

静电场作用下 α -碘酸锂单晶 中子衍射的增强(II)*

中国科学院原子能研究所 α -碘酸锂研究小组

提 要

在以前工作^[1]的基础上,继续作了以下的实验:(1)在低温条件下测定了 α -碘酸锂单晶在静电场中的衍射情况,观察到在 $\sim 180\text{K}$ 以下出现“冻结”现象,即加上电场并不能使衍射增强,撤去原在室温所加的电场后衍射强度也并不减弱;(2)用狭束中子探测了加静电场后晶体的不同部位,观察到衍射增强是体效应而不是表面层效应;(3)测定了低频交变电场对晶体中子衍射强度的影响,衍射束增强的程度随频率的下降而加大,频率在 1500Hz 时衍射束的增强已不明显。

我们曾经报道了在不大的静电场作用下 α -碘酸锂单晶中子衍射强度显著增大的现象^[1],为进一步探索这一现象并寻求其规律性,我们在以前工作的基础上又作了一些实验,包括静电场效应随温度的变化、晶体不同部位的衍射增强效应、交变电场效应等等。

这一系列实验都是在 neutron 衍射仪^[2]上进行的,入射波长为 $1.08\text{\AA}$ (70meV),对 α -碘酸锂,观察的都是 (002) 晶面的效应。由于这些设备和情况在文献 [1] 中已作了介绍,本文不再重复。

1. 温度效应

测量了从 78K 到 343K ($-195-70^\circ\text{C}$) 温度范围内静电场对 α -碘酸锂单晶 (002) 面中子衍射强度的影响及其随温度的变化。测低温数据时用的是简单的喷液氮控温装置,室温以上的测量使用电热恒温器。样品面积 $\sim 7.6\text{cm}^2$, 厚度 $\sim 4\text{mm}$ (z 向)。试验电压用同号¹⁾ 100V 。观察到的主要现象如下:

(1) 当晶体温度在 78K 时,加电场已不能改变其衍射强度。图 1 为在此温度下晶体加电场和不加电场的摇动曲线。由图 1 可以看出,加电场后无论衍射峰值和半宽度都没有变化。

(2) 此时如果保持外加电场,将晶体缓缓升温 (约 $20^\circ\text{C}/\text{小时}$),并同时观察其衍射强度的变化,可以看到当温度超过一定数值 (对所试样品约 180K) 以后,开始有微弱的充电电流 ($\sim 10^{-8}\text{A}/\text{cm}^2$ 晶面) 通过晶体,与此同时其衍射强度也渐渐偏离不加电压时的数值,逐步上升;当晶体温度达到室温时,衍射强度也达到了室温下应有的增强值 I (图 2 曲线 b 及 b')。

* 1975年10月16日收到。

1) 晶体的正极面上加正电压时称为同号,反之则为异号。在文献 [1] 中曾称为“正向”和“反向”,现为确切和统一起见,以下统改称“同号”和“异号”。

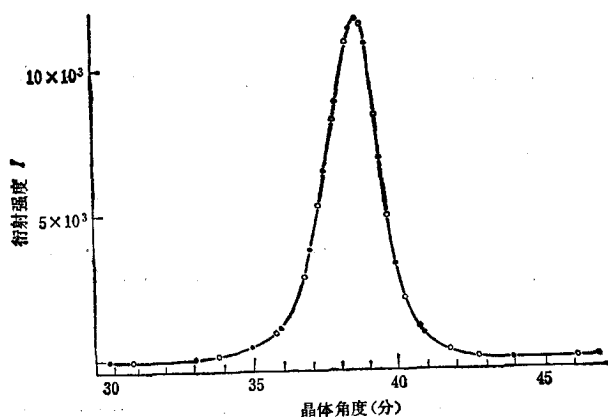


图1 晶体在 78K 时的摆动曲线

●——不加电压； ○——同号 100V 电压

(3) 但是,如果不按(1)的作法,而是先在室温下对晶体加上电场,经过一段时间,使其衍射强度增到稳定值以后,再在保持电场下降温,就会得到不同的情况:衍射强度不但下降,反而略有增加;如果此后再行升温,那么衍射强度也随着温度的升高逐步趋近于室温的 I 值(图2 曲线 c).

