

Температурно-частотная дисперсия диэлектрических характеристик композитов на основе полиэтилена с включениями TlInS_2

М. М. Кулиев, О. А. Самедов, Р. С. Исмаилова

*Институт радиационных проблем НАН Азербайджана,
ул. Б. Вахабзаде, 9, г. Баку, Az-1143, Азербайджанская Республика, e-mail: rafiga55@rambler.ru*

Представлены результаты исследования дисперсионных зависимостей диэлектрических характеристик композитных структур на основе полиэтилена высокой плотности с включениями сегнетоэлектрического полупроводника TlInS_2 . Они получены из гомогенной смеси порошков компонентов методом горячего прессования в широком диапазоне концентрации наполнителя, температур и частот измерительного электрического поля. Показано, что температурно-частотная дисперсия диэлектрических характеристик исследуемых композитных пленок испытывает существенные изменения в области частот $f = 10^3\text{--}5 \cdot 10^4$ Гц и температур $T = 60\text{--}115^\circ\text{C}$. Определено, что гистерезисные явления, в основе которых лежит эффект «асимметрии» температурной эволюции электрически активных дефектов, при нагревании и охлаждении в этих гетерогенных макросистемах возникают при температурах $T < 115^\circ\text{C}$.

УДК 541.64:539.26:537.529

ВВЕДЕНИЕ

Современное состояние развития твердотельной электронной техники, в том числе и диэлектроники, характеризуется повышением плотности интеграции электронных устройств, которые нуждаются в расширении функциональных возможностей создаваемых новых материалов. Успех в этой области определяется особыми свойствами используемых гибридных материалов – композитов, состоящих из органических полимеров (полиэтилен, полипропилен, поливинилхлорид, поливинилиденфторид и др.) и введенных в них дисперсных неорганических частиц (сегнетоэлектрики, полупроводники и др.). Они привлекают к себе особое внимание как перспективные материалы для активных элементов многофункциональных электронных устройств [1–8]. К важным преимуществам композитов относятся их более высокая функциональность и электрическая стабильность по сравнению с полимерными аналогами. Функционирование композитных структур в качестве активного элемента связано, в частности, с явлениями зарядообразования. Поэтому при разработке новых активных диэлектрических композитов (АДК) внимание исследователей в основном концентрируется на получении и изучении диэлектрических, электрических, магнитных и других свойств последних, а также на их поведении при различных внешних воздействиях (температуры, частоты приложенного внешнего электрического поля, различного рода излучения и т.д.) [9–15]. Эти исследования могут служить основой при выборе компонентов композиции для получения эле-

ментов с заранее заданными параметрами и оценки возможности их применения в диэлектронике. Однако в настоящее время вопросы, связанные с температурными исследованиями диэлектрических характеристик, электропроводности, поляризационных и релаксационных процессов в таких АДК на переменном токе, остаются наименее изученными. Поэтому требуется продолжение изучения электропроводности и диэлектрических свойств полимерных композиционных материалов на переменном токе в широком температурном и частотном диапазонах. В то же время известно [16], что полимерные композиты представляют собой многокомпонентную гетерогенную систему, характеризующуюся хаотическим пространственным распределением частиц компонентов, и относятся к материалам с Максвелл-Вагнерской поляризацией. В таких композитах при определенных концентрациях наполнителя возникают кластеры, соединяющие противоположные стороны образца, что приводит к перколяционным фазовым переходам, которые сопровождаются диэлектрическим усилением, релаксацией физических констант, ростом эффективных удельной проводимости и магнитоэлектрической проницаемости [17–19]. Все это открывает новые возможности эффективного управления физическими свойствами путем изменения частоты прикладываемого к образцу электрического поля, что делает полимерные композиты перспективными как с фундаментальной, так и с прикладной точки зрения, так как при простоте изготовления они обладают достаточной стабильностью свойств. Прогнозирование с приемлемой для практических целей

точностью характеристики композитных материалов для различных типов наполнителей и их объемных долей требует проведения значительного объема предварительных экспериментальных исследований.

Для разработки новых типов АДК представляет интерес исследование сегнетоэлектрического полупроводника TlInS_2 . Поскольку TlInS_2 представляет собой гетерогенную систему, АДК на его основе могут быть хорошей моделью для исследования особенностей диэлектрических и электрических свойств композитов с неомогенным наполнителем.

