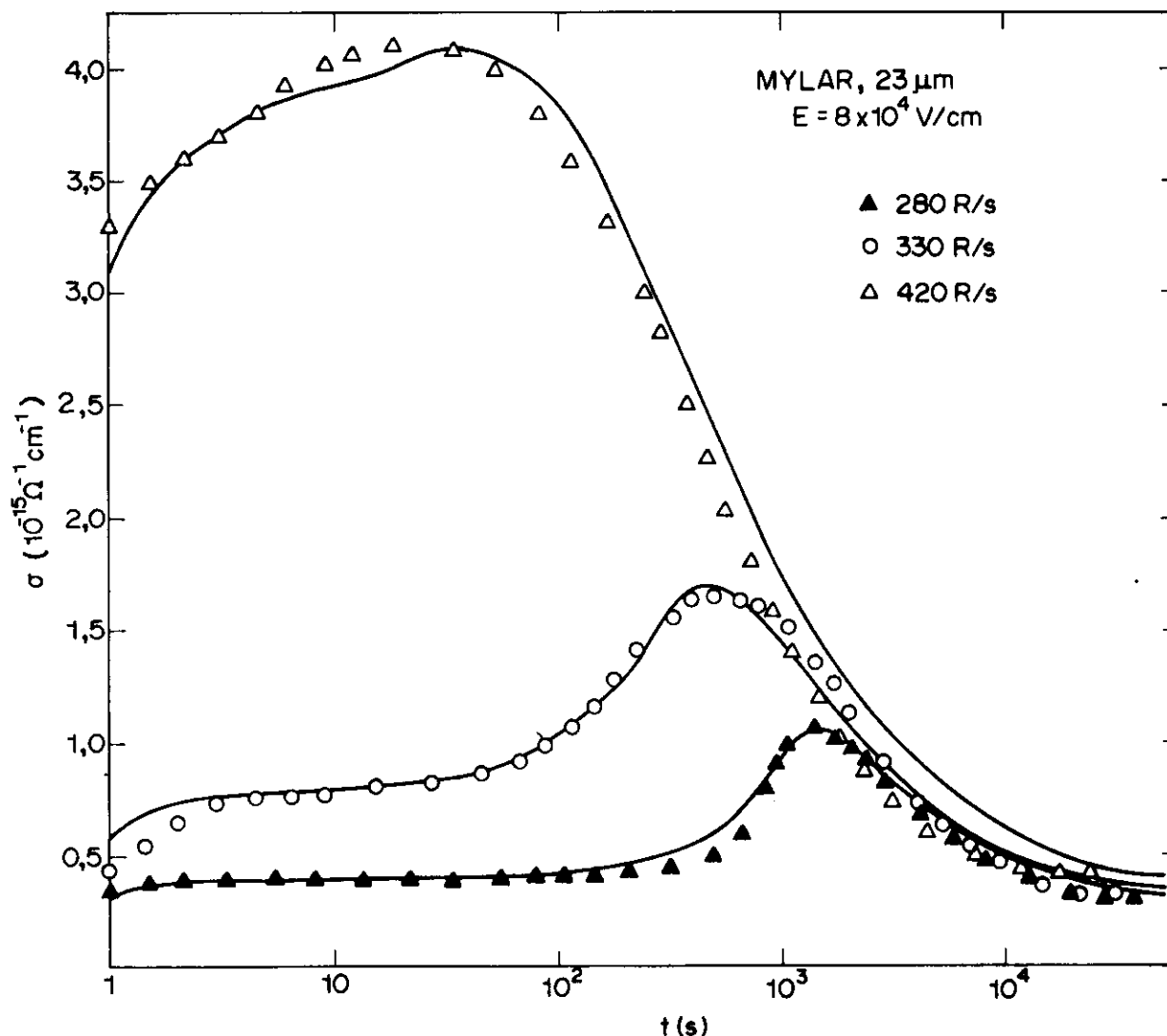


Figura 63 - Ajuste teórico-experimental para a RIC com diferentes taxas de exposições (a linha contínua é a curva teórica).

Com as equações (21) - (24), podemos determinar a dinâmica dos portadores "quase-livres", capturados nas armadilhas de nível 1 e de nível 2. Utilizando os mesmos parâmetros usados na figura 64, para $E = 8 \times 10^4 \text{ V/cm}$ e $\dot{X} = 280 \text{ R/s}$, determinamos as concentrações dos portadores em função do tempo de irradiação, e o resultado é mostrado na figura 65.

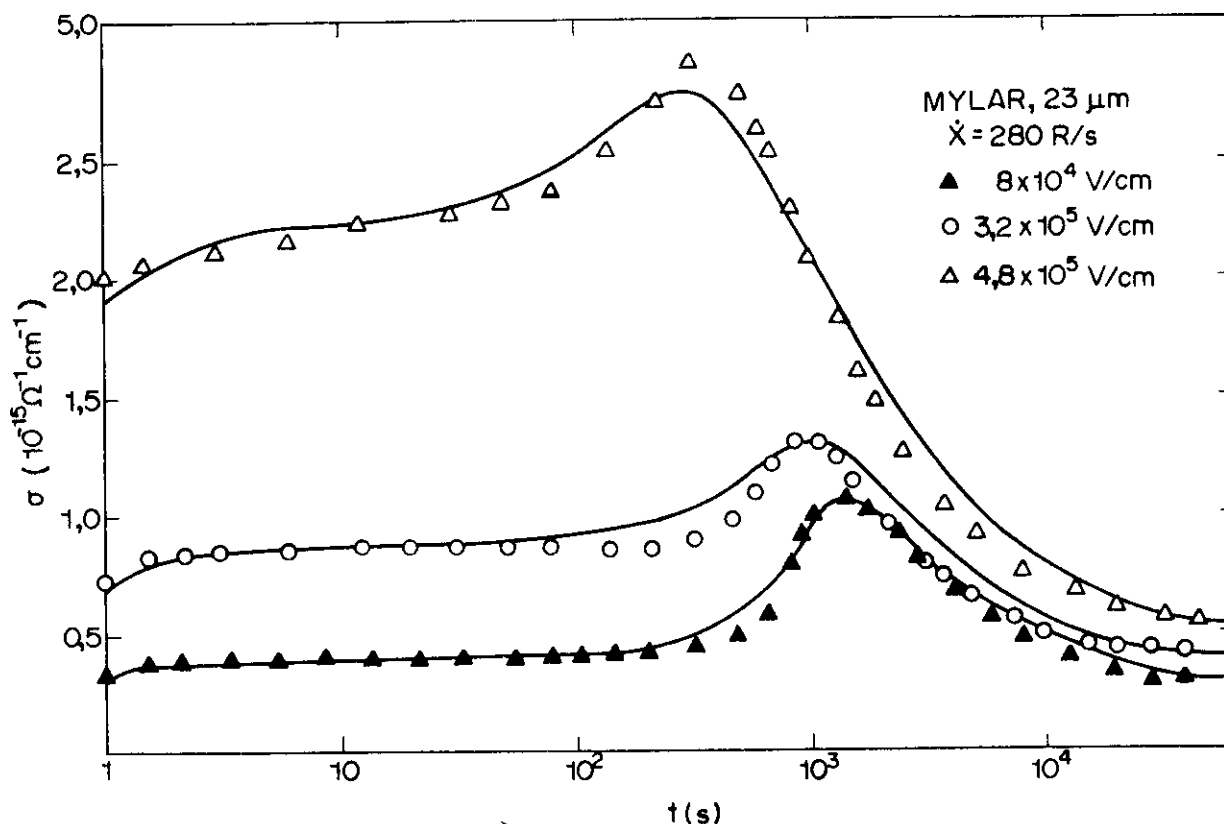


Figura 64 - Ajuste teórico-experimental da RIC para diferentes campos aplicados.

As armadilhas do nível 1 atingem a saturação (traps filling) após ~ 1600 s de irradiação. A densidade de portadores capturados nas armadilhas de nível 2 continua a crescer, se aproximando assintoticamente do valor N_2 . Pode-se observar claramente que a causa do máximo atingido pela RIC em sua evolução temporal é a saturação do nível 1 de armadilhas.

O valor da mobilidade para elétrons livres no PET (Mylar) é da ordem de $10^{-3} \text{ cm}^2/\text{Vs}$ [80], o que leva a um valor de θ da ordem de $1,4 \times 10^{-7}$. Portanto, o coeficiente de recombinação livre α_0 será da ordem de $10^{-10} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$. Este valor, que concorda em ordem de grandeza com o obtido por Hughes [24], é também coerente com o conhecido valor de α_0 para os gases, da ordem de $10^{-6} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$. Uma vez que esse valor é inversamente proporcional à

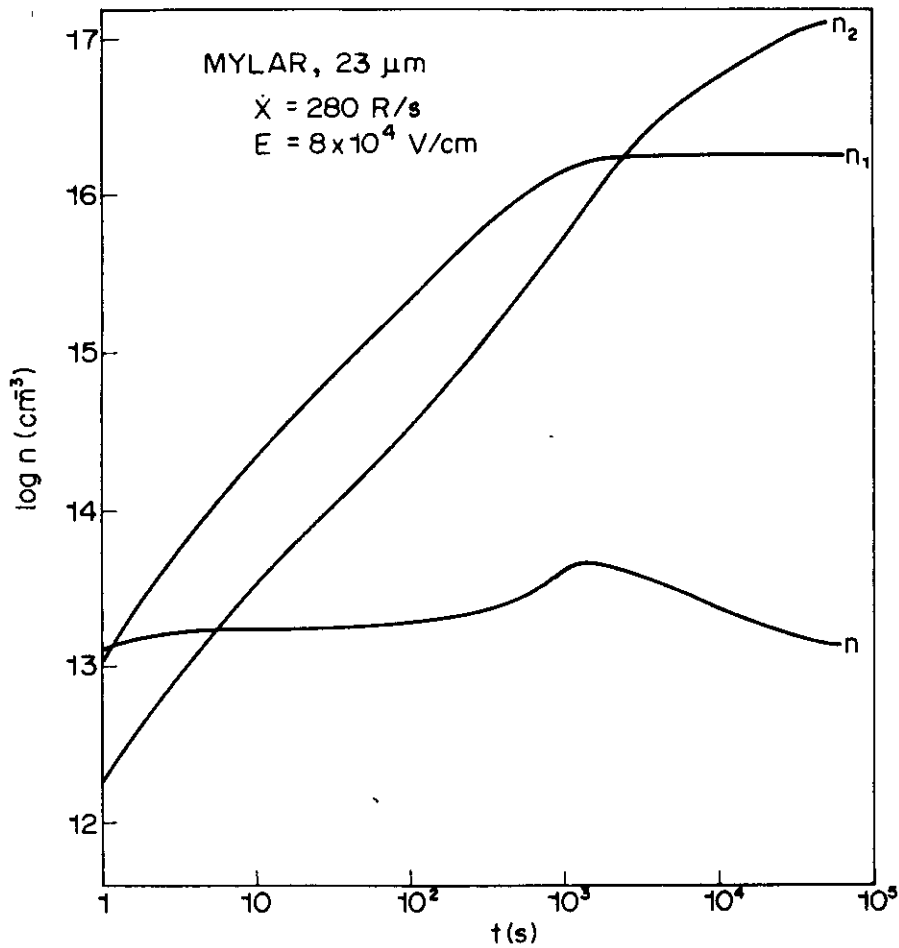


Figura 65 - Concentração dos portadores "quase-livres" (n), aprisionados nas armadilhas de nível 1 (n_1) e de nível 2 (n_2), em função do tipo de irradiação.

pressão, para um sólido α_0 deve ser algumas ordens de grandeza menor. Um aproximado valor limite inferior para a mobilidade livre pode ser obtido usando o valor de α_0 , para o PET, determinado acima. Pela relação de Langevin [76] $\mu_0 \geq \frac{\epsilon \alpha_0}{e} = 8,3 \times 10^{-4} \text{ cm}^2/\text{Vs}$, concordante com o valor dado por Hughes [80].

Pela tabela V pode-se notar que no processo de ajuste teórico-experimental foram obtidos diferentes valores de coeficiente de recombinação para medidas realizadas com diferentes campos e taxas de exposições. Na figura 66 é mostrada a variação de

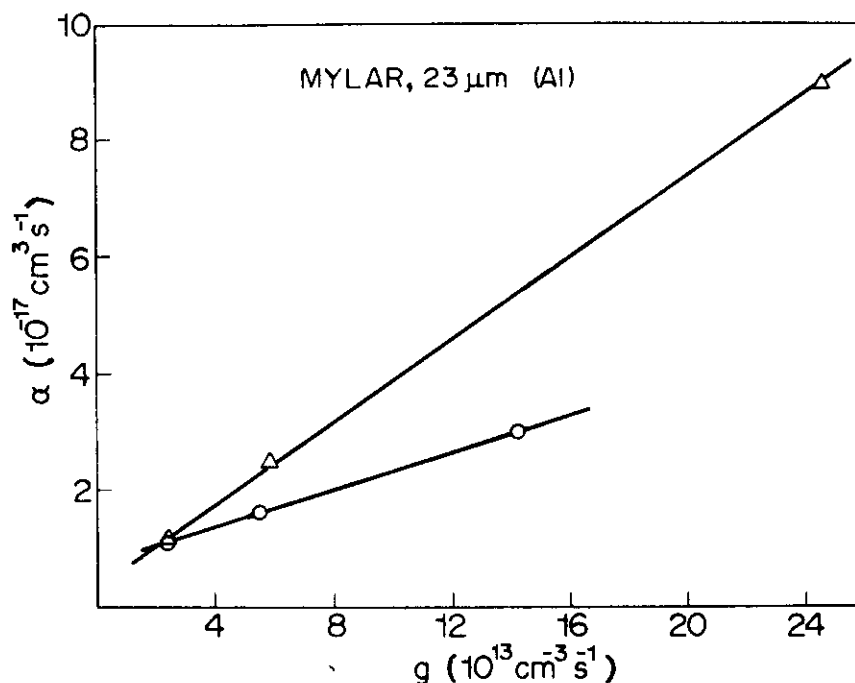


Figura 66 - Variação do coeficiente de recombinação em função da taxa de geração de portadores quando a taxa de exposição é aumentada (Δ), e com a elevação de intensidade de campo (o).

