

ЭЛЕКТРО- И ТЕПЛОПРОВОДЯЩИЕ СВОЙСТВА ПОЛИМЕРИЗАЦИОННО-НАПОЛНЕННЫХ КОМПОЗИТОВ НА ОСНОВЕ СВЕРХВЫСОКОМОЛЕКУЛЯРНОГО ПОЛИЭТИЛЕНА И НАНОРАЗМЕРНЫХ И МИКРОННЫХ ЧАСТИЦ АЛЮМИНИЯ

© 2019 г. Н. Г. Рывкина¹, П. А. Нежный¹, О. И. Кудинова^{1*},
И. А. Чмутин², В. Г. Гринев¹, Л. А. Новокшенова¹

¹Институт химической физики им. Н.Н. Семёнова Российской академии наук, Москва, Россия

²АО “Технопарк Слава”, Москва, Россия

*E-mail: o.i.kudinova@yandex.ru

Поступила в редакцию 18.03.2019;

после доработки 10.04.2019;

принята в печать 22.04.2019

Проведено исследование тепло- и электропроводящих свойств композитов на основе сверхвысокомолекулярного полиэтилена и смеси в различной пропорции микро- и наночастиц алюминия с различной толщиной оксидного слоя на поверхности частиц. Определен состав композита, оптимальный для получения теплопроводящих диэлектрических материалов для теплоотводящих устройств в электронной технике. На основе анализа частотных и концентрационных зависимостей электропроводности и концентрационных зависимостей теплопроводности исследованных композитов сделаны выводы о механизмах переноса заряда и структуре кластеров наполнителя.

Ключевые слова: композиционные материалы, полимеризационное наполнение, дисперсный алюминий, теплопроводность, электропроводность.

DOI: 10.1134/S0207401X19090103

ВВЕДЕНИЕ

Для обеспечения надежности работы оборудования в современной электронике и электротехнике, сопровождающейся выделением большого количества тепла, требуются новые материалы, сочетающие высокие теплопроводящие и диэлектрические свойства. Одно из решений проблемы — применение полимерных композиционных материалов для изготовления теплоотводящих элементов, что позволяет снизить вес изделий, улучшить коррозионную стойкость, повысить пластичность, упростить технологию изготовления.

Повышение теплопроводности полимерных композитов достигается путем введения в полимерную матрицу, обладающую низким коэффициентом теплопроводности, теплопроводящих наполнителей различной природы — металлов, а также их оксидов, нитридов, карбидов и пр. Для достижения высоких значений теплопроводности композита требуется введение в полимер не менее 40 мас.% теплопроводящего наполнителя при условии обеспечения равномерности его распределения [1–3]. Кроме концентрации наполнителя, на теплопроводность композита влияют размер и форма его частиц [4], а также микроструктура самого композита, управлению которой с целью организации в материале эффектив-

ных теплопроводящих путей в последнее время уделяется особое внимание. Существенно увеличивается теплопроводность композита при повышении плотности упаковки частиц наполнителей в полимерной матрице за счет использования частиц разных размеров, например при добавке наноразмерных частиц к микроразмерным [5].

Перспективной полимерной матрицей для многих функциональных композитов, включая теплопроводящие диэлектрики, является сверхвысокомолекулярный полиэтилен (СВМПЭ), обладающий уникальным комплексом свойств. Однако получение наполненных композитов СВМПЭ методом смешения компонентов в расплаве практически не применимо из-за высокой вязкости его расплава. Применение различных модификаций метода сухого смешения не дает качественного равномерного распределения частиц наполнителей в СВМПЭ из-за трудности их диспергирования с равномерным распределением в матрице, что имеет первостепенное значение для максимальной реализации возможного уровня механических и функциональных свойств получаемых композитов.

Эффективным для получения высоконаполненных композиций на основе СВМПЭ является метод полимеризационного наполнения (полимеризация *in situ*), разработанный в ИХФ РАН [6]. Этот метод позволяет получать композиты как с низким, так и

со сверхвысоким содержанием микро- и наноразмерных частиц наполнителя при их равномерном распределении в СВМПЭ-матрице. Согласно этому методу композит получают путем полимеризации этилена на поверхности каталитически активированных частиц наполнителя, т.е. СВМПЭ синтезируется в виде покрытия на частицах наполнителя. Толщина покрытия определяется требуемым составом композита и легко регулируется при изменении условий процесса полимеризации.