В связи с этим цель настоящей работы – экспериментальное исследование температурно-частотной дисперсии диэлектрических характеристик композитной среды на основе частиц TlInS_2 в полимерной матрице из полиэтилена высокой плотности (ПЭВП) на переменном токе.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

В качестве объектов исследования использовали композиты на основе ПЭВП марки 20806-024, средняя молекулярная масса которого равнялась 95000, степень кристалличности – 52%, температура плавления 130°C , плотность 958 кг/м^3 . Содержание монокристаллического полупроводника TlInS_2 в композите варьировалось от 0 до 60% об. Размер частиц измельченного TlInS_2 составлял до 50 мкм. Композиты были получены из гомогенной смеси порошков компонентов с помощью ручного обогреваемого пресса при температуре 150°C и давлении 15 МПа. Режим кристаллизации – закалка-быстрое охлаждение образца в смеси вода-лед. Образцы для измерения дисперсионных зависимостей диэлектрических характеристик в переменном электрическом поле готовили в виде дисков диаметром 20 мм и толщиной около 170 мкм. Надежный электрический контакт электродов из нержавеющей стали диаметром 15 мм обеспечивали, применяя прессованные электроды из алюминиевой фольги толщиной 7 мкм. Значение емкости C и тангенса угла диэлектрических потерь $\text{tg}\delta$ исследуемых сэндвич-структур определяли с помощью иммитанса – спектрометра E7-20. Образцы помещались в измерительную ячейку с прижимными электродами, которая, в свою очередь помещалась в нагревательную систему. Измерения емкости и $\text{tg}\delta$ проводились на свежеприготовленных образцах в открытой атмосфере. Погрешности измерений не превышали 5%. Затем на основании измеренной емкости C и геометрических размеров образца определяли величину модуля комплексной диэлектрической проницаемости ϵ с применением формулы плоского конденсатора:

$$\epsilon = \frac{Cd}{\epsilon_0 S},$$

где C – измеренная емкость образца; d и S – его толщина и площадь; ϵ_0 – диэлектрическая постоянная.

В экспериментах частота подаваемого на образец электрического поля изменялась от 10^2 до 10^6 Гц, а диапазон температур $T = 20\text{--}150^\circ\text{C}$. Амплитуда измерительного напряжения $U = 1 \text{ В}$. Полученные данные описывали зависимостью модуля комплексной диэлектрической проницаемости ϵ и тангенса угла диэлектрических потерь $\text{tg}\delta$ от частоты электрического поля и температуры. Температура определялась с помощью стандартной термопары медь-константан.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Температурная дисперсия ϵ и $\text{tg}\delta$

На рис. 1а,б приведены температурные зависимости $\epsilon(\alpha)$ и $\text{tg}\delta(\beta)$ исследуемых композитов на частоте 1 кГц. Как видно, с увеличением процентного содержания TlInS_2 в полиэтиленовой матрице до 60% об. наблюдается заметный рост ϵ . При 60% об. TlInS_2 ϵ достигает значение 18,1, что в 8 раз больше диэлектрической проницаемости чистого ПЭВП. Напомним, что ϵ самой матрицы ПЭВП составляет 2,3, а для TlInS_2 – 38. Такое поведение диэлектрической проницаемости композита с полупроводниковым наполнителем в значительной степени определяется Максвелл-Вагнеровской поляризацией [20], поверхностной энергией диэлектрика и наполнителя, проводимостью системы и ее близостью к порогу перколяции [21]. При малых концентрациях наполнителя в композите ϵ растет за счет Максвелл-Вагнеровской поляризации. Однако с ростом концентрации из-за разницы в поверхностной энергии компонентов структура композита становится неустойчивой, и частицы TlInS_2 образуют кластеры, поверхность которых меньше, чем суммарная поверхность составляющих их частиц. Увеличение числа кластеров с ростом концентрации наполнителя сопровождается уменьшением диэлектрической прослойки между частицами и приводит к росту электрической емкости (значит, и к росту ϵ). Из рисунка также видно, что для композитов с объемным содержанием наполнителя до 40% об. с ростом температуры до $90\text{--}95^\circ\text{C}$ ϵ незначительно уменьшается, в районе температуры плавления [22] кристаллитов ($100\text{--}115^\circ\text{C}$) происходит сравнительно резкое уменьшение ϵ , а затем до конца температурного интервала практически остается постоянным. C

