

静电场作用下 α -LiIO₃ 单晶的光衍射增强现象的弛豫行为和“低温冻结”*

赵世富 顾本源 张安东 许政一

(中国科学院物理研究所)

提 要

在以前工作^[1,2]的基础上,利用在频率平面上进行空间滤波的方法,研究了 α -LiIO₃ 单晶在静电场作用下,空间电荷分布引起的衍射光强变化的弛豫行为。得出了弛豫过程的唯象表达式,发现其中的弛豫参数依赖于温度和电压的大小以及所加电压为同号或异号电压,且随样品的不同而变化。在低温下,衍射会被“冻结”:即在“冻结”温度($\sim -25^\circ\text{C}$)以下加电压,衍射增强不显著;在“冻结”温度以上加电压,然后降至“冻结”温度以下,衍射光强度仍保持高温时增强后的数值;撤去电压,因加电压所增加的衍射并不消失。

一、引 言

文献[1]报道了在静电场作用下, α -LiIO₃ 单晶的透射光场出现枝蔓状分布的现象。文献[2]利用投影法,傅里叶频谱分析法和纹影法对此现象作了进一步的研究。文献[3]证实了 α -LiIO₃ 这种在静电场作用下的透光异常,是由于晶体中的点缺陷在电场作用下富集在准周期层状宏观尺度缺陷处,从而形成六个空间光栅组成的复合光栅,导致入射光的衍射增强。也就是说,它是 α -LiIO₃ 单晶准周期层状缺陷的空间电荷缀饰的结果。因此在以后我们不再称这种现象为透光异常现象,而按照现象的本质,称之为 α -LiIO₃ 在静电场作用下的光衍射增强现象。

文献[4]用上述过程统一解释了在静电场作用下中子衍射增强的现象^[5]。而中子衍射增强现象在低温下有“冻结”效应^[6],这种“冻结”是迁移粒子在低温下迁移率过低造成的^[7,8]。既然 α -LiIO₃ 单晶中空间电荷引起的光衍射增强现象和中子衍射增强对应于同一微观过程,则前者显然也应该有低温冻结现象。我们的实验证实这个预测,从而也为文献[3]和[4]的论证提供了又一证据。

“冻结”现象是与弛豫过程密切相关的。因此我们详细研究了不同温度下以及不同电压大小与极性(即同号或异号电压)下由于空间电荷分布引起的光衍射增强的弛豫行为。

* 1978年5月19日收到。

二、实验方法

本实验共用了两块长方柱体样品¹⁾, 在一对(001)面上蒸镀金电极, 通光面平行于电场。样品具体尺寸如表1所示, 所有样品均由我所 α -LiIO₃生长组提供^[9]。

表1 实验上所用的样品尺寸

样品编号	C向长度(mm)	通光方向长度(mm)	第三边长度(mm)
1*	8.8	12.5	26.5
2*	9.4	7.5	17.0

样品置于一控温精度高于0.1℃的恒温装置^[10]中。光源为稳频氩-氖激光器。整个光路安排与空间滤波方法均同于文献[2]。用硅光电池接收衍射光强, 信号经调制放大整流后用多道记录仪记录。并同时记录激光强度与温度, 以监视实验条件的稳定。