В настоящей работе обсуждается механизм теплопереноса и переноса заряда в композитах, полученных методом полимеризационного наполнения на основе СВМПЭ и смеси микро- и наноразмерных частиц алюминия, на основании исследования зависимости электрических свойств и теплопроводности от дисперсного состава алюминия, толщины поверхностного оксидного слоя и содержания наполнителя.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Материалы

В качестве наполнителей использовали микро- и наноразмерные частицы Al и их смеси. Дисперсный алюминий марки АД-1 имел частицы сферической формы средним размером 10 мкм и поверхностное диэлектрическое покрытие из Al_2O_3 в количестве 7 мас.%. Нанодисперсные порошки алюминия, предоставленные ИНЭПХ РАН, со средним размером сферических частиц 80, 51 и 43 нм синтезировали левитационно-струйным методом Гена–Миллера в потоке инертного газа-носителя на установке МИГЕН [7]. В ходе синтеза на поверхности частиц формировали поверхностное диэлектрическое покрытие из Al_2O_3 путем подмешивания кислорода к инертному газу. Толщина покрытия составляла соответственно 7, 25 и 48 мас.%. Использовали смеси указанных выше микро- и наноразмерных частиц алюминия (7 мас.% Al_2O_3) в различном соотношении.

Синтез композиционных материалов

Композиционные материалы на основе СВМПЭ и дисперсного Al заданного состава получали полимеризационным методом (полимеризация *in situ*) путем полимеризации этилена на поверхности частиц алюминия, активированных нанесенным катализатором на основе тетраглорида ванадия [8]. Полимеризацию этилена на активированном наполнителе проводили в среде углеводородного растворителя при температуре 40°C. Получаемый продукт представлял собой порошок, состоящий из частиц алюминия, покрытых слоем СВМПЭ.

Определение состава синтезированных композитов проводили методом термогравиметрического анализа (ТГА) на дериватографе Q-1500 D в среде аргона при скорости нагревания 10 К/мин. Содержание наполнителя в композитах варьировали от 8 до 73 об.% Молекулярную массу синтези-

рованного на поверхности алюминия полиэтилена определяли вискозиметрически. Она составляла $(2 \div 2.5) \cdot 10^6$ г/моль. Образцы для исследования свойств композитов получали методом горячего прессования в пресс-форме закрытого типа, выдерживая образец при 190°C сначала 10 минут без давления, затем при 190°C в течение 10 мин под давлением 10 Мпа, и охлаждали со скоростью примерно 4°C/мин до 50°C.

Методы исследования свойств полученных композитов

Измерение теплопроводности композитов проводили по методике МИ 00200851-125-2007, согласно которой среднюю величину теплопроводности композитов определяли в стационарном осевом тепловом потоке. Максимальная расчетная погрешность эксперимента с учетом измерительных устройств и различия термосопротивления эталона и исследуемых образцов не превышала 7%.

Электропроводность (σ_{ac}) и диэлектрическую проницаемость (ϵ'_{ac}) в переменных полях измеряли с использованием широкодиапазонного диэлектрического спектрометра BDS-40 (Novocontrol). Образцы имели форму диска толщиной 1–3 мм и диаметром 15 мм. На плоские стороны образца наносили электроды, представляющие собой электропроводящий клей Dottie. Измерения проводили при комнатной температуре.

Измерение удельного объемного электрического сопротивления проводилось на измерителе высоких сопротивлений Agilent 4339В при испытательном напряжении 100 В с измерительным электродом диаметром 25 мм. Определение пробойного напряжения проводилось на установке для проверки электрической безопасности GPT-79803.

ЭКСПЕРИМЕНТ И ЕГО ОБСУЖДЕНИЕ

Теплопроводность и статическая электропроводность композитов на основе СВМПЭ и дисперсного алюминия

На рис. 1 представлены зависимости теплопроводности (λ) и электропроводности на постоянном токе (σ_{dc}) от концентрации наполнителя для композитов на основе СВМПЭ и частиц Al различного размера. Как следует из этого рисунка, исследуемые материалы являются диэлектриками практически во всем диапазоне концентраций наполнителя. Исключение составляют только композиты с микрочастицами алюминия с концентрациями наполнителя выше 60 об.%, но и эти композиты имеют электропроводность не выше 10^{-6} См/см. При сверхвысоких наполнениях (выше 60 об.%) электропроводность композитов на основе смеси нано- и микроразмерных частиц на 1–3 порядка выше, чем у материалов с наноразмерными наполнителями, и на 1–3 порядка ниже, чем у микрокомпозитов. Низкая dc -электропроводность исследуемых композиционных материа-