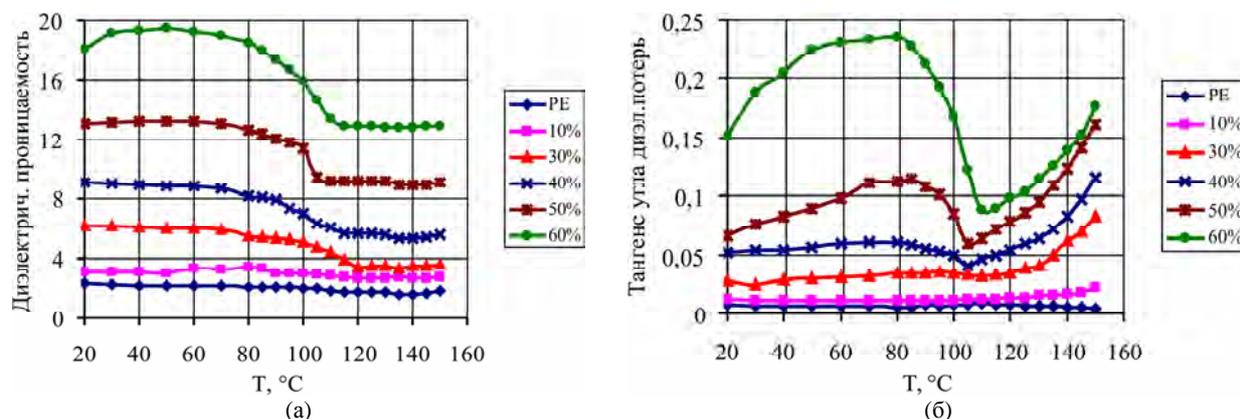


Рис. 1. Температурная зависимость диэлектрической проницаемости (а) и тангенса угла диэлектрических потерь (б) композитов ПЭВП.

увеличением объемного содержания TlInS_2 выше 40% об. характер $\epsilon = f(T)$ меняется, обнаруживаются следующие изменения: 1) по мере нагрева композитов их диэлектрическая проницаемость незначительно увеличивается; 2) в интервале температур плавления кристаллитов ($\sim 110^\circ\text{C}$) матрицы степень уменьшения ϵ резко возрастает; 3) температура, при которой начинается уменьшение ϵ , смещается в низкотемпературную область на 10°C .

Перейдем к рассмотрению температурной дисперсии величины $\text{tg}\delta$. Видно, что и в этом случае увеличение процентного содержания TlInS_2 в матрице до 60 приводит к существенному росту $\text{tg}\delta$. Величина диэлектрических потерь при начальной температуре 20°C составила $0,0079 \pm 0,0009$ для ПЭВП и для композитов с концентрацией частиц наполнителя 60% об. возросла до $0,1508 \pm 0,0005$. Большие диэлектрические потери композитов связаны с большей электрической проводимостью по сравнению с чистым ПЭВП. Концентрационные зависимости электропроводности исследуемых композитов на частоте 1 кГц показали, что введение до 60% об. TlInS_2 в ПЭВП увеличивает электропроводность от $3,0 \cdot 10^{-9}$ ($\text{Ом} \cdot \text{м}$) $^{-1}$ для чистого ПЭВП до $1,8 \cdot 10^{-7}$ ($\text{Ом} \cdot \text{м}$) $^{-1}$ – для композитов.