α com a taxa de geração de portadores. Essa variação é linear para g variando pelo aumento da intensidade do campo (o). O mesmo ocorre quando g aumenta pela variação da taxa de exposição, porém neste caso a variação é mais acentuada (Δ). Hughes [24] também observou no PET uma forte dependência do coeficiente de recombinação com o campo.

Fisicamente este fato pode ser compreendido considerando-se que, com o aumento da intensidade do campo elétrico ou da taxa de exposição, maior será a taxa de produção de portadores no material. Isto leva a um aumento no número de elétrons "quase-livres" e no número de lacunas aprisionadas (centros de recombina-

ção). Deste modo a taxa de recombinação deve também crescer, e isto se reflete como um aumento no coeficiente de recombinação (na equação (21) temos o produto $\alpha n m$, e um aumento de n e m tem o mesmo efeito que um aumento de α).

O processo de aumento da taxa de geração de portadores é diferente quando se eleva o campo ou a taxa de exposição. No primeiro caso o aumento ocorre pela diminuição da probabilidade de ocorrer recombinação geminativa (efeito Onsager). No segundo, ocorre pela produção maior de portadores pela radiação. Por alguma razão, ainda desconhecida por nós, este fato deve levar a diferente variação de α com g nos dois processos.

A variação da densidade de armadilhas no nível 1, também constatada nas diferentes medidas, pode ter como causa a utilização de amostras diferentes.

7.2.2. AJUSTE TEÓRICO-EXPERIMENTAL PARA O KAPTON

Para o Kapton foram feitas suposições semelhantes às feitas para o PET, isto é, foi considerada condução unipolar, sendo os elétrons os portadores predominantes. Neste caso também foram considerados dois níveis de armadilhas profundas. Os cálculos dos parâmetros μ , τ_1 , τ_2 , τ_1^* , τ_2^* e N_2 foram efetuados usando as mesmas considerações e expressões utilizadas para o PET. Pela análise da subida inicial da RIC, no instante em que a radiação é aplicada, foram obtidos os valores de τ_1 e τ_2 , sendo respectivamente 0,9 s e 70 s. Os parâmetros α , g e N_1 puderam variar até se obter o melhor ajuste teórico-experimental.

As figuras 67 e 68 comparam os resultados experimentais com os previstos pela teoria (linha contínua), para diferentes

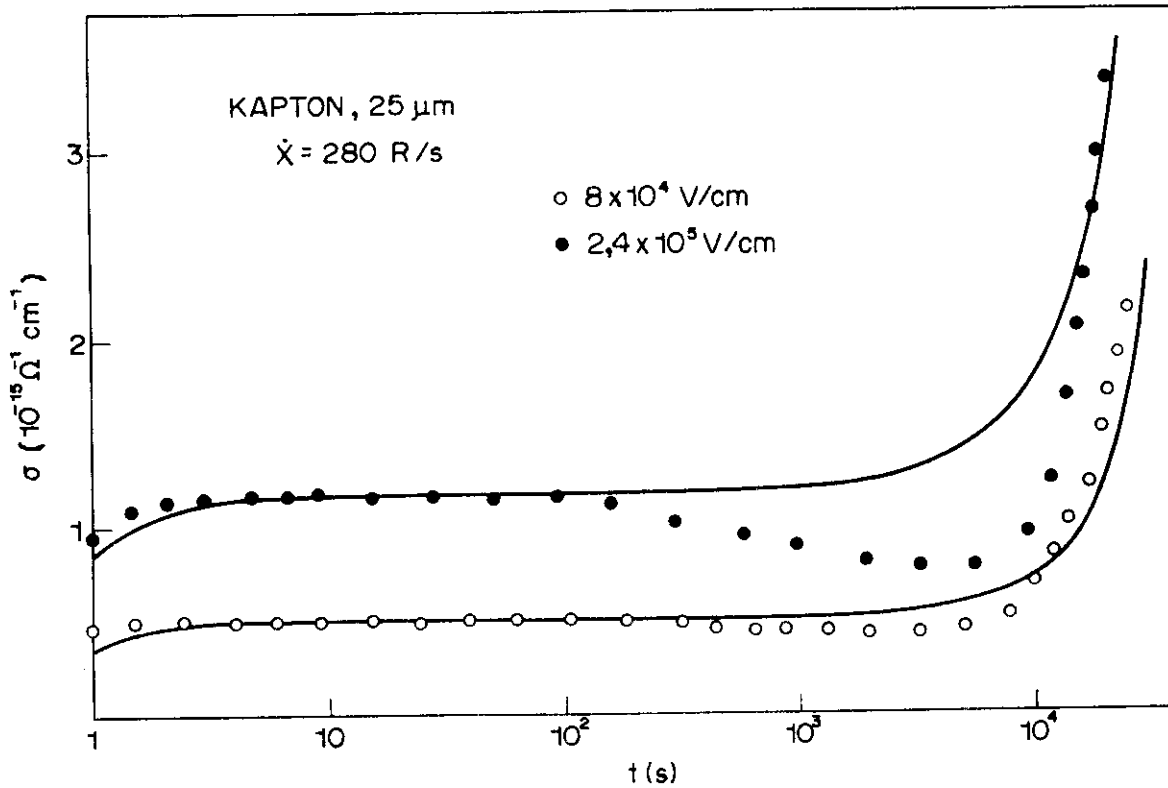


Figura 67 - Ajuste teórico-experimental da RIC em função do tempo para o Kapton, com diferentes campos aplicados.

campos e taxas de exposições. Os parâmetros utilizados estão na tabela VI.

Com os parâmetros da tabela VI, para $E = 8 \times 10^4 \text{ V/cm}$ e $\dot{X} = 280 \text{ R/s}$, e as equações (21) - (24), obteve-se a variação da concentração dos portadores, livres e aprisionados, com o tempo. Os resultados são mostrados na figura 69. A densidade de portadores aprisionados no nível 1 atinge a saturação (trap filling) após $\sim 50.000 \text{ s}$ de irradiação, sendo esta a principal responsável pelo forte crescimento observado na RIC.

Para o Kapton não foi possível uma comparação dos valores obtidos para os parâmetros porque nada foi encontrado na literatura. No processo de ajuste teórico-experimental para este mate

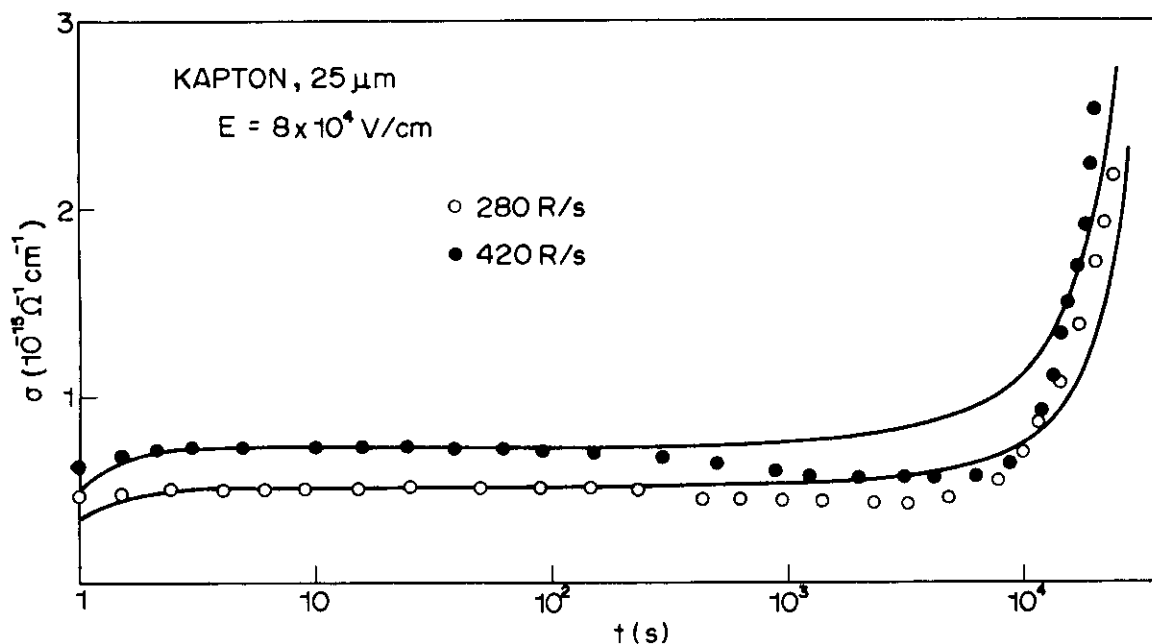


Figura 68 - Ajuste teórico-experimental da RIC em função do tempo para o Kapton, com diferentes taxas de exposições.

TABELA VI

PARÂMETROS UTILIZADOS NO AJUSTE TEÓRICO-EXPERIMENTAL DO KAPTON

PARÂMETROS	E = 8 x 10 ⁴ V/cm		Ẋ = 280 R/s	
	Ẋ = 280 R/s	Ẋ = 420 R/s	E = 8 x 10 ⁴ V/cm	E = 2,4 x 10 ⁴ V/cm
μ (cm ² V ⁻¹ s ⁻¹)	1,42x 10 ⁻¹⁰	1,42x 10 ⁻¹⁰	1,42 x 10 ⁻¹⁰	1,42 x 10 ⁻¹⁰
g (cm ⁻³ s ⁻¹)	2,47x 10 ¹³	3,56x 10 ¹³	2,47 x 10 ¹³	5,75 x 10 ¹³
α (cm ³ s ⁻¹)	1,2 x 10 ⁻¹⁹	1,2 x 10 ⁻¹⁹	1,2 x 10 ⁻¹⁹	1,2 x 10 ⁻¹⁹
τ ₁ (s)	0,9	0,9	0,9	0,9
τ ₂ (s)	70,0	70,0	70,0	70,0
τ ₁ [*] (s)	10 ⁵	10 ⁵	10 ⁵	10 ⁵
τ ₂ [*] (s)	10 ⁵	10 ⁵	10 ⁵	10 ⁵
N ₁ (cm ⁻³)	8 x 10 ¹⁷	10 ¹⁸	8,0 x 10 ¹⁷	1,5 x 10 ¹⁸
N ₂ (cm ⁻³)	10 ¹⁷	5 x 10 ¹⁷	10 ¹⁷	5 x 10 ¹⁷

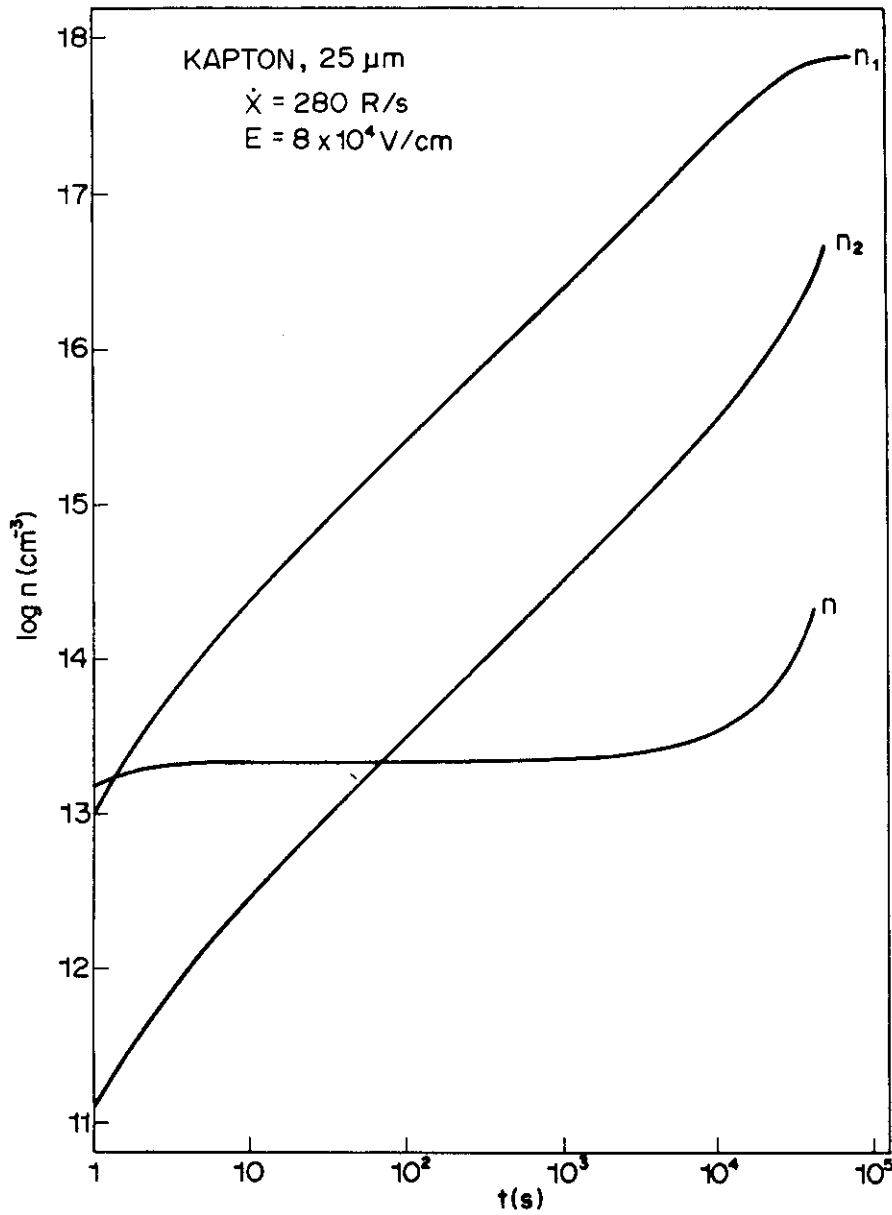


Figura 69 - Concentração de portadores "quase-livres" (n), aprisionados nas armadilhas de nível 1 (n_1) e nível 2 (n_2), em função do tempo, para $E = 8 \times 10^4 \text{ V/cm}$ e $\dot{X} = 280 \text{ R/s}$.

rial, não houve variação do coeficiente de recombinação nem com o campo nem com a taxa de exposição. Por outro lado, os resultados teóricos não apresentaram o decréscimo da RIC tão evidente nas medidas realizadas com campos mais intensos (figura 39), e com a-

mostras mais espessas (figura 43). Essa diferença entre os resultados teóricos e os experimentais será discutida a seguir.