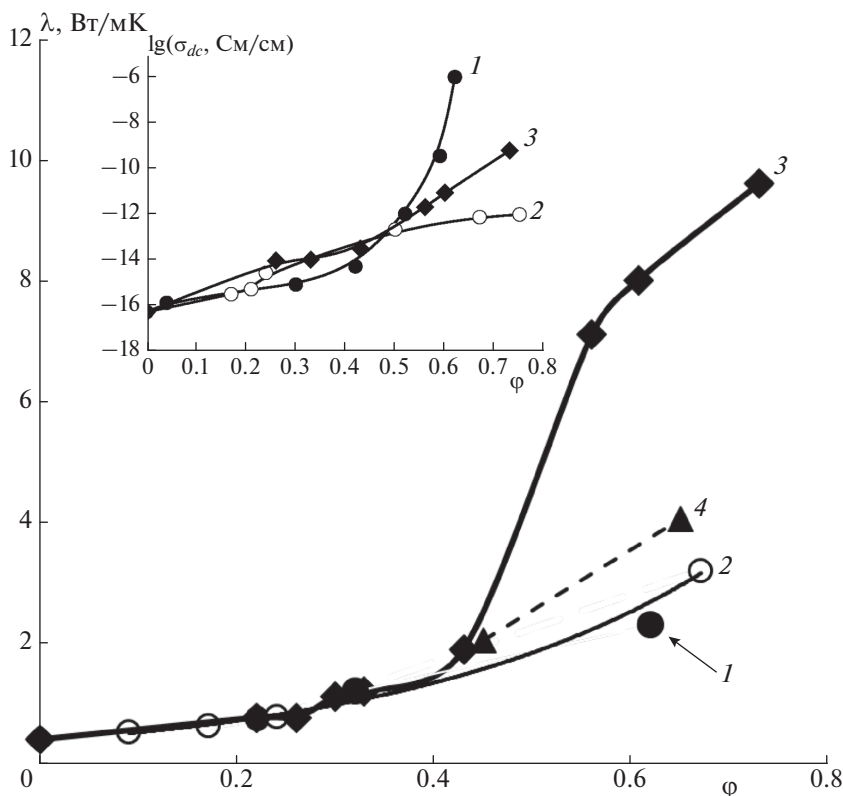


Рис. 1. Зависимости теплопроводности λ и электропроводности σ_{dc} от степени наполнения ϕ (объемная доля) и типа наполнителя: микрочастицы Al — кривая 1, наночастицы Al — кривая 2, смесь нано- и микрочастиц Al в пропорции 30/70 — кривая 3, смесь нано- и микрочастиц Al в пропорции 70/30 — кривая 4.

лов объясняется наличием оксидных пленок на поверхности частиц алюминия, а также наличием полимерной прослойки СВМПЭ между частицами алюминия, изначально сформированной на стадии синтеза композитов. Полимерная прослойка между частицами алюминия присутствует практически при всех наполнениях, а ее толщина возрастает с увеличением содержания полимера в композите.

Как видно из рис. 1, для СВМПЭ, наполненного смесью 30% нано- + 70% микрочастиц Al, при содержании наполнителя 45 об.% наблюдается резкий рост теплопроводности λ , а максимально достигнутая ее величина составляет 9.6 Вт/м · К при наполнении 73 об.%. Известно, что Al_2O_3 , находящийся на поверхности частиц наполнителя, имеет низкую электропроводность порядка 10^{-14} Ом/см и высокую, порядка 30 Вт/м · К, теплопроводность [9]. Можно сделать вывод, что резкий рост теплопроводности связан с образованием при наполнении 45 об.% и выше цепочек из контактирующих частиц наполнителя, пересекающих образец, т.е. с эффектом перколяции. При этом оксидный слой снижает электропроводность, но участвует в переносе тепла.

Для остальных типов исследованных композитов величина λ плавно повышается с ростом концентрации наполнителя, достигая значений 3–4 Вт/м · К

при ~65 об.%. Добавление наночастиц к микроразмерным в соотношении 30/70, по-видимому, позволило повысить монолитность прессованных композитов и получить более плотную упаковку частиц наполнителя, что способствовало образованию дополнительных теплопроводящих путей в материале.