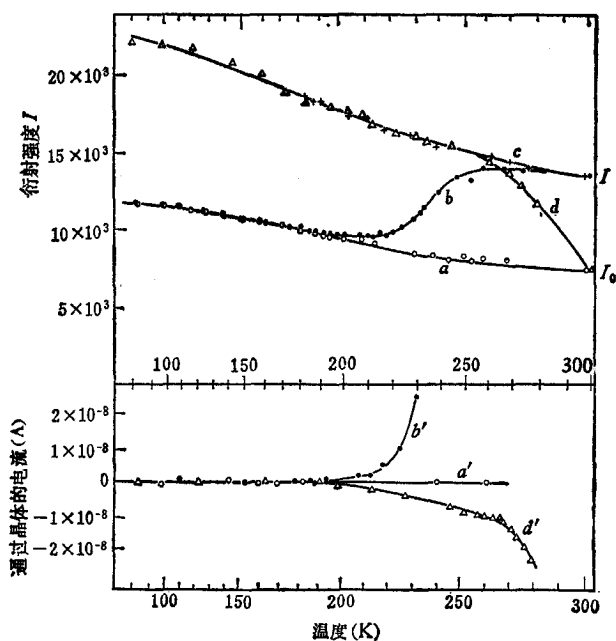


图2 低温测量结果

上图 在缓慢升温 (78—300K) 过程中记录下的晶体

衍射强度变化 四个不同曲线的起始条件为

○——曲线 a , 晶体不加电压; ●——曲线 b , 晶体降温后再加电压; +——曲线 c , 晶体加电压后再降温; △——曲线 d , 晶体加电压后降温到 78K 再撤去电压

下图 a' , b' , d' 三曲线分别为对应于上图 a , b , d 过程中通过晶体的电流

(4) 为了判明(3)的情况下,在低温时被“冻结”了的“衍射增强状况”会不会在撤去电压后自行下降,进行了下列实验:先在室温加电压足够时间使衍射增强稳定后,再降温到 78K,然后撤去外加电压并将晶体两侧的电极短路。这时观察到,在这样的温度下,短路并不能使衍射强度下降,只有当晶体温度回升到一定数值,回路中出现一定量(同样约为 10^{-8}A/cm^2 量级)的放电电流之后,衍射强度才开始偏离“增强”的曲线(图 2 曲线 c)而下降,最后达到室温的 I_0 值(图 2 曲线 d, d')。

这样,连同不加电场的、衍射强度随温度的变化关系的曲线(图 2 曲线 a),就得到共四根在四角有会合,而在中间有交叉的曲线,均列在图 2 中。

(5) 为了进一步确定上述这一些变化确是晶体本身在这些温度时的特性而不是在升温过程中的其他过渡现象,又用同一晶体在控温(稳定度 $\sim \pm 2^\circ\text{C}$)条件下,在 180K 附近选两个不同温度用较长时间观察了静电场对衍射的效应,结果列于图 3。由图 3 可以看出,在 170K 时,加电场 2.5 小时后,还看不出衍射强度有超出统计误差的变化;在 205K,同样加电场 2.5 小时后衍射强度上升约 20%。作为对比,图中也列出了在室温下加同样电场的情况:几分钟内衍射强度就增到稳定值。从这些结果来看,在升温过程中观察到的现象是反映了晶体在低温时的特性的。

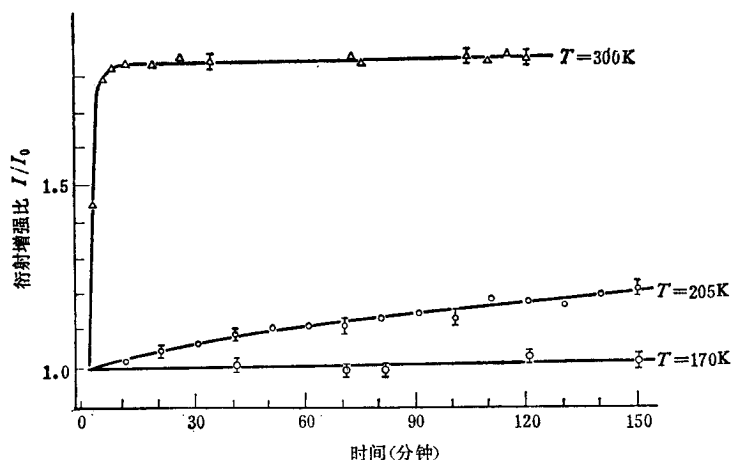


图 3 在三个不同温度下同样电压引起的衍射束强度随时间的变化(加同号 100V)

(6) 在室温以上直到 70°C ,用另一个样品作了增强比与温度的关系。所得结果如图 4。虽然在这个温度范围内通过晶体的电流变化了约 50 倍之多,但增强比 I/I_0 的变化并不大,这和低温实验中在接近室温部分(图 2 右端)的情况是一致的。