三、弛豫行为

文献[2]已经报道了加直流电压后衍射光的增强和撤去电压后衍射光的减弱, 均有一

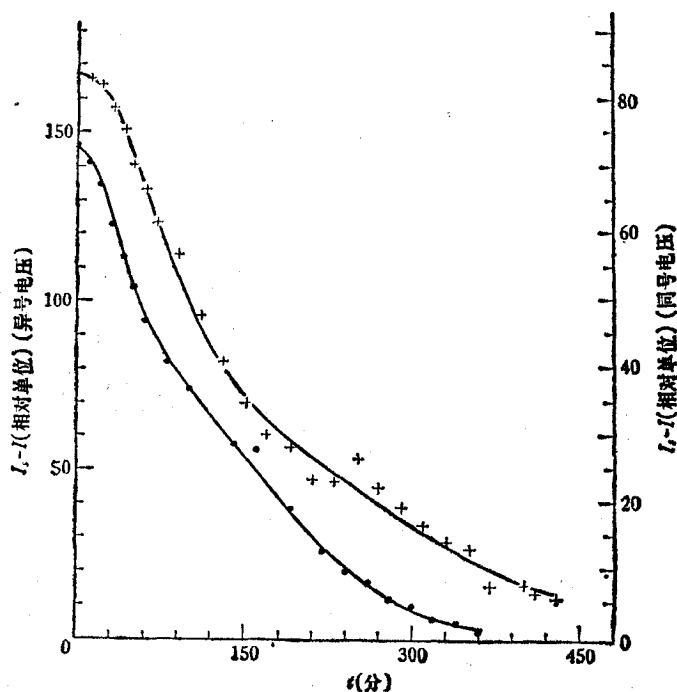


图1 加直流电压后衍射光增强的弛豫过程

此过程用(1)式描述, 实线是根据实验数据按(1)式算出。●为1*样品在 $T = -21.2^{\circ}\text{C}$ 时加同号电压^[11]1.07kV的测量值; +为2*样品在 $T = -13.1^{\circ}\text{C}$ 时加异号电压1.00kV时的测量值

1) 样品由王胜利同志加工, 罗田同志蒸镀金电极。

个弛豫过程。我们对表 1 中所列样品在不同温度下,加同样电压以及在同一温度下,加不同大小与极性的电压,测量其弛豫过程,发现它们均可由同一的唯象表达式描述。

在 $t = 0$ 时加直流电压,光衍射增强的过程可描写为

$$I(t) - I_0 = (I_s - I_0)[1 - \alpha \exp(-t^2/\tau_1^2) - (1 - \alpha) \exp(-t^2/\tau_2^2)]. \quad (1)$$

如图 1 所示。(1)式中的 I_0 为未加直流电压时的光衍射强度, I_s 为加直流电压后,衍射光强所达到的稳定值, α 为不大于 1 的参数, τ_1, τ_2 为弛豫参数。

在 $t = 0$ 时刻撤去直流电压(保持开路状态),光的衍射强度衰减过程可以用下式表示:

$$I(t) - I_0 = (I_s - I_0)[\beta \exp(-t/\tau'_1) + (1 - \beta) \exp(-t^2/\tau'_2)], \quad (2)$$