Важным показателем материалов для устройств по отводу тепла является напряжение электрической прочности, которое определяется следующей формулой:

$$E_{\text{пр}} = U_{\text{пр}}/h,$$

где $U_{\text{пр}}$ — пробойное напряжение, т.е. минимальное напряжение электрического поля, при котором наступает электрический пробой; h — толщина слоя диэлектрика.

В табл. 1 приведены значения электрической прочности на постоянном, $E_{\text{проб } dc}$, и переменном, $E_{\text{проб } ac}$, токе для композитов, наполненных смесью нано- и микрочастиц Al. Как следует из таблицы, значения $E_{\text{проб } ac}$ выше, чем $E_{\text{проб } dc}$, для всех образцов. При близких концентрациях наполнителя электрическая прочность для композитов, содержащих смесь нано- и микрочастиц Al в соотношении 70/30, существенно выше, чем для композитов с соотношением 30/70. Но и для композитов, наполненных смесью нано- и микрочастиц Al в со-

Таблица 1. Электрическая прочность на постоянном, $E_{\text{проб } dc}$ и переменном, $E_{\text{проб } ac}$ токе для композитов с различной объемной концентрацией смеси нано- и микрочастиц Al с поверхностным оксидным слоем в 7%

Степень наполнения ϕ	$E_{\text{проб } ac}$, кВ/см	$E_{\text{проб } dc}$, кВ/см
70 нано + 30 микро		
0.38	22.6	44.6
0.73	2.6	3.3
30 нано + 70 микро		
0.43	2.7	3.4
0.54	1.2	1.8
0.71	0.6	0.68

отношении 30/70, электрическая прочность превышает 1 кВ/см для концентраций ниже 71 об.%.
 Для композиционных материалов, наполненных только наночастицами Al, электрическая прочность составляет 30–50 кВ/см при концентрации наполнителя выше 30 об.%. При более низких концентрациях она превышает 50 кВ/см.

Таким образом, благодаря примененному методу полимеризационного наполнения, при котором частицы Al кроме тонкого окисного покрытия имеют покрытие из СВМПЭ, удалось получить композиты, сочетающие высокую теплопроводность и электроизоляционные свойства. Эти материалы

могут быть использованы для изготовления устройств по отводу тепла от микросхем и светодиодов. Из исследованных наиболее перспективными для этой цели являются композиты, наполненные смесью 30% нано- + 70% микрочастиц Al.

Частотные зависимости электропроводности композитов на основе СВМПЭ и дисперсного алюминия

В настоящей работе исследованы зависимости электропроводности в переменных полях от частоты $\sigma_{ac}(f)$ для композитов на основе СВМПЭ и наноразмерных частиц Al с разной толщиной поверхностного оксидного слоя и смеси нано- и микрочастиц алюминия с поверхностным слоем Al_2O_3 , составляющим 7%.

В качестве примера приведены зависимости $\sigma_{ac}(f)$ для двух серий образцов композитов, в которых наполнителями служили смеси нано- и микрочастиц Al с поверхностным оксидным слоем в 7% в пропорции 30/70 (рис. 2) и наночастицы Al с тем же поверхностным оксидным слоем (рис. 3).

Как видно из этих рисунков, образцы являются диэлектриками при всех исследованных концентрациях наполнителя. Даже при наполнениях, близких к плотной упаковке (56 об.% и выше), электропроводность на низких частотах не превышает 10^{-11} См/см.