总结以上的温度实验,可以归纳出几个特点:

i) 在低于一定温度以后,晶体出现类似于“冻结”的现象,此后它的衍射强度就不再受外加电场的影响;也就是说,原在室温时未加电场的,此时再加电场已不能使其衍射增强;原来在室温时已加上电场的,此时撤去电场也不能使其衍射减弱。

ii) 当温度超过这一数值,晶体开始“解冻”,外电场对衍射强度的影响开始出现时,都测得一定量的、伴随着 I/I_0 值改变的“充电”或“放电”电流。从这两个现象在同一温度下

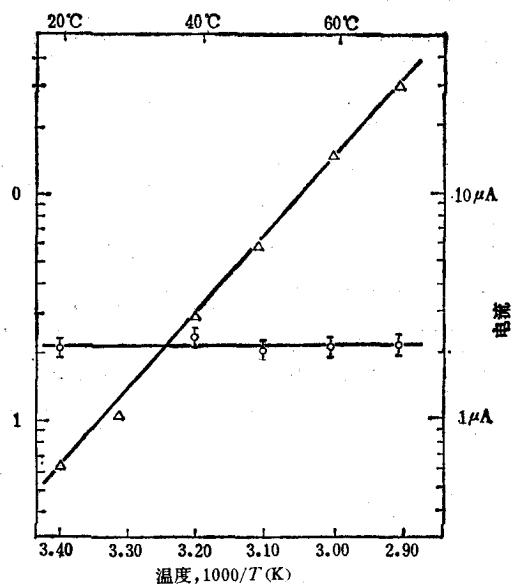


图4 20—70°C 间晶体衍射增强比($\otimes$)和通过晶体的电流(Δ)($V=100V$ 同号, (002) 面衍射)

同时出现来看,它们之间可能存在着一定的联系。

iii) 在稍高于“冻结”的温度范围内,晶体衍射强度增大的弛豫时间随着温度的升高而逐渐变短;在远高于“冻结”的温度范围内(例如室温),从所测得的 I/I_0 及电流随温度的变化来看,此时通过晶体的稳态电流的大小似已与形成衍射强度变化的机制无关。

2. 晶体不同部位的衍射增强效应

选取了两个 z 向厚度比较大(15 及 30mm)的样品,用狭束中子(宽 $\sim 1mm$)探测了晶体自阳电极到阴电极间的不同部位(图 5)。在两个样品上都观察到,当晶体被加上 z 向电场以后,不论是同号还是异号,在两极间的每一个段落都有明显的衍射增强现象(图 6)。这说明衍射增强效应并不是集中在电极下(即并非表面层效应),而是晶体的整体效

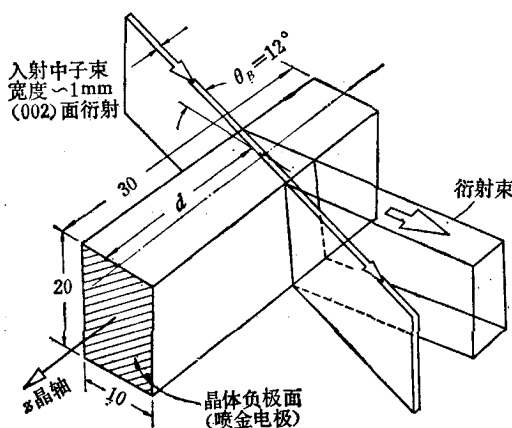


图5 测定同一晶体不同位置的衍射增强比时所采用的几何

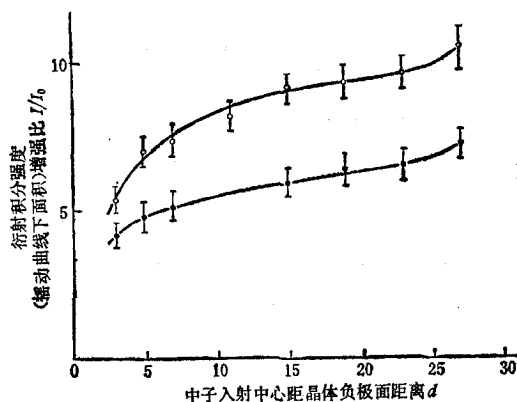


图6 晶体不同部位的衍射增强比(几何见图 5) (002) 面衍射 $\otimes$ ——同号 100V; $\otimes$ ——异号 100V

应。在观察这一现象时, 还看到: 对于厚的晶片(z 向超过 10mm 以上) 而言, 撤去同号电压后, 其衍射强度复原到 I_0 的弛豫过程远比异号慢。

3. 低频交变电场的实验

选用电压为 310V (r.m.s.), 频率自 50 到 10000 Hz 的正弦波电压, 在 1 号样品^[1]上测定了 (002) 面衍射增强倍率与频率的关系。测得结果如图 (7)。由图可以看出, 在 10^3 Hz 以上衍射增强效应很小, 当频率低于 10^3 Hz 后, I/I_0 值开始显著上升, 在 50 周时达到 ~ 1.5 倍。这些频率均远低于晶体压电谐振的基频, 增强比与频率间的变化关系也不呈现共振特性, 因而我们认为这种衍射增强的机制不属于压电振荡效应^[3], 而与静电场效应相类。