7.2.3. CONSIDERAÇÕES SOBRE O MODELO TEÓRICO PROPOSTO

Os resultados experimentais da evolução temporal da RIC para o Kapton mostram um decréscimo da condutividade induzida logo após o estado quase estacionário (patamar inicial). Esse decréscimo é mais acentuado para campos mais intensos, amostras mais espessas e taxas de exposições mais elevadas, embora neste último caso com menos intensidade (figuras 39, 41 e 43).

Os resultados previstos pelo modelo teórico proposto forneceram um comportamento temporal para a RIC ligeiramente diferente. A RIC atinge um estado quase estacionário inicial e, em seguida, inicia seu forte crescimento, sem apresentar qualquer decréscimo em seu valor (figuras 67 e 68). Outro resultado experimental não previsto pela teoria aqui desenvolvida é o aumento do valor da RIC quase estacionária inicial com a espessura da amostra, para amostras de mais de 12,5 μm (figura 43). Essas discordâncias teórico-experimentais provavelmente ocorrem devido a existência de algum efeito no material não considerado pela teoria.

Uma hipótese questionável feita no desenvolvimento do modelo proposto foi a uniformidade na geração de portadores pela radiação ao longo da amostra. Essa suposição resultou na neutralidade de carga no material e, conseqüentemente, na ausência de carga espacial. Porém, como será discutido no capítulo VIII, os fotoelétrons gerados no eletrodo de incidência e que penetram na amostra, contribuem de maneira significativa na produção de portadores na amostra. Portanto, a hipótese de geração uniforme de carga

no material só é válida quando o alcance médio desses fotoelétrons for da ordem da espessura da amostra. Em nosso caso a energia média dos fotoelétrons foi da ordem de 35 KeV, o que leva a um alcance no PET da ordem de 22 μm [61]. Para o Kapton esse valor não deve diferir muito, já que os dois materiais tem densidades bastante próximas.

Conseqüentemente, amostras de espessuras superiores a 22 μm não devem apresentar uma geração uniforme de carga em seu volume durante a irradiação. Maior taxa de exposição será recebida na região mais próxima do eletrodo de incidência. A divisão da amostra nessas duas regiões, mais e menos irradiada, poderia ocasionar a formação de uma densidade de carga espacial negativa na interface entre elas [4]. Como a tensão aplicada no eletrodo de incidência é positiva, a carga espacial aumentaria a intensidade média do campo elétrico na região mais irradiada e diminuiria no volume restante da amostra. Isto provocaria o decréscimo da corrente induzida observado experimentalmente. Na figura 43 pode-se observar que o decréscimo da corrente se acentua com a espessura da amostra, praticamente não ocorrendo em amostras com menos de 22 μm , o que concorda com a nossa suposição. O tempo decorrido entre o início da irradiação e o instante em que a corrente induzida começa a cair, seria o tempo necessário para a formação da carga espacial.

Maior taxa de exposição também contribuiria para a formação de uma carga espacial mais intensa e mais rápida, pois mais elétrons seriam injetados na amostra pelo eletrodo. A figura 41 mostra que o aumento da taxa de exposição realmente acentua a queda da corrente, assim como diminui o tempo necessário para seu início.

A utilização de eletrodo de ouro, como vimos, causa um aumento na taxa de exposição recebida pela amostra. Esse aumento é devido ao maior número de fotoelétrons injetados pelo eletrodo. Portanto, a troca de eletrodo de alumínio pelo de ouro deveria acentuar ainda mais o efeito devido à formação de carga espacial. Porém, como se pode observar na figura 44, a medida realizada com eletrodo de ouro não apresentou qualquer diminuição na corrente. A explicação para esse resultado, aparentemente contraditório, pode ser a seguinte: Essa medida foi realizada com eletrodos de ouro na amostra principal e na compensadora. Desta forma a amostra principal ficou com o eletrodo inferior com o dobro da espessura, a espessura de seu próprio eletrodo e a do eletrodo superior da amostra compensadora (ver esquema à direita da figura 55). Este aumento da espessura e, principalmente, o aumento do número atômico causado pela troca do eletrodo de alumínio pelo de ouro, contribuíram para uma considerável elevação no número de fotoelétrons retroespalhados no eletrodo inferior e que atingiram a amostra. Esses fotoelétrons, que também contribuem significativamente na produção de portadores no material, auxiliaram na uniformização da geração de cargas na amostra, evitando a formação de carga espacial. Se essa medida tivesse sido feita com uma amostra bem mais espessa, ou com eletrodos inferior e da amostra compensadora de alumínio, provavelmente o efeito teria se acentuado. Medidas como essas, que forneceria mais dados para a comprovação ou não de nossa hipótese, só não foram realizadas porque já estávamos na fase final de redação deste trabalho. Porém, essas e outras medidas são sugeridas no capítulo IX, cujos resultados poderão elucidar algumas dúvidas levantadas neste trabalho.

A figura 39 mostra que o aumento da intensidade do cam-

po aplicado também acentua e antecipa a queda da corrente induzida. Aparentemente esse efeito é influenciado igualmente com o aumento do campo ou da espessura da amostra. Esse fato não pode ser explicado, necessitando-se para tanto de outros resultados experimentais.

A figura 70 (A) mostra a mesma inversão de polaridade da figura 46, porém em escala linear. Na figura 70 (B) tem-se a corrente de absorção ocasionada pela aplicação de 400 V à amostra, sem irradiação. Dois resultados são notáveis: a) Não houve uma perfeita continuidade na evolução temporal da RIC quando a polari

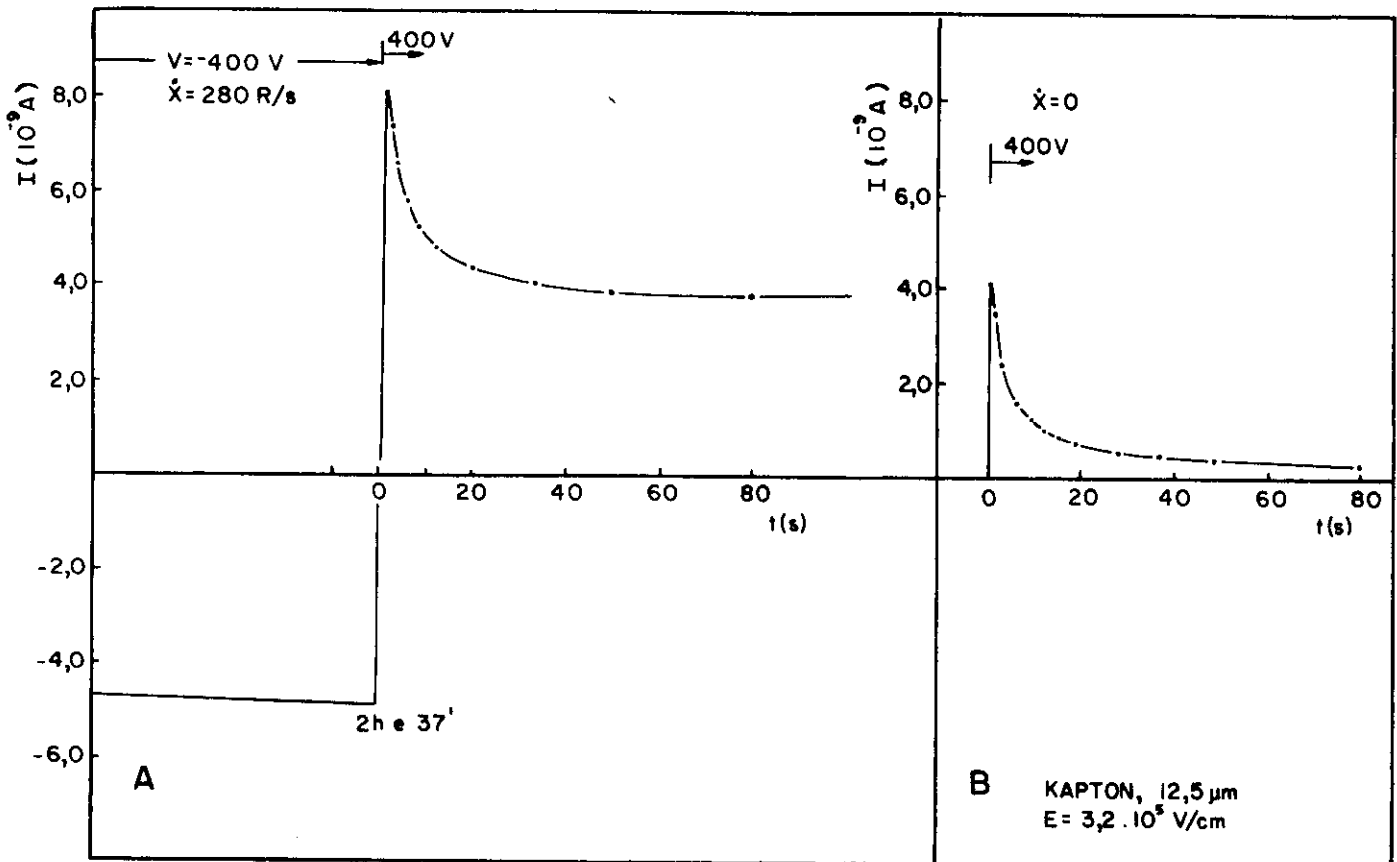


Figura 70 - (A) Mesma inversão de polaridade mostrada na figura 46, em escala linear.

(B) Corrente de absorção dielétrica para uma aplicação de tensão de 400 V, sem irradiação.

dade da tensão foi invertida. O valor da corrente apresentou uma ligeira diminuição após a inversão, fato não observado com o PET, cujo valor absoluto da RIC não foi alterado. b) A corrente de absorção elétrica que ocorreu na inversão da polaridade (de - 400 V para 400 V), deveria ser o dobro daquela observada na simples polarização da amostra. Porém, como se pode notar, os picos de absorção nos dois casos são aproximadamente iguais, podendo-se supor que realmente deve existir um efeito de polarização causado pela radiação, provavelmente devido a formação de uma carga espacial, o que fortalece nossa hipótese. Durante a formação dessa carga espacial, logo após aplicada a irradiação, o efeito resultante seria o aumento da corrente induzida com a espessura da amostra. Após formada, a carga espacial tenderia a diminuir a intensidade do campo no volume menos irradiado da amostra e, em consequência, diminuiria também a corrente induzida. Essa diminuição seria tanto mais acentuada quando mais espessa fosse a amostra, o que concorda com os resultados experimentais apresentados.

No PET esse efeito também poderia ter ocorrido em campos elevados e amostras mais espessas. Porém não se tornou tão evidente porque o instante em que ele deveria começar a se manifestar coincidiu com a queda monotônica apresentada pela RIC nesse material (~ 1000 s após o início da irradiação). Provavelmente, a queda da corrente observada nesse material tenha sido ocasionada pela superposição de dois efeitos: àquele devido as características intrínsecas do material (armadilhas e centros de recombinação), e à formação da carga espacial. De fato, pode-se observar que o decréscimo da RIC apresentado pelos resultados experimentais é um pouco mais acentuado que o previsto pela teoria (figuras 63 e 64).

Outra suposição feita no modelo teórico proposto foi a existência de dois níveis de armadilhas profundas. As medidas de TSC mostraram que pode haver nos materiais uma distribuição de níveis de armadilhas. A relação exponencial entre a corrente induzida estacionária e a taxa de exposição, mostrada no capítulo III, forneceu para os dois materiais $\Lambda = 0,93$. Esse valor próximo da unidade, segundo a teoria de Fowler [13], é característico de uma distribuição uniforme de armadilhas em energia. Provavelmente uma melhor concordância teórico-experimental teria sido obtida pela introdução de uma distribuição ou de múltiplos níveis de armadilhas.

De qualquer forma, era de se esperar que utilizando um modelo teórico relativamente simples como o aqui proposto não se poderia exigir que todos os resultados experimentais fossem explicados.

Na tabela VII estão apresentados os parâmetros obtidos pelo ajuste teórico-experimental, para os dois materiais. Os valores dependentes do campo elétrico e da taxa de exposição são dados para $E = 8 \times 10^4$ V/cm e $\dot{X} = 280$ R/s.

TABELA VII

PARÂMETROS OBTIDOS PELO AJUSTE TEÓRICO-EXPERIMENTAL, PARA OS DOIS MATERIAIS ESTUDADOS

PARÂMETROS	PET	KAPTON
g - taxa de geração de portadores ($\text{cm}^{-3} \text{s}^{-1}$)	$2,55 \times 10^{13}$	$2,47 \times 10^{13}$
α - coeficiente de recombinação modulado ($\text{cm}^3 \text{s}^{-1}$)	$1,1 \times 10^{-17}$	$1,2 \times 10^{-19}$
μ - mobilidade modulada (efetiva) ($\text{cm}^2 \text{V}^{-1} \text{s}^{-1}$)	$1,4 \times 10^{-10}$	$1,42 \times 10^{-10}$
θ - fator de redução ($= \mu/\mu_0$)	$1,4 \times 10^{-7}$	-
α_0 - coeficiente de recombinação livre ($\text{cm}^3 \text{s}^{-1}$)	10^{-10}	-
μ_0 - mobilidade livre ($\text{cm}^2 \text{V}^{-1} \text{s}^{-1}$)	10^{-3}	-
τ_1 - tempo de captura modulado (nível 1) (s)	0,8	0,9
τ_2 - tempo de captura modulado (nível 2) (s)	5,0	70,0
τ_1^* - tempo de escape modulado (nível 1) (s)	2×10^5	10^5
τ_2^* - tempo de escape modulado (nível 2) (s)	7×10^4	10^5
N_1 - densidade total de estados localizados (nível 1) (cm^{-3})	$1,8 \times 10^{16}$	8×10^{17}
N_2 - densidade total de estados localizados (nível 2) (cm^{-3})	10^{20}	10^{17}

CAPÍTULO VIII
DISCUSSÕES

Neste capítulo discutiremos alguns resultados experimentais apresentados nos Capítulos II, IV e VI.