Из рис. 1б видны отличия между температурными зависимостями $\text{tg}\delta$ в чистом ПЭВП и композитах: по мере повышения температуры диэлектрические потери в ПЭВП в интервале $90\text{--}115^\circ\text{C}$ незначительно растут, а затем до конца температурного интервала незначительно уменьшаются. А в случае композитов характер зависимости $\text{tg}\delta = f(T)$ меняется. С ростом температуры $\text{tg}\delta$ композитов растет, при температуре размягчения T_p матрицы достигает своего максимального значения, затем, уменьшаясь в районе температуры плавления кристаллитов, проходит через минимум. С дальнейшим ростом температуры $\text{tg}\delta$ до конца температурного ин-

тервала вновь растет. Следует отметить, что с увеличением концентрации TlInS_2 в матрице степень роста $\text{tg}\delta$ при низких и высоких температурах (как и степень уменьшения в интервале $90\text{--}110^\circ\text{C}$) увеличивается, а температура, при которой наблюдается уменьшение $\text{tg}\delta$, сдвигается в сторону низких температур на $10\text{--}15^\circ\text{C}$. Такой ход диэлектрических потерь в композитах ПЭВП+ TlInS_2 полностью коррелирует с температурной зависимостью их электропроводности в переменном электрическом поле, что подтверждает предположение авторов [15] о том, что в некоторых областях температур характер электропроводности и связанных с этим зависимостей тангенса угла диэлектрических потерь, времени диэлектрической релаксации и энергии активации поляризационных процессов может быть одинаковым. Там же отмечается, что такое поведение диэлектрических характеристик полимерных композитных материалов указывает на тепловую природу некоторого «пускового» механизма его молекулярной подвижности и связанных с этим особенностей в диэлектрических свойствах материалов.

Частотная дисперсия ϵ и $\text{tg}\delta$

На рис. 2а,б приведены дисперсионные кривые $\epsilon(f)$ и $\text{tg}\delta(f)$ полимерных композиционных материалов на основе ПЭВП и сегнетоэлектрического полупроводника TlInS_2 , измеренные при температуре 20°C . Из приведенных результатов видно, что диэлектрическая проницаемость образцов монотонно уменьшается с увеличением частоты измерительного поля до $f < 5 \cdot 10^4$ Гц, а зависимость $\text{tg}\delta(f)$ обнаруживает наличие максимума при $1 \cdot 10^4$ Гц.

Такое поведение функции $\epsilon(f)$ свидетельствует о релаксационном характере дисперсии диэлектрической проницаемости, которая для композитов с объемным содержанием наполнителя до 40% об. имеет почти одинаковую глубину и

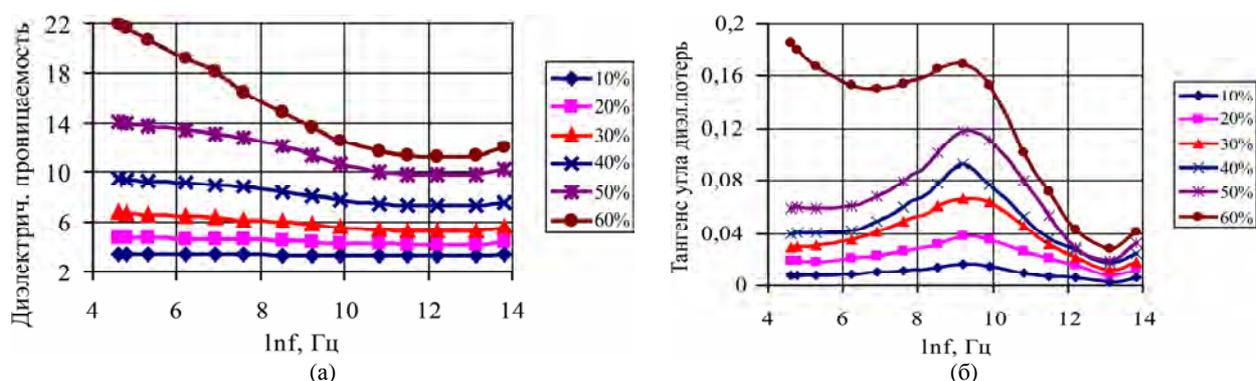


Рис. 2. Частотная зависимость диэлектрической проницаемости (а) и тангенса угла диэлектрических потерь (б) композитов ПЭВП.