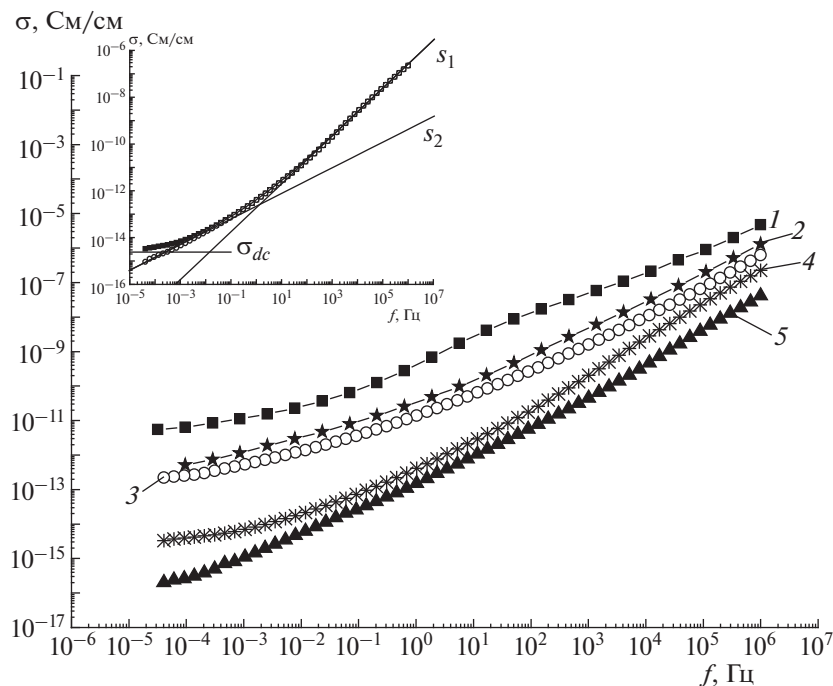


Рис. 2. Частотные зависимости электропроводности для композитов с различной объемной концентрацией смеси нано- и микрочастиц Al (30% наночастиц + 70% микрочастиц) с поверхностным оксидным слоем в 7%: 1 – $\phi = 0.73$, 2 – 0.56, 3 – 0.54, 4 – 0.43, 5 – 0.33. На вставке показана аппроксимация формулой (1) частотной зависимости электропроводности образца с $\phi = 0.43$. Квадратами обозначены экспериментальные значения электропроводности σ , кружками – значения электропроводности за вычетом ее статической величины ($\sigma - \sigma_{dc}$).

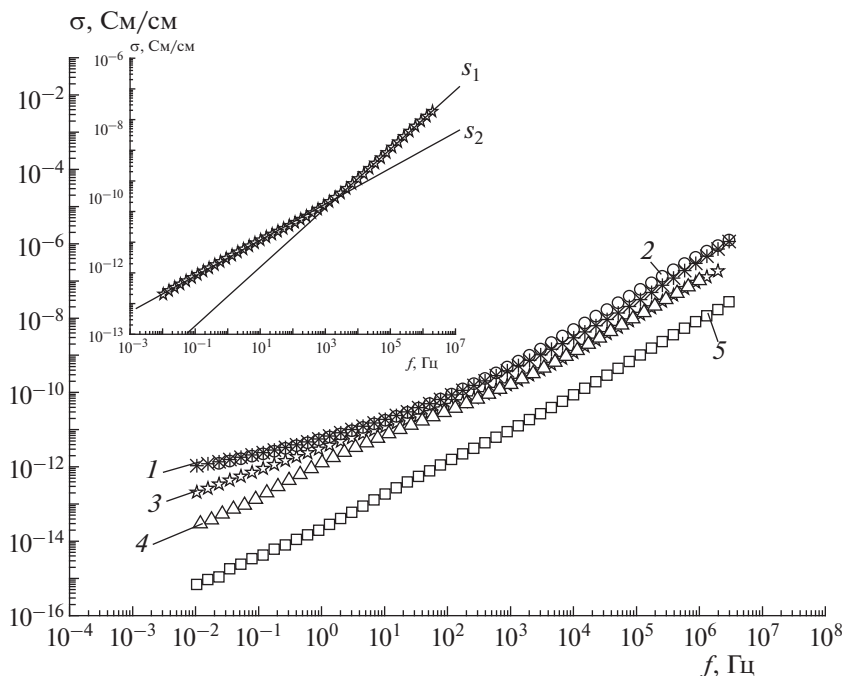


Рис. 3. Частотные зависимости электропроводности для композитов с различной концентрацией наночастиц Al с оксидным слоем в 7%: 1 – $\phi = 0.67$, 2 – 0.50, 3 – 0.24, 4 – 0.22, 5 – 0.09. На вставке показана аппроксимация формулой (1) частотной зависимости электропроводности образца с $\phi = 0.24$.

Частотная зависимость электропроводности исследуемых композитов в двойных логарифмических координатах имеет перегиб и представляет собой сочетание двух отрезков с разными углами наклона. Как показал анализ результатов измерений, эти зависимости могут быть аппроксимированы формулой

$$\sigma_{ac}(f) - \sigma_{dc} \sim af^{s_1} + bf^{s_2}, \quad (1)$$

где a и b – коэффициенты. При низких и при высоких частотах в связи с резким доминированием одного из слагаемых эта формула преобразуется в линейную зависимость в двойных логарифмических координатах.