8.1. Efeito do Campo na Geração de Portadores

No capítulo III foi mostrado que a corrente induzida estacionária inicial para o PET apresentou características ôhmicas para $E < 8 \times 10^4 \text{V/cm}$. Para intensidades do campo superiores, o comportamento da corrente se desviou do ôhmico passando a variar com $E^{1,76}$. O comportamento da corrente induzida inicial para o Kapton foi semelhante, porém neste caso a corrente induzida passa da característica ôhmica para a dependência $E^{1,8}$ com intensidades do campo superiores a $6 \times 10^4 \text{V/cm}$. Esse comportamento superlinear da corrente induzida é atribuído a dependência da taxa de geração de portadores com o campo.

O modelo de recombinação geminativa, desenvolvido por Onsager [64] em 1934, foi inicialmente utilizado para explicar o efeito de um campo aplicado na dissociação eletrolítica em fracos eletrólitos. Usando a equação do movimento Browniano na presença de uma atração Coulombiana e com um campo elétrico superposto, Onsager determinou a dependência da eficiência de dissociação com o campo aplicado. A figura 71 mostra a eficiência quântica relativa ϕ/ϕ_0 em função da intensidade do campo elétrico aplicado, para diferentes valores da distância de thermalização r_0 (separação inicial entre o elétron e o íon positivo), à temperatura ambiente e para $\epsilon = 3$.

O raio crítico r_c é a distância entre os íons quando a energia de Coulomb é igual a KT .

$$r_c = \frac{e^2}{4\pi\epsilon\epsilon_0 kT} \quad (28)$$

Esse valor \tilde{e} é considerado a distância de separação que distingue os portadores ligados dos livres.

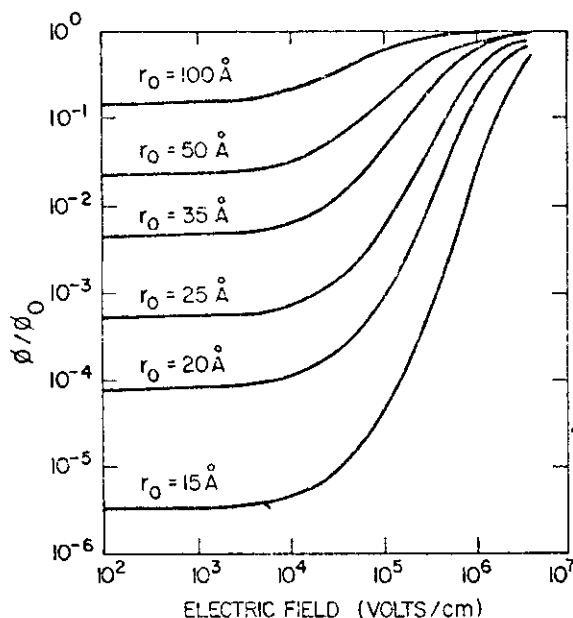


Figura 71. Probabilidade de escape em função do campo, predita pela teoria de Onsager, para uma distribuição inicial isotrópica de pares elétron-lacunas. $T = 296K$ e $\epsilon = 3$ (da ref. 77)

O potencial de Coulomb na presença de um campo elétrico aplicado E , em coordenadas polares, é modificado para:

$$U = - \frac{e^2}{4\pi\epsilon\epsilon_0 r} - eEr\cos\theta \quad (29)$$

No processo de fotogeração, os pares elétron-lacuna gerados podem se recombinar, devido a mútua atração Coulombiana, ou se separar em elétron livre e lacuna. A presença de um campo elétrico externo pode aumentar a probabilidade dessa dissociação, aumentando deste modo a taxa de geração de portadores. No caso de recombinação geminativa é considerado que a taxa de ge-

ração de portadores aumenta linearmente com a intensidade do campo elétrico, para intensidades relativamente baixas. De acordo com a estimativa teórica de Onsager, o valor da relação entre a inclinação e a intersecção da reta assim obtida é independente da distância inicial de termalização entre o elétron e o íon do qual foi ele arrancado. Essa relação é dada por:

$$\frac{\text{inclinação}}{\text{intersecção}} = \frac{e^3}{8 \pi \epsilon \epsilon_0 k^2 T^2} \quad (30)$$

onde ϵ e ϵ_0 são, respectivamente, as constantes dielétricas do material e do vácuo, k é a constante de Boltzmann, T a temperatura ambiente em Kelvin e e a carga elementar.

Sendo essa relação independente de uma particular distribuição de pares termalizados e não contendo nenhum parâmetro ajustado, ela constitui um teste crítico da teoria.

Utilizando a relação 27, onde σ é o valor experimental da RIC estacionária inicial (10 segundos após o início da irradiação), pode-se determinar a taxa de geração de portadores para diferentes intensidades do campo aplicado. A Tabela VIII fornece, para os dois materiais estudados, os valores da RIC estacionária inicial e da respectiva taxa de geração de portadores para várias intensidades do campo aplicado.

TABELA VIII

TAXA DE GERAÇÃO DE PORTADORES PARA VÁRIOS CAMPOS
ELÉTRICOS APLICADOS

$E \times 10^4 \text{ V/cm}$	$\sigma \times 10^{-16} \Omega^{-1} \text{ cm}^{-1}$		$g \times 10^{13} \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$	
	PET	KAPTON	PET	KAPTON
1,0	4,20	3,55	2,71	1,76
2,0	4,10	3,65	2,65	1,80
4,0	4,10	3,50	2,65	1,73
6,0	4,20	3,55	2,71	1,76
8,0	4,00	5,00	2,55	2,47
12,0	-	7,00	-	3,46
16,0	6,60	8,50	4,27	4,20
24,0	-	11,63	-	5,75
32,0	8,70	15,25	5,62	7,54
48,0	22,30	-	14,40	-

As Figuras 72 e 73, mostram que a taxa de geração de portadores aumenta de forma aproximadamente linear com o campo, sendo que para o PET em intensidade superior a $8 \times 10^4 \text{ V/cm}$ e para o Kapton, $6 \times 10^4 \text{ V/cm}$. Utilizando a equação 30, onde $T = 298\text{K}$, obtem-se como valores das constantes dielétricas do PET e do Kapton 3,1 e 3,5, respectivamente. Esses valores estão em excelente concordância com aqueles encontrados na literatura e apresentados nas Tabelas I e II do Capítulo I.

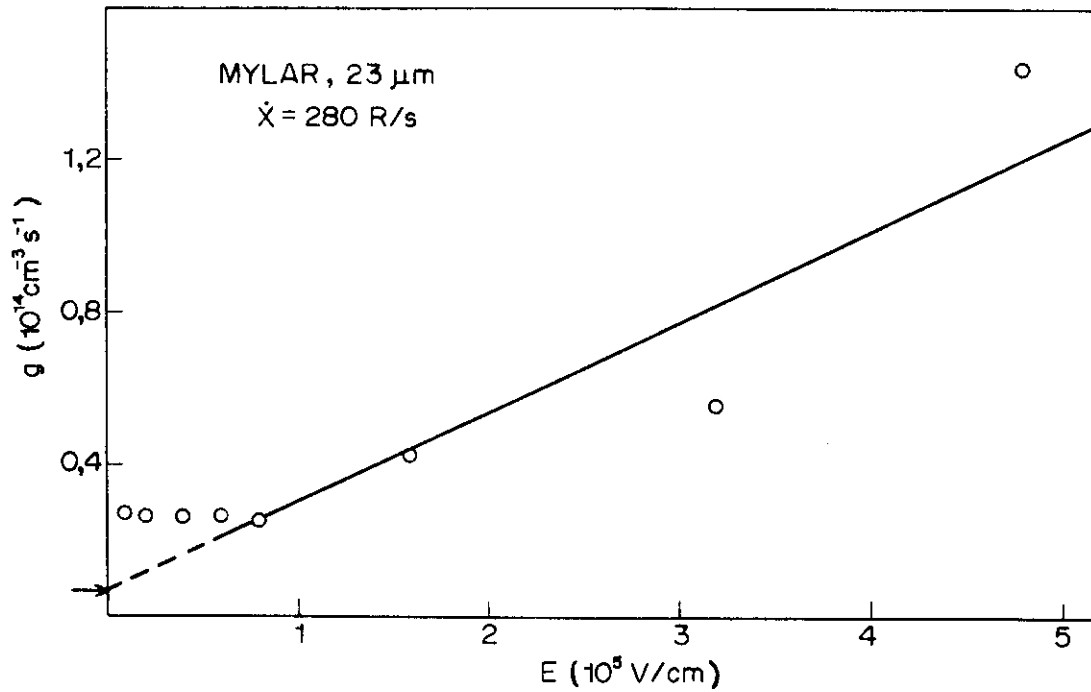


Figura 72. Taxa de geraão de portadores para diferentes campos aplicados (PET)

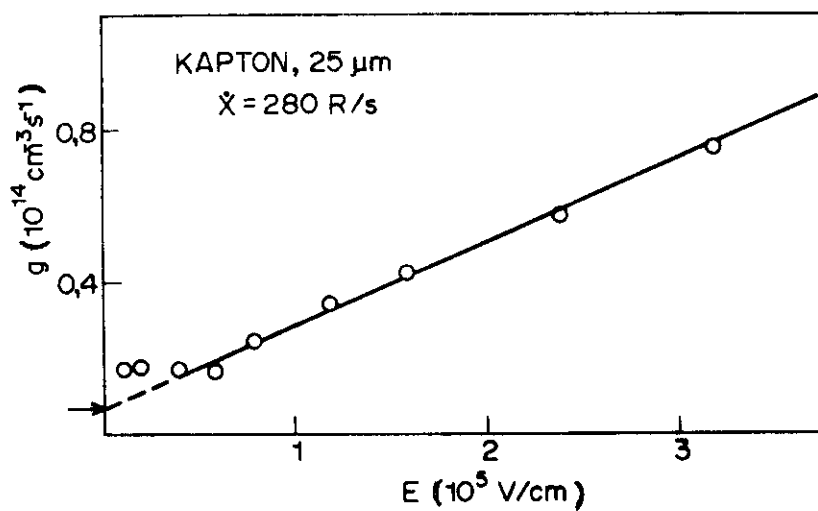


Figura 73. Taxa de geraão de portadores para diferentes campos aplicados (Kapton)

Com os valores de g e utilizando a equação (6), pode-se calcular a dependência com o campo da energia média necessária para a formação de pares nos dois materiais. Os valores assim obtidos estão na Tabela IX.

TABELA IX

ENERGIA MÉDIA NECESSÁRIA PARA A CRIAÇÃO DE UM PAR DE PORTADORES EM FUNÇÃO DO CAMPO ELÉTRICO APLICADO

$E \times 10^4 \text{ V/cm}$	W(eV)	
	PET ($\rho = 1,395\text{g/cm}^3$)	Kapton ($\rho = 1,42\text{g/cm}^3$)
1,0	810,7	1.270,7
2,0	829,1	1.242,5
4,0	829,1	1.292,8
6,0	810,7	1.270,7
8,0	861,6	905,5
12,0	-	646,4
16,0	514,5	532,5
24,0	-	388,9
32,0	390,9	296,6
48,0	152,6	-

Dos resultados obtidos vemos que para produzir um par de portadores no PET é necessário em média menos energia do que no Kapton, na ausência de um campo elétrico, ou com um campo cuja intensidade torne o efeito Onsager desprezível. Por outro lado, o efeito Onsager se manifesta com menor intensidade de campo e de maneira mais pronunciada no Kapton. Este resultado está coerente com os valores das constantes dielétricas dos dois materiais: o que contém maior ϵ possui menor atração Coulombiana entre o elétron e o íon do qual foi arrancado, e portanto sofre in

fluência do campo para menor intensidade deste. Estes resultados explicam os valores da corrente induzida estacionária inicial em função do campo aplicado para os dois materiais. Na Figura 74 pode-se notar que para valores da intensidade do campo onde o efeito Onsager influi na dissociação dos portadores produzidos de modo desprezível, a corrente induzida estacionária inicial é maior no PET que no Kapton. Isto ocorre porque, sendo a energia média necessária para produzir um par de portadores menor no PET, mais portadores são gerados nesse material. Por outro lado, a influência do campo no aumento da taxa de geração de portadores, tem início no Kapton para menor intensidade do campo. Em consequência as correntes induzidas no Kapton passam a ter valores superiores aos do PET em campos de intensidades maiores que 7×10^4 V/cm.

Pelos valores experimentais obtidos não foi possível de terminar exatamente a intensidade do campo em que o efeito Onsager começa a influenciar a taxa de geração de portadores. Porém podemos dizer que esse valor está próximo de 6×10^4 V/cm para o Kapton, e de 8×10^4 V/cm para o PET. Considerando esses valores podemos calcular, aproximadamente, a distância em que os íons se tornam livres, sob a influência de um campo, para os dois materiais, com auxílio da expressão 29. Fazendo $U = 0$, obtém-se 82 \AA e 78 \AA , respectivamente, para o Kapton e para o PET. Pode-se dizer que a distância de escape para ambos materiais é da ordem de 80 \AA .