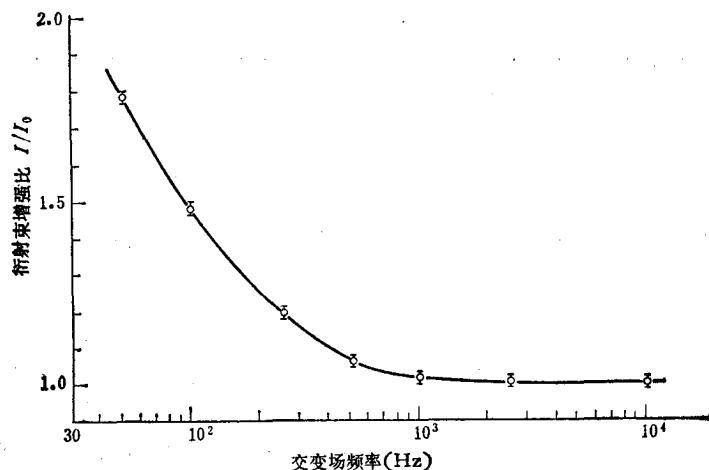


图 7 交变电场对中子衍射强度的影响
1 样品, (002) 晶面, 电压(有效值) 310V

4. 其他方面的工作

观察了中子通量对增强比的影响, 实验表明, 在同样的条件下, 增强比 I/I_0 与中子通量大小无关。这说明衍射增强不是由于中子的反应(例如晶体被活化等)所引起。

测试了几种其他晶体: TiO_2 (具有 z 向介电异常), LiKSO_4 (含锂、非铁电性的电极性晶体); 与 α -磷酸锂相比, 在相同或更大的 z 向场强下, 相同的持续时间里没有看到 (001) 组面的衍射增强现象。

以上是我们近期所作的一些主要实验。在工作过程中, 物理研究所的同志们给我们提出了许多有益的意见和建议, 该所晶体学研究室为我们制备了所需要的 α -磷酸锂样品, 并提供了多种实验晶体; 关于这一现象的理论解释, 目前正和其他方面的实验例如物理研究所的电学实验^[4] 和光学实验^[5]、四川大学的形变测量^[6] 等互相配合, 逐步探讨中。

参 考 文 献

- [1] 杨楨、程玉芬、牛世文、李荫远, 物理学报, **24** (1975), 6; 物理, **4** (1975), 9.
- [2] 安万寿、张焕乔等, 物理学报, **17** (1961), 222.
- [3] 杨楨、张焕乔、周友朴, 物理学报, **23** (1974), 447.
- [4] α -磷酸锂的导电和介电行为(待发表).
- [5] 麦振洪, 物理学报, **24** (1975), 385.
- [6] 四川大学学报(自然科学版), 1975 年, 第 2 期, 93 页.

ENHANCEMENT OF NEUTRON DIFFRACTION INTENSITIES OF α - LiIO_3 SINGLE CRYSTALS WITH THE APPLICATION OF A DC FIELD (II)

α -LITHIUM IODATE RESEARCH GROUP, INSTITUTE OF
ATOMIC ENERGY, ACADEMIA SINICA

ABSTRACT

The following investigations have been carried out on the basis of our previous work [1]. The (002) intensities of neutron diffraction from α - LiIO_3 single crystals under a DC or AC field along the c-axis were measured in various cases. (1) With a DC field applied at a temperature below 180 K or so, no enhancement is found to appear. When the DC field is applied at room temperature and the sample then cooled down to 180 K or even lower (e.g. liquid nitrogen temperature), the magnitude of the diffraction intensity enhancement initially observed at room temperature remains the same, even after removing the applied voltage. (2) When a narrow neutron beam is scanned across a thicker crystal and a DC field applied, the diffraction intensity enhancement is not limited to the region near the electrodes, but also appears in each scanned region. (3) When a low-frequency AC field is applied, the enhancement decreases as the frequency increases for the same V_{rms} . Above 1500 c/s the effect becomes negligible.