Для иллюстрации этой закономерности на вставке к рис. 2 приведена частотная зависимость электропроводности для образца с $\phi = 0.43$, а на вставке к рис. 3 – с $\phi = 0.24$ и аппроксимация этих зависимостей формулой (1). Для других серий исследованных композитов получены аналогичные частотные зависимости электропроводности с двумя углами наклона. Результаты аппроксимации частотных зависимостей электропроводности исследованных композитов формулой (1) приведены табл. 2 и 3.

Необходимо отметить, что такой характер зависимости $\sigma_{ac}(f)$ не является типичным для композиционных материалов и других гетерогенных систем. Как правило, электропроводность в переменных электрических полях (σ_{ac}) описывается

так называемым универсальным законом с одним углом наклона [10–15]:

$$\text{Re } \sigma(\omega) - \sigma_{dc} \sim f^s. \quad (2)$$

Величина индекса “ s ” позволяет получить информацию о доминирующем механизме переноса заряда. Для диэлектрических материалов $s = 1$, хотя следует отметить, что линейная зависимость кривой зависимости $\sigma(\omega)$ для таких материалов часто сильно искажается вследствие влияния релаксационных процессов [16]. Для материалов с металлическим типом электропроводности характерна независимость последней от частоты вплоть до частот порядка 10^{14} – 10^{15} Гц, т.е. $s = 0$. В ряде материалов (как правило, в полупроводниках) основным низкотемпературным механизмом является прыжковая электропроводность. В этом случае перенос заряда осуществляется путем квантовых туннельных переходов (“прыжков”)

Таблица 2. Результаты аппроксимации формулой (2) частотных зависимостей электропроводности композитов, наполненных смесью нано- и микрочастиц Al в пропорции 30/70 с оксидным слоем 7%

ϕ	s_1	s_2
0.33	0.99	0.71
0.43	1.02	0.55
0.54	0.91	0.50
0.56	0.82	0.46
0.73	0.76	0.45

Таблица 3. Результаты аппроксимации формулой (2) частотных зависимостей электропроводности композитов, наполненных наночастицами Al с различной степенью окисления

7% Al ₂ O ₃			25% Al ₂ O ₃			48% Al ₂ O ₃		
φ	s_1	s_2	φ	s_1	s_2	φ	s_1	s_2
0.09	0.99	0.79	0.08	1.03	0.82	0.1	0.80	0.80
0.22	0.99	0.76	0.23	0.99	0.50	0.2	0.73	0.58
0.24	0.97	0.58	—	—	—	0.31	0.72	0.39
0.50	0.98	0.44	—	—	—	0.43	0.70	0.37
0.67	1.0	0.42	—	—	—	—	—	—

носителей заряда между различными локализованными состояниями. Прыжки сопровождаются поглощением или излучением фононов.

Степенной характер зависимости электропроводности от частоты связан с прыжками носителей зарядов (электронов, дырок, поляронов) между парами ближайших соседних локализованных состояний [13]. При низких частотах, когда носители зарядов успевают реализовать перескок между соседними локальными состояниями за половину периода поля, доминирует прыжковая проводимость с углом наклона меньше единицы. При более высоких частотах, когда период поля уменьшается и носители зарядов не успевают реализовать перескок за половину периода, происходит переход к углу наклона частотной зависимости, равному единице.

Большинство авторов сходятся на том, что значения индекса “ s ” лежат в пределах $0.7 < s \leq 1$ [13–15], хотя в ряде статей отмечались и меньшие его значения. Зависимость типа (2) выполняется в довольно широких частотных интервалах, охватывающих несколько порядков. Она может быть связана с прыжками носителей заряда разных типов — электронов, поляронов, а также с переходами разных видов — туннельными прыжками, классическими прыжками через барьеры. В неупорядоченных системах обычно существуют близкорасположенные пары состояний равновесия, между которыми могут осуществляться переходы носителей заряда. При достаточно малых концентрациях центров проводимость можно вычислять, считая, что она определяется изолированными парами центров (парное или двухузельное приближение) [10, 11]. В работе [17] было теоретически показано, что при частотах менее 10^6 Гц индекс $s = 0.8$. Следует отметить, что модели, основанные на парном приближении, удовлетворительно работают в области относительно высоких частот, обычно более 10 Гц. При более низких частотах носитель заряда за время полупериода поля успевает реализовать перескок по последовательно расположенным центрам. В этом случае имеет место так называемая мультиплетная прыжковая проводимость. При этом индекс “ s ” также имеет частотную зависимость: он уменьшается с уменьшением частоты электромагнитного поля [18].