O raio crítico, dado por 28, pode ser calculado para o PET e para o Kapton, com $T = 300\text{K}$, fornecendo 180 \AA e 160 \AA , respectivamente.

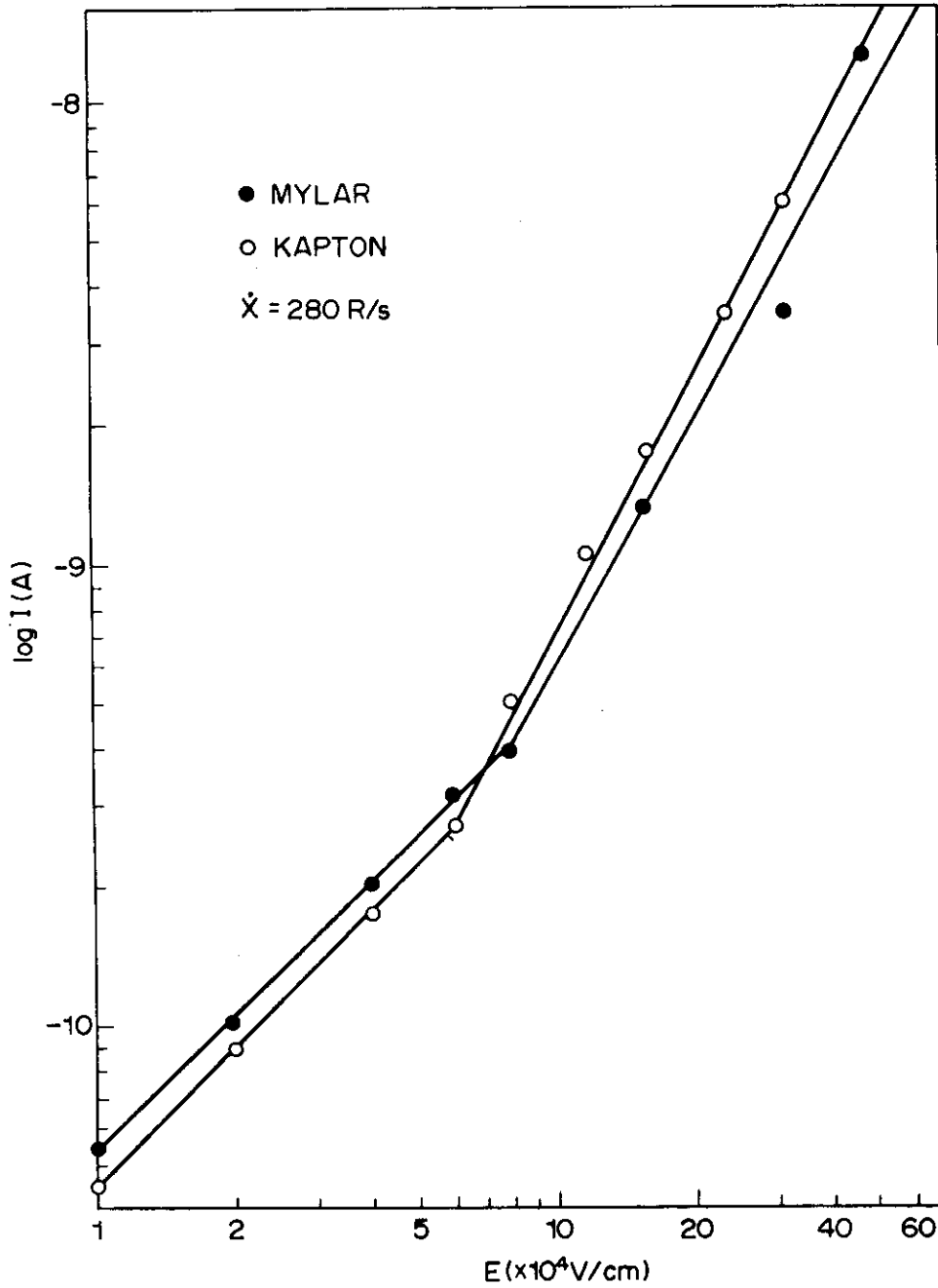


Figura 74. Corrente induzida estacionária inicial em função do campo elétrico aplicado para o PET (●) e Kapton (○).

8.2. Variação da corrente fotônica com a espessura da amostra

No Capítulo I vimos que quando a radiação x de baixa energia (< 200 KeV) atinge a amostra, ejeta elétrons energéticos provenientes da interação fotoelétrica, e os elétrons que possuem velocidade na direção de incidência da radiação, ocasionam

o aparecimento de um fluxo de elétrons. A esse fluxo deu-se o nome de corrente fotônica [11]. Esses elétrons podem ser produzidos na própria amostra ou nos eletrodos. O material que constitui o eletrodo (Al ou Au) possui número atômico muito maior que dos elementos que compõe a amostra (PET ou Kapton), portanto a probabilidade de ocorrer efeito fotoelétrico nos eletrodos é muito maior que na amostra. Porém, como a espessura da amostra é bem maior que a do eletrodo, a produção total de fotoelétrons pela radiação diretamente na amostra é superior a produzida no eletrodo.

Os fotoelétrons produzidos no eletrodo superior, onde incide a radiação, e que penetram na amostra, tem uma distribuição de energia semelhante a distribuição energética do raio-x que os origina. Como vimos no Capítulo II, foi utilizado em nossas medidas um tubo de raio-x com anodo de tungstênio, e a tensão de aceleração dos elétrons foi de 75 KV. A distribuição energética da radiação assim produzida é semelhante à apresentada na Figura 75.

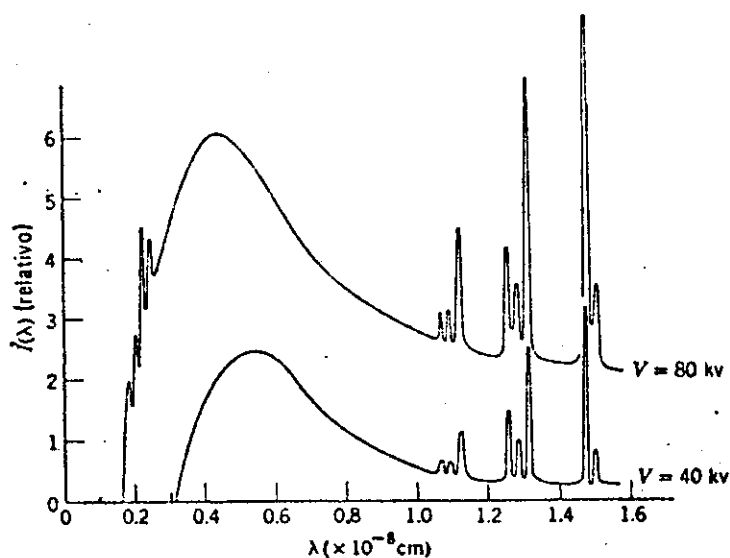


Figura 75. Espectro contínuo de energia do raio-x emitido por elétrons de 80KeV e 40 KeV, incidindo em um alvo de tungstênio (ref. 81).

Podemos considerar então que, além da radiação x, incidem na amostra elétrons com uma distribuição de energia semelhante a dada pela Figura 75.

A curva de transmissão de elétrons com distribuição contínua de energia através de um meio, tem a forma aproximadamente exponencial, conforme ilustra a Figura 76.

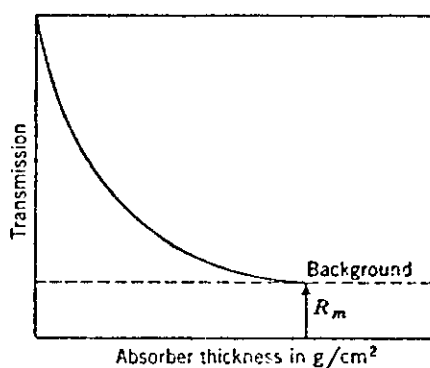


Figura 76. Transmissão de raio β , com um espectro contínuo de energia, em função da espessura do absorvedor. R_M é chamado alcance máximo (da ref. 8).

O alcance máximo dos elétrons no meio pode ser determinado experimentalmente (graficamente), pelo ponto em que a curva quase exponencial se torna horizontal, como mostra a Figura 76.

No Capítulo VI foi mostrada a variação da corrente fônica em função da espessura da amostra, para os dois polímeros usados (Fig. 57). Do valor dessa corrente para cada espessura da amostra, podemos calcular o número de elétrons que atravessa a amostra em cada caso. Os resultados estão na Tabela X, para o Kapton e $\dot{X} = 280$ R/s.

TABELA X
ELÉTRONS/S EM FUNÇÃO DA ESPESSURA DA AMOSTRA

Corrente Fotônica $\times 10^{-11}$ A	Elétrons/s $\times 10^8$	Espessura da Amostra (cm)
6,09	3,80	6×10^{-4}
3,25	2,03	$12,5 \times 10^{-4}$
2,50	1,56	25×10^{-4}
1,65	1,03	50×10^{-4}
1,30	0,81	75×10^{-4}

Com esses valores, pode-se determinar a curva da intensidade de elétrons por segundo que atravessa a amostra em função da espessura desta. (Fig. 77)

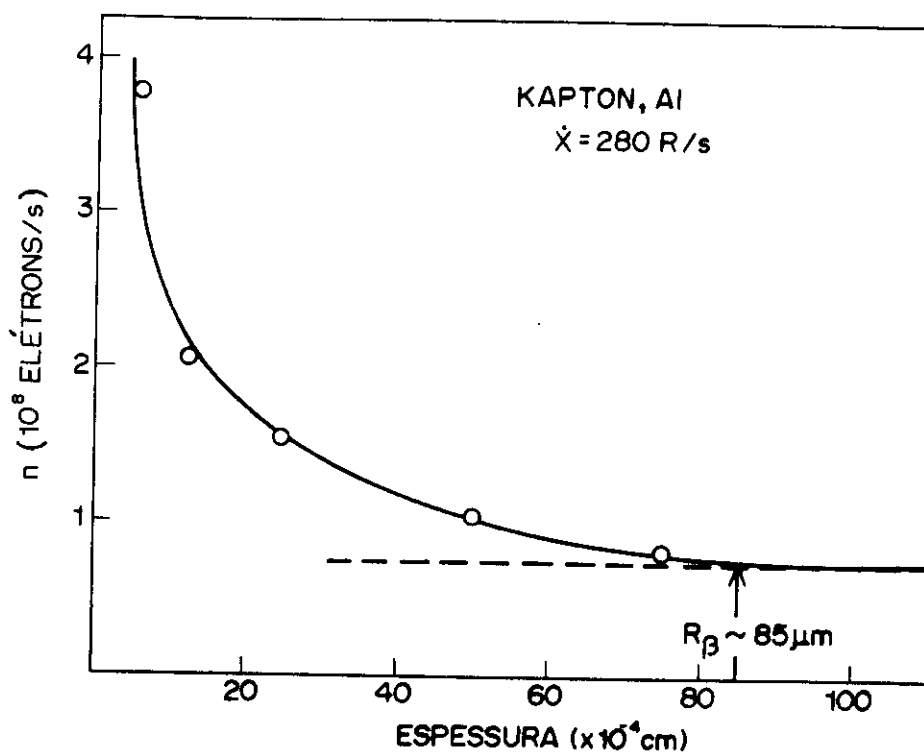


Figura 77. Intensidade de elétrons/s transmitidos através da amostra em função da espessura desta.

Deste gráfico, obtêm-se o máximo alcance dos elétrons, R_M , cujo valor foi de $\sim 85 \mu\text{m}$.

Utilizando a fórmula empírica discutida por Berger e Seltzer [61], e que fornece a profundidade de penetração de elétron de energia $E(\text{KeV})$ no PET:

$$R_M = 4 \times 10^{-8} E^{1,775} \text{ m} \quad (29)$$

Para $E = 75\text{KeV}$, obtêm-se $R_M = 8,517 \times 10^{-5} \text{ m} \cong 85,2 \mu\text{m}$.

A excelente concordância entre o valor de R_M obtido graficamente e o calculado pela expressão 29, nos permite supor que a consideração feita de que, durante a irradiação, incidem na amostra elétrons vindos do eletrodo, com uma distribuição de energia semelhante a do raio-x que os originou, é bastante aceitável. Além disso, fica explicada a diminuição da fotônica com o aumento da espessura da amostra.

Não foram utilizados os dados obtidos com o PET para a relação intensidade transmitida x espessura da amostra porque não dispunhamos de filme desse polímero com espessura superior a $50 \mu\text{m}$, e, desta forma ficaria difícil determinar graficamente o valor de R_M . Porém, como as densidades dos dois materiais utilizados são muito próximas, podemos supor que o alcance dos elétrons no PET é da mesma ordem que no Kapton.

É em parte da interação desses fotoelétrons no interior da amostra que resulta a produção de portadores livres, induzindo deste modo uma condutividade no material. Isto explica o aumento dessa condutividade quando o eletrodo de alumínio é trocado pelo de ouro, para uma mesma taxa de exposição. O ouro, possuindo maior número atômico, produz mais fotoelétrons que, ao atravessarem a amostra, geram um número maior de portadores livres no material.

Os fotoelétrons que atravessam a amostra tem alcances diferentes, já que possuem uma distribuição contínua de energia. Isto poderia resultar numa densidade de portadores produzidos não homogênea no interior da amostra. Mais portadores seriam produzidos próximo ao eletrodo superior, e o número deles diminuiria com a espessura da amostra. Porém, em nosso caso, a energia média dos elétrons arrancados do eletrodo e injetados na amostra está em torno de 35 KeV. O alcance no PET de elétrons dessa energia é da ordem de $22 \mu\text{m}$ [57]. Para amostras cuja espessura seja menor ou próxima desse valor, pode-se considerar que, praticamente, a produção de portadores livres pelos fotoelétrons seja homogênea. Mesmo para amostras um pouco mais espessas, essa consideração ainda é válida, já que fotoelétrons retroespalhados pelo eletrodo inferior da amostra, e que também penetram nela, podem auxiliar a homogenização da produção de portadores ao longo da amostra. Porém amostras com espessuras muito superiores a $22 \mu\text{m}$ podem ter uma geração de portadores não uniforme em profundidade, o que pode ocasionar um efeito de polarização, como já discutido no Capítulo VII.