носит сумбатный характер. Характерное для исследуемых композитов первоначальное уменьшение (глубина дисперсии) ϵ при увеличении частоты для образцов с объемными содержаниями 50 и 60% об. TIInS_2 наибольшее и в диапазоне частот 10^2 – 10^4 Гц отвечает экспоненциальному закону. Диэлектрический отклик при низких частотах может быть обусловлен кинетикой отдельных элементов структуры композитного материала, которые с повышением частоты начинают принимать участие в релаксационном процессе. В диапазоне частот $5 \cdot 10^4$ – $5 \cdot 10^5$ Гц ϵ всех композитов практически остается постоянной, а при $f > 7,5 \cdot 10^5$ Гц наблюдается тенденция к возрастанию ϵ .

Как уже отмечалось во введении, в композитных структурах ПЭВП- TIInS_2 могут образоваться участки, содержащие изолированные скопления полупроводниковых частиц, – проводящие кластеры, хаотически распределенные в матрице ПЭВП. Увеличение объемного содержания наполнителя приводит к росту числа частиц TIInS_2 , приходящихся на поперечное сечение композита, а это эквивалентно доле TIInS_2 в общей толщине образца. Замкнутые друг с другом кластеры по толщине образца можно рассматривать как активное сопротивление, включенное между электродами. Поскольку TIInS_2 обладает высокой по сравнению с ПЭВП проводимостью, можно считать, что сопротивление композита в основном будет определяться контактами между частицами TIInS_2 . На границах кластеров (кластеры окружены тонкими прослойками ПЭВП, имеющего малую ϵ) в переменном электрическом поле происходят накопление и перераспределение свободных электрических зарядов (объемная поляризация Максвелла-Вагнера), которые искажают исходное внутреннее электрическое поле. Известно [23], что на низких частотах внутренние электрические поля распределяются соответственно проводимостям, а на высоких частотах – соответственно диэлектрическим проницаемостям. Следовательно, уменьшение ϵ

при увеличении частоты измерительного поля можно объяснить возникновением сравнительно сильного внутреннего поля в полупроводниковых кластерах.

Анализ приведенных на рис. 2б дисперсионных кривых $\text{tg} \delta$ показывает, что для композитов с объемным содержанием TIInS_2 до 50% об. в диапазоне частот 10^2 – 10^4 Гц измерительного поля наблюдается положительный диэлектрический эффект (ПДЭ), а именно возрастание значения $\text{tg} \delta$ образцов. При этом максимальный ПДЭ соответствует частоте $f = 1 \cdot 10^4$ Гц. С увеличением частоты сказывается инерционность формирования пространственного заряда в структуре композита, приводящая к снижению диэлектрического отклика. На низких частотах поверхностный заряд успевает следовать за полем, и диэлектрические потери оказываются малы. В области высоких частот поляризация не успевает устанавливаться за полупериод поля, и диэлектрические потери уменьшаются. Наблюдаемый в средней частотной области измерительного диапазона ($f_{\text{max}} = 1 \cdot 10^4$ Гц) максимум определяется, по-видимому, релаксационными потерями, характерными для большинства диэлектриков. В качестве релаксаторов здесь могут выступать структурные элементы композитного материала с различной степенью подвижности, а также ряд низкомолекулярных примесей, например полярные группы CO , которые появляются при изготовлении и обработке этого материала в результате частичного окисления полиэтилена. Рост диэлектрических потерь $\text{tg} \delta$ с увеличением частоты измерительного поля обусловлен поляризационными процессами. Действительно, оценки времени диэлектрической релаксации Максвелла ($\tau_m = \epsilon \epsilon_0 \rho$, где ρ – удельное сопротивление образца в Ом·м) в исследуемых композитах показали, что время внешнего воздействия на образцы переменным сигналом с частотой $\omega = 2\pi/T$, где T – период колебаний, при низких частотах больше, а при высоких – меньше τ_m . В нашем случае при $f = 1 \cdot 10^4$ Гц время внешнего воздействия сос-