Однако, согласно данным работ [17, 19, 20], в этом случае электропроводность также может быть аппроксимирована степенным законом (2) с меньшими значениями индекса “ s ”, чем это имеет место в случае парного приближения.

Наличие излома на частотных зависимостях электропроводности описано в работе [21] для композиционных материалов Ag/PAN. В диапазоне частот 10^3 – 10^6 Гц частотные зависимости электропроводности этих композитов описывались степенным законом $f^{0.8}$, что типично для одноактной прыжковой проводимости. При более низких частотах авторы наблюдали появление более пологого участка зависимости с $s \sim 0.4$. Авторы связывают выполаживание частотных зависимостей электропроводности с влиянием σ_{dc} , которая для этих материалов относительно высока.

Однако для исследуемых в настоящей работе композитов влияние σ_{dc} слишком мало, чтобы объяснить наличие излома. По всей видимости, форму зависимости $\sigma_{ac}(f)$ композитов, исследованных в настоящей работе, можно объяснить наличием в них оксида алюминия, покрывающего поверхность частиц наполнителя. При понижении частоты в слое Al₂O₃ происходит переход от одноактной прыжковой проводимости к мультиплетной, что и вызывает излом на частотных зависимостях и уменьшение индекса “ s ”.

Еще одним интересным результатом является хорошо выраженная зависимость индексов “ s_1 ” и “ s_2 ” от концентрации наполнителя (табл. 2 и 3). С ростом последней значение индексов уменьшается. Подобные результаты наблюдались в работе [22] для композитов эпоксидная смола/алюминиевая пудра, однако объяснения этому явлению дано не было.

В работе [12] для композитов эпоксидная смола/железо показано, что энергия активации прыжковой проводимости уменьшается с ростом концентрации наполнителя. Авторы связывают это явление с ростом размера электропроводящих кластеров и уменьшением толщины полимерных прослоек между ними. По данным работы [23] уменьшение энергии активации вызывает снижение значения индекса “ s ”. Исходя из этого, можно сделать вывод, что наблюдаемое в настоящей работе снижение значений s с увеличением содержания наполнителя в композите можно связать с ростом размеров кластеров наполнителя и утоньшением полимерных прослоек между ними.

Отсутствие резкого роста теплопроводности композитов, наполненных либо наночастицами Al без добавки микрочастиц, либо микрочастицами Al без добавки наночастиц при существенном увеличении степени наполнения, связано, по-видимому, прежде всего с повышением при этом пористости (снижением монолитности) материалов. Увеличение пористости материала приводит фактически к уменьшению эффективной концентрации Al в матрице, т.е. к теплопроводности, которой обладают композиты при более низком

содержании Al. Этим объясняется также и аномальная близость частотных зависимостей электропроводности для образцов с высоким содержанием наполнителя (рис. 3). Зависимости $\sigma(f)$ для концентраций Al, равных 67 и 50 об.% в СВМПЭ, практически совпадают. Можно предположить, что эффективные объемы электропроводящей и диэлектрической (полимер + воздух) фаз для этих образцов приблизительно одинаковы.

Как следует из табл. 3, для композитов, наполненных только наноразмерными частицами Al при содержании оксида алюминия на поверхности наночастиц 7 и 25 мас.% индекс " s_1 " близок к единице при всех исследованных концентрациях наполнителя. Это свидетельствует о диэлектрическом характере проводимости даже в локальном масштабе на длинах, которые носители зарядов могут преодолеть за половину периода поля. По-видимому, пористость указанных образцов наряду с оксидными слоями и слоями СВМПЭ препятствует образованию непрерывных электропроводящих цепочек из частиц наполнителя даже при высоких степенях заполнения порядка 70 об.%. Для образцов с содержанием оксида 48% значения s_1 лежат в диапазоне 0.7–0.8, что указывает на прыжковый характер электропроводности даже при малых заполнениях порядка 10 об.%. По-видимому, в толстом оксидном слое прыжки могут осуществляются внутри оксидной пленки на поверхности отдельной частицы. Поведение индекса " s_2 " одинаково для всех типов композитов с наночастицами Al независимо от толщины слоя оксида.