A hipótese de que elétrons ejetados do eletrodo inferior pela radiação podem atingir a amostra, é confirmada pelos resultados obtidos na medida da RIC com diferentes eletrodos (Figura 28). A medida que utilizou amostra com eletrodo superior de alumínio e inferior de ouro, demonstra que houve uma maior dose de radiação do que a que utilizou ambos eletrodos de alumínio. Esse aumento de dose só pode ter sido ocasionado pelos elétrons retroespalhados no eletrodo inferior de ouro e que atingiram a amostra. O mesmo se aplica na diferença de dose recebida pela amostra que usou só o eletrodo superior de ouro e a que utilizou ambos eletrodos de ouro.

Nas medidas das fototônicas em amostras possuindo diferentes eletrodos, observou-se que a amostra com ambos eletrodos de ouro apresentou uma inversão no sentido da fototônica. Este resultado parece conflitar com as hipóteses até aqui feitas, já que mais fotoelétrons que atingem a amostra devem ser produzidos no eletrodo superior que retroespalhados no inferior. Porém, neste caso foi utilizada uma amostra compensadora também com ambos eletrodos de ouro. A radiação incidente teve, portanto, que atravessar uma espessura de ouro igual a duas vezes a espessura do eletrodo antes de atingir essa amostra: a espessura do eletrodo inferior da amostra medida e a do superior da compensadora (ver esquema ao lado da Fig. 55). O efeito foi equivalente a de se utilizar na amostra compensadora, um eletrodo superior de ouro com o dobro da espessura. Isto obviamente aumentou o número de fotoelétrons injetados nessa amostra, o que ocasionou um valor maior na sua fotônica. Como o eletrômetro media a diferença entre as fotônicas da amostra medida e da compensadora, e neste caso esta última foi maior, o que se observou foi uma inversão no sentido da corrente.

Esse mesmo efeito foi observado na medida da fotônica em uma amostra com eletrodo superior de alumínio e inferior de ouro. Neste caso, como em todas as outras medidas da fotônica com excessão da realizada na amostra com ambos eletrodos de ouro, a amostra compensadora usada possuía ambos eletrodos de alumínio. Porém, o eletrodo inferior de ouro da amostra medida injetou fotoelétrons na amostra compensadora, ocasionando nesta um aumento da fotônica. Isto novamente levou a uma medida de corrente de sentido invertido.

Esses resultados mostram que a RIC não é causada só pela produção de elétrons livres na amostra diretamente pela radiação, mas também pelos fotoelétrons, que nela penetram arrancados

do eletrodo ou por ele retroespalhado, o que explica a grande influência do material usado como eletrodo nessas medidas.

8.3. Influência do Ar nas Medidas da RIC

No Capítulo V foi visto que a evolução temporal da RIC em medidas realizadas no ar, apresentou um comportamento diferente daquelas obtidas no vácuo (Fig. 60 e 61). Para o PET houve um retardo e uma diminuição no crescimento que a RIC apresenta logo após o estado estacionário inicial. Com um campo aplicado de 8×10^4 V/cm e uma taxa de exposição de 280R/s, no vácuo esse aumento iniciou após 250 s de irradiação e a RIC máxima atingiu $1,06 \times 10^{-9}$ A. No ar, esse aumento só começou após 800 s de irradiação e o valor máximo foi de 7×10^{-10} A.

A influência do ar nas medidas da RIC realizadas no Kapton foi ainda mais drástica. O forte crescimento da RIC que ocorreu nesse material no vácuo, após aproximadamente 100 minutos de irradiação, não foi observado nas medidas efetuadas no ar (Fig. 61).

Pelo modelo teórico proposto no Capítulo VI, pode-se obter as mesmas alterações apresentadas na RIC quando realizada no ar, para os dois materiais, aumentando-se a densidade de armadilhas profundas e o coeficiente de recombinação. Na Figura 78, a curva contínua é a mesma apresentada na Figura 64, para $E = 8 \times 10^4$ V/cm, e a curva descontínua foi obtida usando os mesmos parâmetros da curva contínua, e que se encontram na Tabela V, com exceção dos valores de N_1 e α que passaram, respectivamente, para $2,7 \times 10^{16}$ cm⁻³ e $1,4 \times 10^{-17}$ cm³/s. Ainda na Figura 78 foram incluídos também os resultados experimentais das

medidas efetuadas no vácuo (●) e no ar (○).

Para o Kapton também se obteve resultado semelhante. Aumentando-se a densidade de armadilhas profundas e o coeficiente de recombinação, a teoria proposta forneceu uma variação temporal da RIC igual a observada entre as medidas realizadas no vácuo e no ar. O aumento dado aos parâmetros citados deram como resultado uma RIC sem o forte crescimento observado no vácuo.

Esse resultado é mostrado na Figura 79, onde as duas curvas foram obtidas, pela teoria proposta, usando-se os mesmos parâmetros apresentados na Tabela VI, para $E = 8 \times 10^4 \text{V/cm}$ e $\dot{X} = 280 \text{R/s}$, com excessões dos valores de N_1 e α , que foram alterados para $3,0 \times 10^{18} \text{cm}^{-3}$ e $9,5 \times 10^{-19} \text{cm}^3/\text{s}$, respectivamente (curva descontínua).

Concluimos que, pela teoria proposta, a diferença de comportamento que ocorre na RIC, nos dois materiais, quando a medida foi realizada no ar ou no vácuo, se deve a maior densidade de armadilhas profundas e ao aumento da recombinação que ocorre quando a medida foi feita no ar.

No trabalho realizado por Kurtz e Arnold [32], já citado no Cap. I, foi observado que se mergulhando amostras de PET em uma solução de álcool benzil e 2,4,7 - trinitro-9-fluorenone (TNF), este se difundia na amostra dopando-a. Medindo a RIC em amostras não dopadas e em amostras dopadas com diferentes concentrações de TNF, foi observada uma significativa diminuição da RIC com o aumento da dopagem. Com auxílio de medidas de TSC, concluíram que o TNF, um aceitador de elétrons, ao se difundir na amostra funcionava como armadilha profunda, competindo com as armadilhas rasas intrínsecas existentes no PET na captura de elétrons livres.

Analisando os resultados obtidos, e descritos acima, nas medidas da RIC no ar, podemos supor que o ar, ou vapor d'água, se difundindo na amostra pode alterar o comportamento da RIC funcionando como armadilha e centro de recombinação, do mesmo modo que ocorreu com o TNF.

Pela medida realizada em ar seco (Fig. 60), pode-se notar que o comportamento da RIC não só se aproximou bastante do realizado no ar úmido, como se afastou ainda mais daquele obtido no vácuo. Esse resultado nos pareceu suficiente para excluir a difusão de vapor d'água como responsável pela alteração na evolução da RIC. Concluimos então que é a difusão de O_2 e N_2 na amostra que causa a diferença observada no comportamento temporal da RIC. Esses gases, sob radiação, funcionam como armadilhas e centros de recombinações para os elétrons livres, ocasionando deste modo um aumento na densidade de armadilhas profundas e um aparente aumento no coeficiente de recombinação.

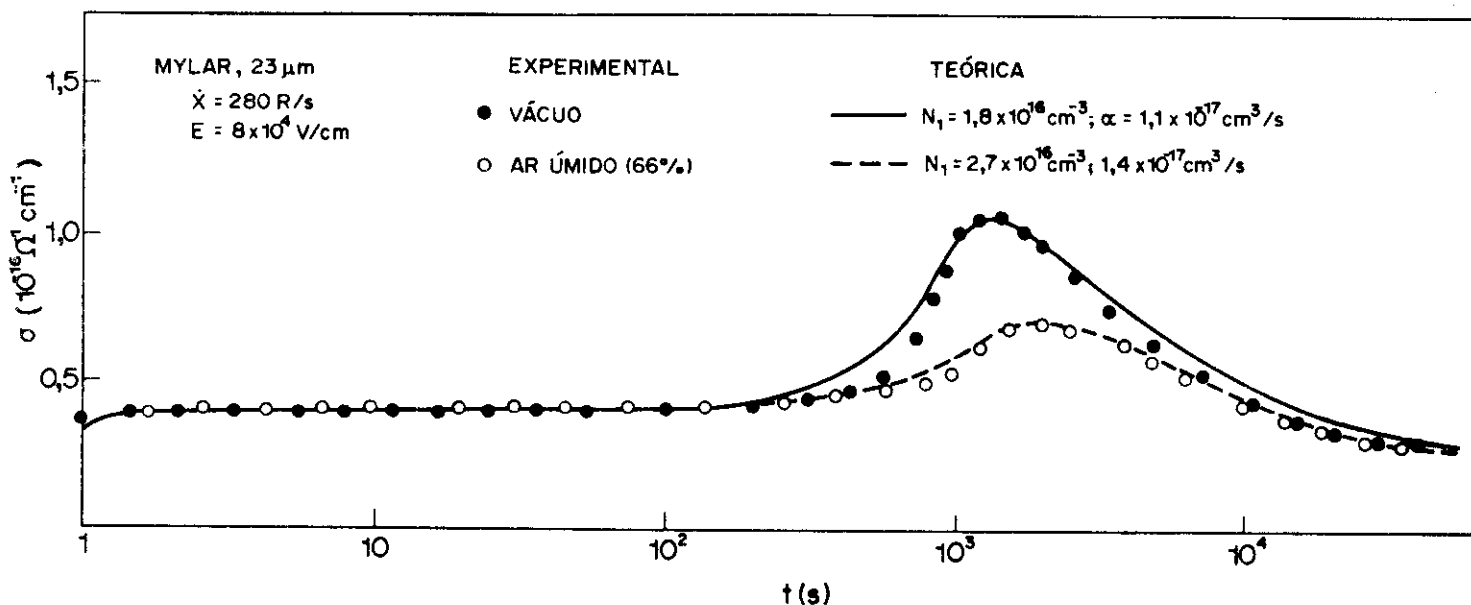


Figura 78. RIC em função do tempo para o PET no ar úmido (o) e no vácuo (●). As curvas contínua e descontínua foram obtidas pela teoria proposta com alteração dos valores de N_1 e α .

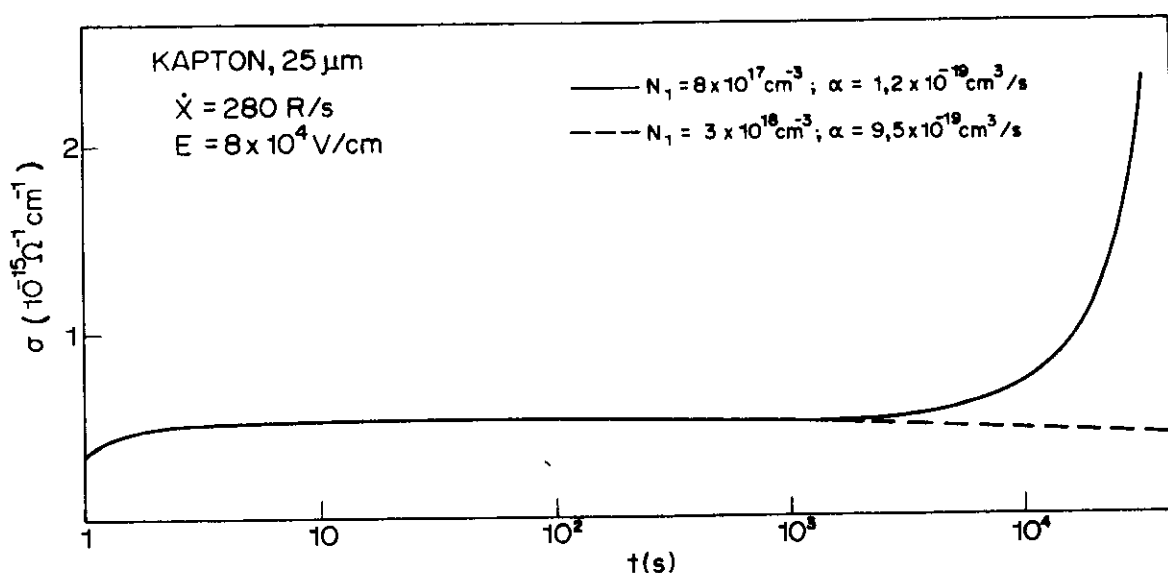


Figura 79. Curvas teóricas da RIC em função do tempo obtidas pela variação dos valores de N_1 e α (Kapton).

O tempo de difusão, t_d , necessário para se atingir um fluxo estacionário durante a difusão de um gás em um meio é dado por:

$$t_d = \frac{\ell^2}{6D} \quad (30)$$

onde ℓ é a espessura da amostra e D o coeficiente de difusão do gás nesse meio. O coeficiente de difusão do O_2 e do N_2 no PET policristalino a 26°C são $4 \times 10^{-9} \text{ cm}^2/\text{s}$ e $1,5 \times 10^{-9} \text{ cm}^2/\text{s}$, respectivamente [78]. Para uma amostra de $23 \times 10^{-4} \text{ cm}$ de espessura, obtêm-se $t_d = 220\text{s}$ e $t_d = 587\text{s}$, respectivamente, para o O_2 e N_2 .

O transiente que pode ser observado na Figura 60, durante a mudança do vácuo para o ar, teve uma duração aproximada de 480s, estando portanto entre os tempos de difusão dos dois gases na amostra. Este resultado nos parece corroborar com a suposição feita de que é a difusão desses gases na amostra que altera o comportamento temporal da RIC.