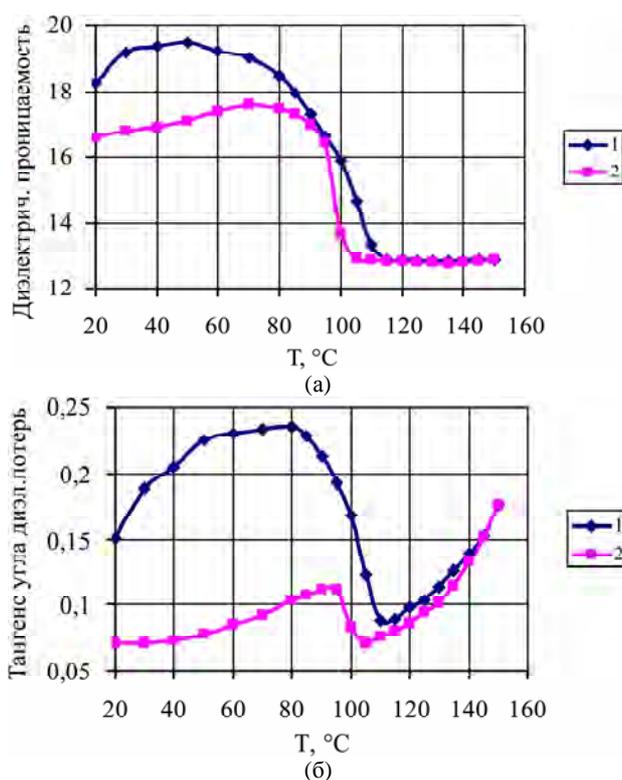


Рис. 3. Температурная зависимость диэлектрической проницаемости (а) и тангенса угла диэлектрических потерь (б) композитов ПЭВП+60% об. TIInS₂ (1 – нагрев; 2 – охлаждение).

тавило около 100 μs , а самое малое время релаксации Максвелла – около 200 μs , то есть выполняется условие $T < \tau_m$. Уменьшение значений $\text{tg}\delta$ с ростом частоты в случае композитов ПЭВП+60% об. TIInS₂ свидетельствует о том, что при частотах измерения $f \leq 1 \cdot 10^3$ Гц основным видом диэлектрических потерь в этих композитах являются потери на электропроводность. Следует отметить, что с увеличением объемного содержания TIInS₂ в матрице глубина дисперсии $\Delta\text{tg}\delta$ растет. Как следует из данных, приведенных на рис. 2б, значение частоты, при котором начинают проявляться высокочастотные релаксационные потери для всех композитов, практически одинаково ($f > 5 \cdot 10^5$ Гц).

*Дисперсия ϵ и $\text{tg}\delta$ в условиях
нагрева – охлаждения*

Рис. 3а,б иллюстрируют типичные температурные зависимости ϵ и $\text{tg}\delta$ для композита ПЭВП+60% об. TIInS₂ в процессе нагревоохлаждения, которые обнаруживают температурный гистерезис в области фазового перехода (95–110⁰С) полиэтиленовой матрицы. Выбор указанного композита для иллюстрации эффекта гистерезиса обусловлен большим динамическим диапазоном («размах» гистерезиса – разница величин электрофизических параметров в прямой (нагревание) и обратной (охлаждение) ветвях и особенно – на начальных и конечных значениях

температур) изменения ϵ и $\text{tg}\delta$ по сравнению с композитами с меньшей концентрацией наполнителя, то есть для всех исследованных композитов с объемным содержанием меньше, чем 60% об., разница между прямыми и обратными значениями ϵ и $\text{tg}\delta$ при комнатной температуре была невелика или вовсе отсутствовала. Следовательно, на рис. 3 изображен экспериментально полученный максимальный «размах». Поведение графиков при прямом ходе до 150⁰С и процессы, происходящие при этом, уже рассмотрены (рис. 1). Из рис. 3 видно, что температурные зависимости ϵ и $\text{tg}\delta$ образцов в процессе охлаждения из высокотемпературной фазы до температуры 115⁰С практически полностью совпадают с кривыми нагрева, то есть эффект гистерезиса проявляется при $T < 115^0\text{C}$, и значение ϵ и $\text{tg}\delta$ для одних и тех же температур меньше при охлаждении, чем при нагревании образца. Начиная с 105⁰С, значения ϵ и $\text{tg}\delta$ начинают расти, достигают максимума при соответствующих температурах (ϵ – при 70⁰С, а $\text{tg}\delta$ – при 95⁰С), а затем медленно уменьшаются. В результате цикла нагревоохлаждения диэлектрические характеристики образцов принимают новые значения, сохраняющиеся некоторое время (по меньшей мере – в течение пяти дней). Такое поведение композита согласно [15] связано с термостимулированным процессом перераспределения заряда на границе частица–матрица, его накоплением на более глубоких ловушках и, как следствие, возникновени-