ВЫВОДЫ

Проведенное исследование теплопроводности и электрических свойств композитов на основе СВМПЭ и Al позволили определить оптимальные концентрацию и тип наполнителя. Показано, что для смеси 30% нано- + 70% микрочастиц Al при концентрации наполнителя ~55 об. % и выше наблюдается резкий рост теплопроводности материала, не зафиксированный для других исследованных серий композитов. Высокая теплопроводность объясняется образованием при указанной концентрации теплопроводящих путей из контактирующих частиц наполнителя, по которым осуществляется теплоперенос. При этом материалы остаются диэлектриками. Низкая dc -электропроводность исследуемых композиционных материалов связана с наличием оксидных пленок на поверхности частиц алюминия. Для других исследованных в настоящей работе серий композитов росту теплопроводности препятствует достаточно высокая пористость материалов.

Показано наличие излома на частотных зависимостях исследуемых композитов – индекс " s " универсального закона электропроводности в переменных полях различен для низких и высоких частот. По всей видимости, при понижении частоты происходит переход от одноактной прыжковой проводимости к мультиплетной, что и вы-

зывает излом на частотных зависимостях, а также уменьшение индекса " s " с уменьшением частоты. Для композитов, наполненных смесью микро- и наночастиц Al, обнаружена хорошо выраженная зависимость обоих значений индекса " s " от концентрации наполнителя, связанная, по-видимому, с ростом размера кластеров наполнителя и уменьшением толщины полимерных прослоек между ними, происходящими с ростом степени заполнения.

Работа выполнена по госзаданию № 0082-2014-0014.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Wattanakul K., Manuspiya H., Yanumet N. // J Appl. Polym. Sci. 2011. V. 119. P. 3234.
2. Wattanakul K., Manuspiya H., Yanumet N. // Colloids Surf. A. 2010. V. 369. P. 203.
3. Sato K., Ijuin A., Hotta Y. // Ceram. Intern. 2015. V. 41. P. 10314–8.
4. Tanaka T., Kozako M., Okamoto K. // J. Intern. Council Electr. Eng. 2012. V. 2. № 1. P. 90.
5. Yung K.C., Liem H. // J. Appl. Polym. Sci. 2007. V. 106. P. 3587.
6. Костандов Л.А., Ениколопов Н.С., Дьячковский Ф.С. и др. Способ получения композиционного материала: А.с. 763379 СССР // Б.И. 1980. № 34.
7. Жигач А.Н., Лейпунский И.О., Кусков М.Л. и др. // Хим. физика. 2002. Т. 21. № 4. С. 72.
8. Новохионова Л.А., Кудинова О.И., Берлин А.А. и др. Теплопроводящий электроизоляционный композиционный материал (варианты) и способ его получения: Пат. 2600110. РФ // Б.И. 2016. № 29.
9. Лазарев В.Б., Соболев В.В., Шаплыгин И.С. Химические и физические свойства простых оксидов металлов. М.: Наука, 1983.
10. Bottger H., Bryskin U.V. // Hopping conduction in solids. Berlin: Akademie Verlag, 1985. P. 169.
11. Пронин А.А. Дис. ... канд. физ.-мат. наук. М: МФТИ, 2001.
12. Psarras G.C. // Composites: Part A. 2006. V. 37. P. 1545.
13. Солодуха А.М. // Вестник ВГУ. Сер. Физика. Математика. 2005. № 2. P. 70.
14. Поклонский Н.А., Выход С.А., Забродский А.Г. // ФТТ. 2005. Т. 47. Вып. 7. С. 1195.
15. Bisquert J., Garcia-Belmonte G. // Rus. J. Electrochem. 2004. V. 40. № 3. P. 352.
16. Челидзе Т.Л., Деревянко А.И., Куриленко О.Д. Электрическая спектроскопия гетерогенных систем. Киев: Наук. думка, 1977.
17. Pollak M., Geball T.N. // Phys. Rev. 1961. V. 122. № 4. P. 1742.
18. Брыксин В.В. // ФТТ. 1980. Т. 22. № 8. С. 2441.
19. Nisha R., Madhusoodanan K.N. // Intern. J. Sci. and Res. Publ. 2014. V. 4. Issue 5. P. 1.
20. Ashwell G.J., Diaconu I., Eley D.D., Wallwork S.C., Willis M.R. // Z. Naturforsch. 1979. V. 34a. P. 1.
21. Кудряшов М.А., Машин А.И., Логунов А.А., Chidichimo G., De Filpo // ЖТФ. 2012. Т. 82. Вып. 7. С. 69.
22. Jafar H.I., Ali N.A., Shauky A. // J. Al-Nahrain Univ. 2011. V. 14. № 3. P. 77.
23. Pike G.E. // Phys. Rev. B. 1972. V. 6. № 4. P. 1572.