Quando a medida da RIC foi realizada no ar seco, observou-se um afastamento ainda maior do seu comportamento em relação à realizada no vácuo. Se considerarmos que a menor quantidade de vapor, no ar seco, permite maior difusão de O_2 e N_2 na amostra, intensificando seus efeitos, podemos explicar também esse resultado.

Uma maior compreensão dos efeitos causados nas características dos materiais pela difusão do ar poderá ser obtida irradiando-se amostras no vácuo, ar e atmosferas de O_2 e N_2 , e se realizando medidas de TSC nas amostras irradiadas. Além disso, medidas da RIC no vácuo e em atmosfera de O_2 e N_2 , alternadamente, também poderão fornecer resultados que confirmem as suposições feitas neste capítulo.

8.4. Injeção de Carga pelo Eletrodo (Switching)

No Capítulo I nos referimos ao trabalho de Hughes [24], e agora vamos analisá-lo com mais detalhe. Nesse trabalho foram utilizadas amostras de PET (Mylar) de 3,8 μ m, com contato de alumínio evaporado. Essas amostras foram irradiadas por raio-x produzido por um equipamento que operou a 60 KV. A tensão aplicada à amostra foi de 600V, o que produziu um campo elétrico de $1,6 \times 10^6$ V/cm.

Hughes considerou a existência de armadilhas profundas muito próximas da interface metal-isolador. Lacunas produzidas pela radiação seriam aprisionadas nessas armadilhas e causariam um aumento na intensidade do campo elétrico nessa região. Esse aumento seria dado pela expressão: $E = E_0 + \frac{e}{\epsilon\epsilon_0} N+$, onde ϵ é a constante dielétrica do material, E_0 o campo externo aplicado e $N+$ a densidade superficial de lacunas aprisionadas. O aumento do campo causaria uma diminuição na barreira de potencial existente no contato metal-isolador, permitindo a injeção de elétrons do catodo para o material. Isto acarretaria um aumento na corrente induzida após alguns segundos do início da irradiação (Switching). Esse aumento seria limitado a um determinado valor devido a recombinação dos elétrons emitidos pelo eletrodo com as lacunas aprisionadas. Destê modo, a corrente induzida atingiria um estado estacionário após alcançar seu valor máximo. A Figura 80 mostra uma comparação entre os resultados experimentais (●) e os obtidos a partir da aplicação dessa teoria, para duas taxas de geração de portadores: $3,28 \times 10^{13}$ e $7,37 \times 10^{12}$ portadores/cm³s.

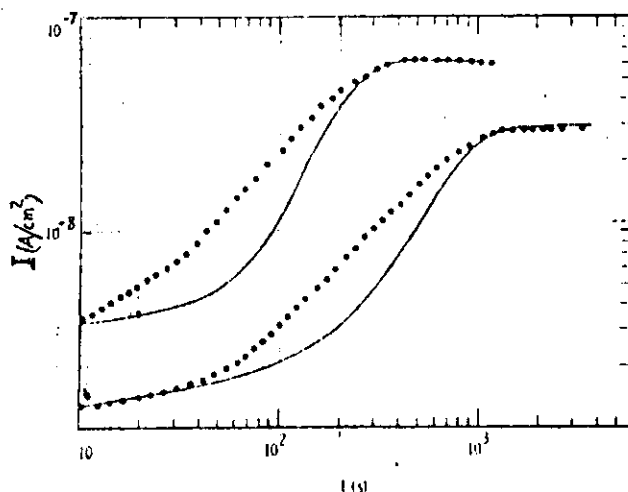


Figura 80. "Switching" para amostras de PET de 3,8 μ m, com diferentes taxas de geração de portadores [24]. A tensão aplicada foi de 600V ($\sim 1,6 \times 10^6$ V/cm).

Porém alguns resultados obtidos por nós contradizem o modelo de "Switching". A corrente induzida, após o crescimento atribuído à injeção de elétrons, não atinge um estado estacionário, como prevê a teoria de Hughes. Pode-se observar na Figura 81, em escala linear, que a RIC decresce monotonicamente após atingir seu valor máximo. Nessa mesma figura, observa-se ainda que para campo de baixa intensidade esse decréscimo é lento, dando a impressão de se ter atingido um estado estacionário no ponto máximo da corrente. Todavia, a Figura 16 mostra que a corrente cai, tendendo a um valor estacionário que só é atingido após 7 horas de irradiação. Esse valor estacionário é ainda menor que o atingido no início da irradiação, antes da elevação atribuída ao "Switching". Para intensidades do campo mais elevadas, mais acentuado é o decréscimo da corrente induzida, após o seu máximo, e maior a diferença entre os valores estacionários inicial e final.

Além disso, se o crescimento observado na corrente induzida fosse provocado pelo aumento da intensidade do campo elétrico na interface metal-isolador do cátodo, uma inversão na polaridade da tensão aplicada deveria alterar a evolução temporal dessa corrente. No Capítulo III, Figuras 30 e 31, vimos que isto não ocorre. A inversão na polaridade da tensão só inverte o sentido da corrente, praticamente sem alterar seu valor absoluto. Na Figura 82 é mostrado o mesmo gráfico da Figura 31, porém com o tempo em escala linear. Pode-se observar que o pico que surge na inversão de polaridade é o pico causado pela corrente de absorção dielétrica, não se notando qualquer efeito de polarização. Nessa mesma figura pode-se ver também a perfeita continuidade da RIC quando ocorreu a inversão, mostrando claramente que sua evolução temporal independe da polaridade da tensão aplicada.

Pelo modelo de "Switching", a evolução temporal da corrente induzida deveria depender também da função trabalho do material utilizado como eletrodo. Porém, como vimos no Capítulo III, a troca do eletrodo de alumínio pelo de ouro praticamente só teve como consequência o aumento da taxa de exposição recebida pela amostra.

Deste modo, nos parece evidente que a subida da corrente induzida que ocorre no PET não deve ser causada pela injeção de elétrons do catodo, podendo, portanto, ter como causa a saturação de um dos níveis de armadilhas, como prevê o modelo teórico proposto neste trabalho.

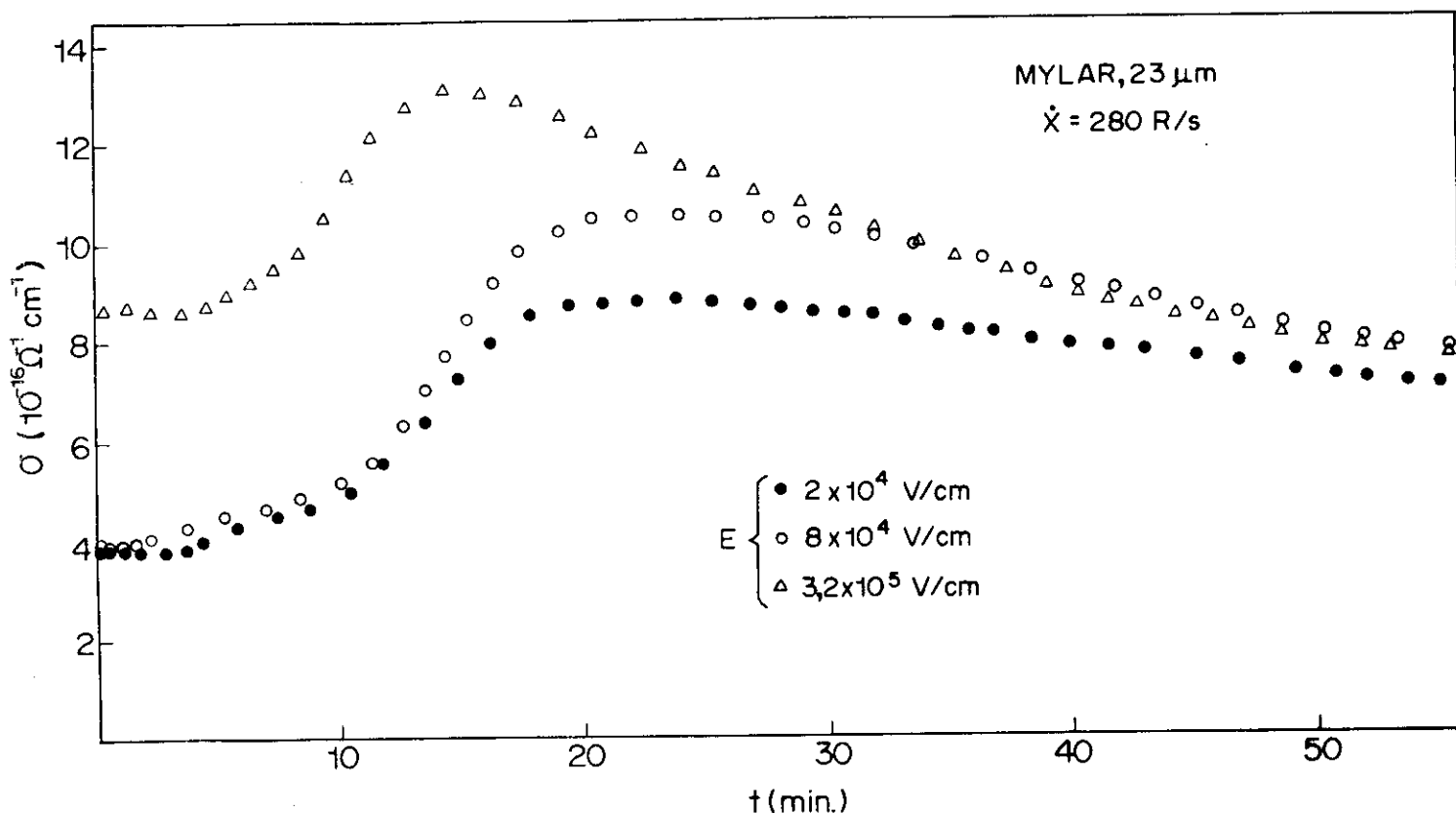


Figura 81. RIC, em escala linear, para diferentes campos.

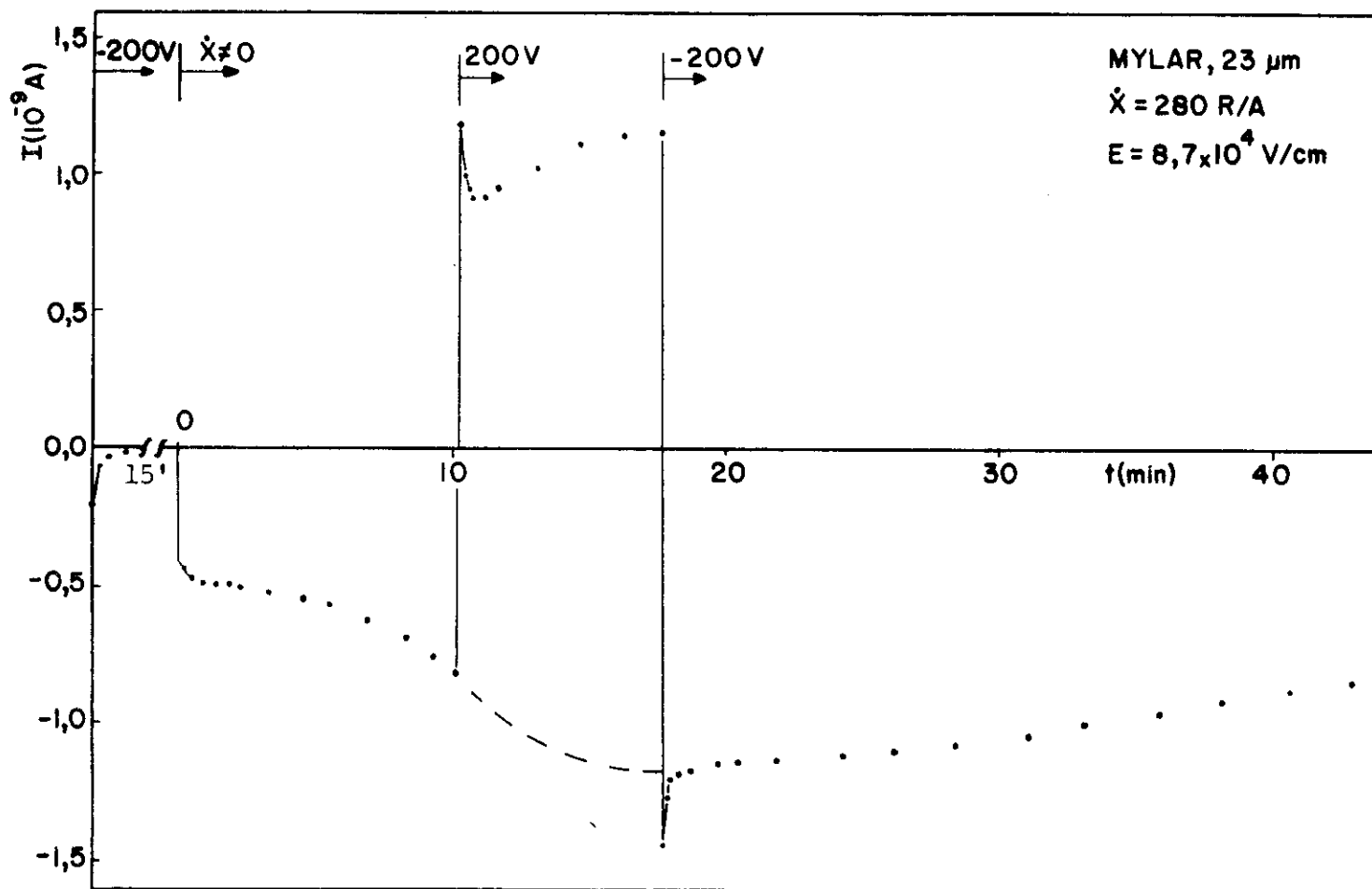


Figura 32. Evolução temporal da corrente induzida com inversão de polaridade da tensão aplicada, em escala linear.

CAPÍTULO IX

CONCLUSÕES E SUGESTÕES

Este trabalho apresentou uma série de novos resultados experimentais sobre a condutividade induzida pela radiação (RIC) no PET e no Kapton.