ем неравновесных состояний среды. В таком состоянии образцы композита после охлаждения до комнатных температур могут находиться длительное время. По мнению авторов [24], эта особенность композитов обуславливает гистерезисные явления, в основе которых лежит эффект «асимметрии» температурной эволюции электрически активных дефектов. Даже при небольших скоростях охлаждения макросистема не успевает достигать квазиравновесия (начальное состояние дефектов): исходные концентрации комплексов дефектов сразу не восстанавливаются, и возвращение образца в равновесное состояние требует длительной выдержки при комнатной температуре. Образование электрически активных дефектов в таких композитах при остывании может быть обусловлено и деформацией полимерной матрицы, возникновением механических напряжений на границе раздела полупроводник–полимер из-за различия в значениях коэффициента термического расширения и теплопроводности, а также электропроводности компонентов композита.

Относительное изменение диэлектрической проницаемости и диэлектрических потерь с изменением температуры составило примерно 8 и 54% соответственно в ходе цикла нагрев–охлаждение.

Таким образом, результаты настоящей работы позволяют сделать вывод о том, что высоконаполненные композитные пленки системы ПЭВП+TlInS₂ весьма чувствительны к температурным и частотным изменениям и могут представлять интерес для практического применения, например в датчиках температуры, и т.д.

ЛИТЕРАТУРА

1. Young R.H., Fitzgerald J.J. Effect of Polar Additives on Dielectric Properties and Charge Transport in a Molecularly Doped Polymer: A Test of Dielectric Polarization Models. *J. Chem. Phys.* 1995, **102**(15), 6290–6300.
2. Shik A., Ruda H. and Sargent E.H. Photoelectric Phenomena in Polymer-based Composites. *J. Appl. Phys.* 2000, **88**(6), 3448–3453.
3. Гашимов А.М., Гасанлы Ш.М., Мехтизаде Р.Н., Азизова Ш.М., Байрамов Х.Б. Нелинейный резистор на основе композиции полимер–керамика. *ЖТФ*. 2007, **77**(8), 127–130.
4. Александрова Е.Л., Лебедев Э.А., Константинова Н.Н., Алешин А.Н. Эффекты переключения в композитных пленках на основе сопряженного полимера – полифлуорена и наночастиц ZnO. *ФТТ*. 2010, **52**(2), 393–396.
5. Bordovsky G.A., Gorokhovatsky I.Yu., Temnov D.E. Electret Properties of Polyethylene Films with Nanodimension Inclusions of SiO₂. *Proceedings of Third international Conference on Advances in Processing. Testing and Application of Dielectric Materials (APTADM)*. Wroclaw, Poland, 2007, 194–197.
6. Ouyang J., Chu C.W., Tseng R.J., Prakash A., Yang Y. Electrical Bistable Polymer Films and their Applications in Memory Devices. *Handbook of Conducting Polymers*. Eds T.A. Skotheim, J.R. Reynolds. 3d ed. CRC Press 2007, 2(8), 8–1–16–21.
7. Лушейкин Г.А. Новые полимерсодержащие пьезоэлектрические материалы. *ФТТ*. 2006, **48**(6), 963–964.
8. Магеррамов А.М., Годжаев Э.М., Османова С.С., Нуриев М.А., Аллахаров Э.А. Зарядовое состояние композиций на основе полиэтилена с полупроводниковым наполнителем TlInS₂. *Электронная обработка материалов*. 2007, (2), 84–88.
9. Чмутин И.А., Рывкина Н.Г., Соловьева А.Б., Кедрина Н.Ф., Тимофеева В.А., Рожкова Н.Н., Мс. Queen D.H. Особенности электрических свойств композитов с шунгитовым наполнителем. *ВМС*. А. 2004, **46**(6), 1061–1070.
10. Калинин Ю.Е., Ремизов А.Н., Ситников А.В. Электрические свойства аморфных нанокompозитов (Co₄₅Fe₄₅Zr₁₀)_x(Al₂O₃)_{1-x}. *ФТТ*. 2004, **46**(11), 2076–2082.
11. Ушаков Н.М., Кособудский И.Д., Юрков Г.Ю., Губин С.П., Запис К.В., Кочубей В.И., Ульзутуев А.Н. Новые композиционные наноматериалы с управляемыми свойствами для радиотехники и электроники. *Радиотехника*. 2005, **10**, 105–109.
12. Александрова У.Л., Лебедев Э.А., Константинова Н.Н., Алешин А.Н. Эффекты переключения в композитных пленках на основе сопряженного полимера – полифлуорена и наночастиц ZnO. *ФТТ*. 2010, **52**(2), 393–396.
13. Лебедев Э.А., Александрова У.Л., Алешин А.Н. Неустойчивость тока с S-образной вольт-амперной характеристикой в тонких пленках композитов на основе полимеров и неорганических частиц. *ФТТ*. 2009, **51**(1), 195–197.
14. Алешин А.Н., Александрова У.Л. Эффекты переключения и памяти, обусловленные прыжковым механизмом переноса носителей заряда в композитных пленках на основе проводящих полимеров и неорганических наночастиц. *ФТТ*. 2008, **50**(10), 1895–1900.
15. Ушаков Н.М., Ульзутуев А.Н., Кособудский И.Д. Термодиэлектрические свойства полимерных композитных наноматериалов на основе медь-оксид меди в матрице полиэтилена высокого давления. *ЖТФ*. 2008, **78**(12), 65–69.
16. Torquato S. *Random Heterogeneous Materials. Microstructure and Macroscopic Properties*. Springer – Verlag, N.Y.–Berlin–Heidelberg. 2002. 702.
17. Турик А.Б., Гармашов С.И. Диэлектрические потери в статистических смесях. *ФТТ*. 2011, **53**(6), 1129–1132.
18. Турик А.В., Чернобабов А.И., Родинин М.Ю., Толокольников Е.А. Магнитоэлектричество в дву-