其中 β 为不大于 1 的参数, τ'_1, τ'_2 为弛豫参数。图 2 示出典型曲线。

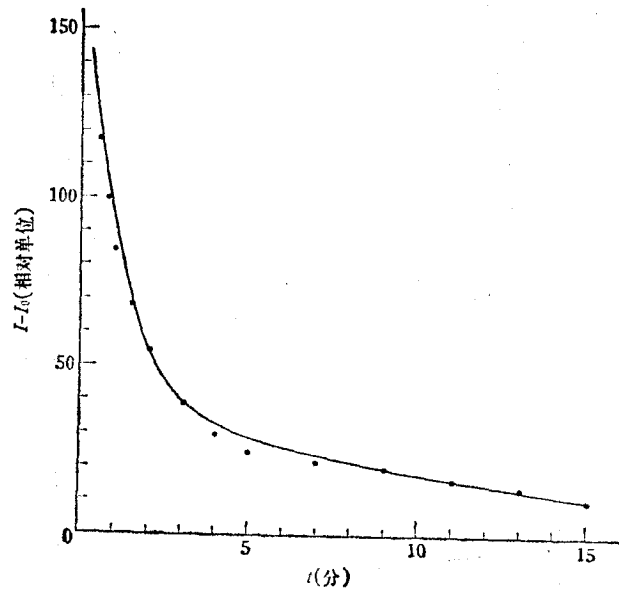


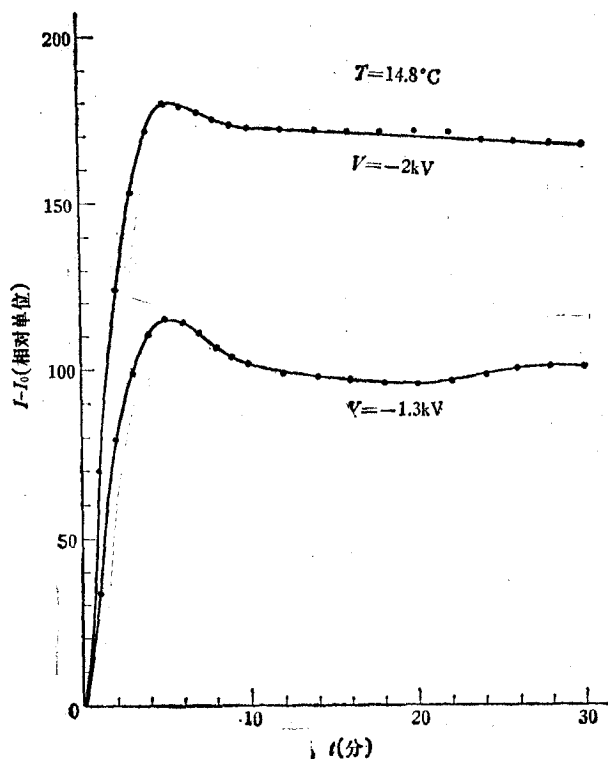
图 2 撤去直流电压后衍射光强的衰减过程
此过程可用(2)式描述。实线是根据实验数据按(2)式算出。●为 2*样品
在 $T = -6.1^\circ\text{C}$ 时撤去异号电压 1.00kV 时的测量值

当施加电压更高时,特别是在室温以上,光衍射强度上升达到一极大值后,略有下降,渐趋于稳定值,如图 3 所示。此时,弛豫过程不能再用(1)和(2)式表示了。

$\tau_1, \tau_2, \tau'_1, \tau'_2$ 随样品的不同,温度的不同以及电压大小与极性的不同而变化,行为十分复杂。表 2 至 4 给出了电压和温度对 α, β 及弛豫参数的影响。不同样品的弛豫参数差别很大,例如在 -1°C 时,加异号电压 1.00 kV, 1* 样品 $\tau_2 = 170$ 分钟,而 2* 样品则为 70 分钟。

四、“低温冻结”

将 α -LiIO₃ 的 1* 样品冷却至 -167°C , 然后加同号电压 1kV, 光的衍射强度 I 基本不变,这段曲线记为 a。然后升温, I 仍保持不变。当温度升到 -25°C 时, I 陡然上升。温

图3 1*样品在 $T = 14.8^\circ\text{C}$ 时加异号电压后光衍射强度的增长表2 电压极性和温度对 α 及弛豫参数 τ_1, τ_2 的影响

电 压	同号电压 1.07kV (1* 样品)							异号电压 1.07kV (1* 样品)					
	13.5	-1.5	-10.2	-16.2	-21.2	-25.8	-30.4	14.6	-1.1	-5.6	-10.5	-15.0	-20.9
$\tau_1 (\times 10 \text{ 分钟})$	1.3	4.6	9.9	6.6	4.3	9.0	0	0.3	4.3	8.0	8.6	11	0
$\tau_2 (\times 10^2 \text{ 分钟})$	0.9	1.9	3.3	5.1	1.9	3.3	3.1	0.1	1.7	4.0	2.7	5.6	4.0
α	0.5	0.3	0.3	0.3	0.3	0.5	0	0.9	0.7	0.7	0.5	0.3	0

表3 19.8°C 时电压大小对 α 及弛豫参数 τ_1, τ_2 的影响 (2* 样品)

异号电压(kV)	0.5	0.7	0.9	1.0
τ_1 (分钟)	0	3.0	4.8	5.0
$\tau_2 (\times 10 \text{ 分钟})$	0.7	0.9	1.1	1.3
α	0	0.3	0.6	0.4

表4 温度对 β 和弛豫参数 τ'_1, τ'_2 的影响 (2* 样品, $t = 0$ 时撤去异号电压 1kV)

温度($^\circ\text{C}$)	9.1	-1.2	-6.1	-13.1
τ'_1 (分钟)	0.3	0.8	1.2	0.9
τ'_2 (分钟)	1.2	6.2	15	30
β	0.8	0.9	0.8	0.9