Os principais resultados obtidos para esses materiais e que até o presente eram desconhecidos, foram os seguintes:

- a) Evolução temporal da RIC com radiação contínua e durante longo tempo (7h).
- b) Influência na RIC da intensidade do campo elétrico, espessura da amostra, taxa de exposição e energia da radiação.
- c) Influência dos eletrodos na taxa de exposição recebida pela amostra.
- d) Diferença no comportamento da evolução temporal da RIC entre amostras virgens e irradiadas. Recuperação de amostras irradiadas à temperatura ambiente e por aquecimento.
- e) Influência do ar nas medidas da RIC.
- f) Verificação da ocorrência do efeito Onsager nos dois materiais.
- g) Evolução temporal da DRIC com diferentes condições experimentais.

- h) Variação da corrente fotônica com a espessura do eletrodo, taxa de exposição e tipo de eletrodo.
- i) Provável aparecimento de carga espacial, causado pela não homogeneidade de geração de portadores pela radiação no material, em amostras espessas e para altas intensidades do campo aplicado.

Foi usada a teoria de balanço dos portadores para o desenvolvimento de um modelo teórico com o objetivo de explicar o transiente da evolução temporal da RIC. Nesse modelo foram considerados dois níveis de armadilhas profundas, e mobilidade e coeficiente de recombinação modulados por armadilhas rasas. Foi introduzido ainda a variação da taxa de geração de portadores com a intensidade do campo elétrico, explicada pela teoria da recombinação geminativa. Uma boa concordância foi obtida entre os resultados experimentais e os previstos pela teoria. Algumas discordâncias observadas foram atribuídas a possíveis efeitos não considerados pelo modelo, aparentemente causados pela não uniformidade na geração de portadores pela radiação ao longo da amostra.

Algumas sugestões são dadas a seguir, para futuros trabalhos, que poderão auxiliar a comprovação ou não de algumas hipóteses aqui levantadas.

Para verificar se o ar difundido na amostra e sob radiação pode funcionar como armadilha, os seguintes procedimentos poderão ser realizados:

- a) Irradiar amostras no ar e no vácuo, com a mesma dose total, e em seguida, efetuar medidas de TSC. Se

o ar difundido na amostra funcionar como armadilha de portadores, competirá com as armadilhas intrínsecas do material na captura dos portadores produzidos pela radiação. Desta forma, a corrente termo-estimulada da amostra irradiada no vácuo deverá ser maior que da irradiada no ar, porque nesta última as armadilhas intrínsecas serão menos preenchidas durante a irradiação.

- b) Realizar medidas da RIC em atmosfera de O_2 , N_2 e argônio e, alternadamente, nesses gases e no vácuo. Para o Kapton observar se o forte crescimento da RIC não ocorre em medidas feitas nos três gases.

Outra dúvida levantada neste trabalho foi a causa do aumento da RIC quase estacionária inicial com a espessura da amostra, para o Kapton, e o decréscimo da RIC que ocorre nesse material após esse estado quase estacionário. Uma verificação da hipótese aqui levantada, de que esses efeitos resultam da polarização do material causada pela formação de uma carga espacial, poderá ser feita com os seguintes procedimentos:

- a) Realizar medidas da corrente induzida em amostras espessas ou com campos intensos, e inverter a polaridade da tensão aplicada quando a corrente atingir seu valor mínimo. O resultado poderá confirmar a existência ou não de polarização.

- b) Observar a influência nesse efeito quando amostras espessas e com eletrodo superior de ouro e inferior de alumínio são medidas. Inverter a posição dos eletrodos e verificar se o efeito é alterado.

- c) Efetuar medidas da RIC, com aplicação intermitente da tensão, em amostras espessas.

Além disso seria interessante também um estudo mais detalhado da influência da natureza e espessura dos eletrodos, combinados com a espessura da amostra, na evolução temporal da RIC.

REFERÊNCIAS

1. SWALLOW, A.J. - "Radiation Chemistry", Longman Group Ltd, London (1973).
2. SWEETING, J.O. - "The Science and Tecnology of Polymer Films", John Wiley & Sons, Inc., vol. II (1971).
3. GROSS, B. and OLIVEIRA, L.N., J. Appl. Phys. 45, 11 (1974).
4. OLIVEIRA, L.N. and GROSS, B., J. Appl. Phys. 46, 7 (1975).
5. WINTLE, H.J., IEEE Trans. Elect. Insul., EI-12, 2 (1977).
6. GROSS, B. Electrets - 33, Topic in Appl. Physics - Spring, Verlag, Berlin, 217 (1979).
7. DAVISSON, C.M. and EVANS, R.D., Revs. Mod. Phys. 24, 79 (1952).
8. EVANS, R.D. - "The Atomic Nucleus", McGraw-Hill, N.Y., p.971 (1955).
9. SAUTER, F.: Ann. Physik, 11, 454 (1931).
10. FISCHER, J.: Ann. Physik, 8, 821 (1931).
11. GROSS, B., IEEE Trans. Nucl. Sci., NS-25, 4 (1978).
12. ROSE, A. - Concepts in Photoconductivity and Allied Problems. Inters. Publishers, John Wiley & Sons, N.Y. (1963).
13. FOWLER, J.F., Proc. Roy. Soc. A. 226, 464 (1956).
14. BUBE, R.H., "Photoconductivity in Amorphous Semiconductors". R.C.A. Rev., 36, 467-84 (1975).
15. COMPTON, D.M.J.; CHENEY, G.T. and POLL, R.A., J. Appl. Phys. 36 (8), 2434-43 (1965).
16. HIRSCH, J. and MARTIN, E.H., J. Appl. Phys. 43 (3), 1008-15 (1972).

17. MARTIN, E.H. and HIRSCH, J., J. Appl. Phys. 43 (3), 1001-07 (1972).
18. WEINGART, R.C., BARLETT, R.H., HOFER, W. and LEE, R.S., IEEE Trans. Nucl.Sci., NS 19 (6), 15 (1972).
19. AHRENS, T.J. and WOOTEN, F., IEEE Trans. Nucl. Sci., NS-23, n^o 3, 1268-1272 (1976).
20. BECKLEY, L.M., LEWIS, T.J. and TAYLOR, D.M., J. Phys. D: Appl. Phys., vol. 9, 1355-65 (1976).
21. TAYLOR, D.M., J., Phys. D: Appl. Phys., vol. 9-2269-79 (1976).
22. HAYASHI, K., YOSHINO, K. and INUISHI, Y., Jap. J. Appl. Phys. 14 (1), 39-45 (1974).
23. MAEDA, H., KURASHIGE, M. and NAKAKITA, T., J. Appl. Phys. 50 (2), 758-63 (1979).
24. HUGHES, R.C., J. Appl. Phys. 51 (11), 5933-44 (1980).
25. TYUTNEV, A.P., SAENKO, V.S. and POZHIDAEV, E.D., DOKLADY AKADEMII NAUK-SSSR, vol. 266 (1), 168-72 (1982).
26. SEGGERN, H., J. Appl. Phys. 52 (6), 4086-89 (1981).
27. TYUTNEV, A.P., SAENKO, V.S., POZHIDAEV, E.D. and AKKEERMAN, A.F., Phys. Stat. Sol. (a), 73, 81-89 (1982).
28. KURTZ, S.R. and HUGHES, R.C., J. Appl. Phys. 54 (1), 229-237 (1983).
29. WALZADE, S.J., JOG, J.P., DAKE, S.B. and BHORASKAR, S.V. Sol. Stat. Comm. 46 (5), 393-396 (1983).
30. TYUTNEV, A.P., MINGALEEV, G.S., VANNIKOV, A.V., DUNAEV, A.F., SAENKO, V.S. and LIKHOVIDOV, V.S., Phys. Stat. Sol. (a) 75, 385-92 (1983).

31. TYUTNEV, A.P., MINGALEEV, G.S., SAENKO, V.S. and VANNIKOV, A.V., Phys. Stat. Sol (a), 79, 651-59 (1983).
32. KURTZ, S.R. and ARNOLD, Jr. C., J. Appl. Phys. 57 (7) 2532-37 (1985).
33. KURTZ, S.R., Appl. Phys. Lett. 46 (11), 1105-07 (1985).
34. KURTZ, S.R. and ARNOULD, Jr. C., IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-31 (6), 1284-88 (1984).
35. PARKER, L.W. and MEULENBERG, Jr. A., IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-31 (6), 1368-1373 (1984).
36. KEYS, R.W., Phys. Rev. 84, 367 (1951).
37. VANARKEL, A. et al., Canadian J. Chem. 31, 1009 (1953).
38. REGEL, A.R., Izd. Akad. Nank. SSSRN (1955).
39. GUBANOV, A.I., Sovietic Phys. Solid State, 3, 2436 (1961).
40. GUBANOV, A.I., "Quantun Electron Theory of Amorphous Semiconductors"- Consultants Bureau - N.Y. (1965).
41. BANYAI, L., "Physique des Semiconductors, Dunod, Paris, p. 417 (1964).
42. MOTT, N.F., Phil. Mag. 19, 835 (1970).
43. MOTT, N.F. and DAVIS, E.A., "Electronic Processes in Non-crystalline Materials"- Clarendon Press, Oxford, p. 590 (1979).
44. MOCHIZUKI, S., TAMURA, N. and YAHAGI, K., J. Appl. Phys. 54 (8), 4433 (1983).
45. MIZUTAMI, T., SOZUOKI, Y., SUGIURA, N. and IEDA, M., Jap. J. Appl. Phys. 21 (8), 1191 (1982).
46. MIZUTAMI, T., SUGIURA, N., SOZUOKI, Y. and IEDA, M., Jap. J. Appl. Phys. 20 (1), 59 (1981).

47. GROSS, B., FARIA, R.M. and FERREIRA, G.F.L., J. Appl. Phys. 52 (2) (1981).
48. AHRENS, J.T. and WOOTEN, F., IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-23 (3), 1268 (1976).
49. SHAEFFER, D.L. and SIEGEL, J.M., IEEE Trans. Nucl. Sci. NS-29 (6)-1746-52 (1982).
50. FARIA, R.M. Tese de doutorado apresentada ao IFQUSP, São Carlos, em 1984.
51. WEAVER, L., SHULTIS, J.K. and FAW, R.E., J. Appl. Phys. 48 (7), 2762-70 (1977).
52. COHEN, M.H., FRITZSCHE, H. and OVSHINSKY, S.R., Phys. Rev. Lett. 22, 1065 (1969).
53. PFISTER, G. and SCHER, H., Adv. Phys., 27, 747 (1978).
54. TIEDJE, T. and ROSE, A., Solid State Commun, 37, 49 (1980).
55. PFISTER, G. and GRIFFITHS, C.H., Phys. Rev. Lett. 40, 659.
56. LEAL FERREIRA, G.F. and ALMEIDA, L.E.C., Phys. Rev.-B, 19 (12), 6601 (1979).
57. SCHMIDLIN, F.W., Phys. Rev.-B, 16, 2362 (1977).
58. GROSS, B., von SEGGERN, H. and BERKLEY, D.A., Phys. Stat. Sol(a) 79, 607 (1983).
59. ATTIX, F.H. and ROESCH, W.C., "Radiation Dosimetry" - Academic Press, N.Y. vol. II (1966).
60. LEE, R.S., FULK, G.A., BARLETT, R.H., MAEKER, D.J. and WEINGART, R.C., IEEE Trans. Nucl. Sci. 22, 2273 (1975).
61. BERGER, M.J. and SELTZER, S.M. - NASA, SP 3012 (1964).
62. FRENKEL, J. Phys. Rev., 54, 647 (1938).

63. SACHER, E. : J. Macrom. Sci. B4, 449 (1970).
64. ONSAGER, L., Phys. Rev., 54, 554-57 (1938).
65. GROSS, B., MULTHAUPT, R.G. and LABONTE, K., BERRAISSOUL
COLLOID & Polymer Sci, 262, 93 (1984).
66. DUSSEL, G.A. & BUBE, R.H., Phys. Rev. 155 (3), 764 (1967).
67. CHEN, R., J. Appl. Phys. 40 (2), 570 (1969).
68. CHEN, R. & WINER, S.A.A., J. Appl. Phys. 41 (13), 5227
(1970).
69. CHADSEY, W.L., IEEE, Trans. Nucl. Sci., 21 (1974).
70. FARIA, R.M. & FERREIRA, G.F.L.; Proc. 5th Intern. Symp.
Elect., Heidelberg (1985).
71. SPEAR, W.E., J. Non-Cryst. Solids, 1, 197 (1969).
72. TAYLOR, D.M. - PhD Thesis, University College of North
Wales, Bangor (1970).
73. WINTLE, H.J., J. Appl. Phys., 43, 2927 (1972).
74. GROSS, B., J. Appl. Phys. 36 (5), 1635-41 (1965).
75. HUGHES, R.C., IEEE Trans. Nucl. Sci., 18, 281 (1971).
76. LANGEVIN, P.: Ann. Chim. Phys. 28, 289 (1903).
77. MORT, J. & PFISTER, G., "Electronic Properties of Polymers",
John Wiley and Sons, N.Y., 1982.
78. MICHAEL, A.S., VIETH, W.R. & BARRIE, J.A., J. Appl. Phys.
34 (1) (1963).
79. NOOLANDI, J., Phys. Rev. B., 16, 4466 (1977).
80. HUGHES, R.C., Second International Conference on
Electrophotography (Soc. of Photographic Scientists and
Engineers), Washington, D.C. (1975).

81. EINSBERG, R.M., "Fundamentos de Física Moderna", Ed. Limusa, Mexico (1978).
82. SESSLER, G.M., "Topic in Applied Physics Electrets". Springer-Verlag, N.Y., 1980.
83. FREITAS, M., Tese de Mestrado apresentada ao IFQSC-USP (1984).
84. GREGÓRIO Fº, R., GROSS, B. and FARIA, R.M., 5th International Symposium on Electrets - West Germany (Sept.1985).