- мерных статистических смесях. *ФТТ*. 2009, **51**(7), 1395–1398.
19. Турик А.В., Чернобабов А.И., Родинин М.Ю. Гетерогенные мультиферроики: магнитоэлектричество и пьезоэффект. *ФТТ*. 2009, **51**(8), 1580–1584.
 20. Хиппель А.Р. Диэлектрики и волны. М.: ИЛ, 1960.351 с.
 21. Мурадян В.Е., Соколов Е.А., Бабенко С.Д., Моравский А.П. Диэлектрические свойства композитов, модифицированных углеродными наноструктурами, в микроволновом диапазоне. *ЖТФ*. 2010, **80**(2), 83–87.
 22. Euyubova N.A., Kuliyeu M.M., Ismayilova R.S. and Abdullayev A.P. Derivatographic Studies of Polyethylene Containing a Dispersed Semiconductor. *Surface Engineering and Electrochemistry*. 2011, **47**(3), 253–255.
 23. Турик А.Б., Родинин М.Ю. Диэлектрические потери в материалах с ограниченной областью распределения времени релаксации. *Письма в ЖТФ*. 2010, **36**(1), 37–43.
 24. Соцков В.А., Борисов В.А. Эволюция аттрактора макросистемы в зависимости от концентрации проводящей фазы и температуры. *ЖТФ*. 2007, **77**(11), 103–108.

Поступила 13.02.12

Summary

The study presents the results of dispersion dependences of dielectric characteristics of composite structures based on polyethylene of high density with inclusions of ferroelectric semiconductor TiInS_2 , which have been manufactured from a homogeneous mixture of powder components by hotpressing in a wide range of filler concentration, temperatures and frequencies of the measuring electric field. It is shown that, the temperature-frequency dispersion of dielectric characteristics of the composite films under study undergoes substantial changes in the ranges of frequencies of $f = 10^3\text{--}5 \cdot 10^4$ and temperatures of $T = 60\text{--}115^\circ\text{C}$. It is determined that, the hysteresis phenomena appear at temperatures of $T < 115^\circ\text{C}$, whose main mechanism is the effect of “asymmetry” of temperature evolution of electrically active defects upon heating and cooling in these heterogeneous macrosystems.