度升到 -1.5°C 时, 已和在该温度下加同号电压 1kV 所达到的 I 稳定值相同, 也就是说“冻结”效应完全解除了, 该段曲线记为 b. 保持上述电压下, 再将样品降温至 -167°C , 这时 I 基本保持不变 (等同于 -1.5°C 时所达到的稳定值), 这段曲线记为 c. 然后切断电压,

I 略有下降, 接着又将样品升温, I 继续略有下降. 温度升到高于 -100°C 时, I 迅速下降 (I 显著减小的温度范围为 -100°C 至 -60°C). 在 -60°C 以上, I 不再变化, 即低温下加电场的影响完全消失了, 这是另一种的“解冻”. 这段曲线记为 d. 如图 4 所示.

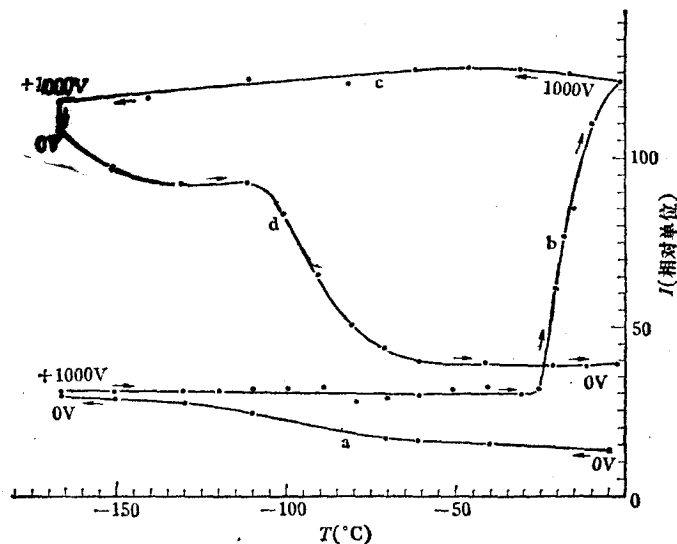


图 4 加直流电压后 α -LiIO₃ 单晶光衍射增强现象的“低温冻结”
1[#]样品, 加同号电压 1kV. 箭头表示曲线随温度变化走向

对于加异号电压, 结果与图 4 相似, “解冻”的温度也基本相同. 图 4 中的各点都是在温度达到平衡后测量的. 曲线 a 和 c 在温度平衡后立即测量; 而对曲线 b 和 d, 温度稳定后, 强度 I 继续变化, 当 I 在二十分钟内不再变化时, 即取此值为该温度所对应的 I .

我们将样品冷却至 -88°C , 施加直流电压, 然后以恒定功率加热晶体, 使之连续升温,

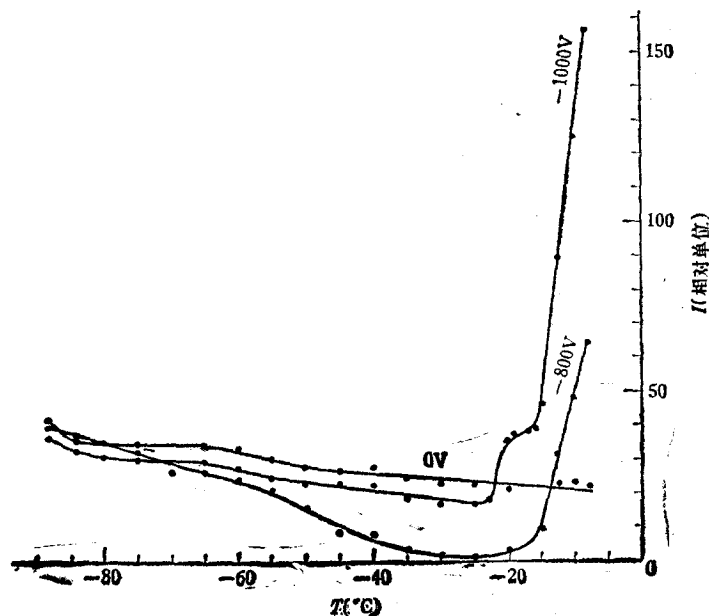


图 5 2[#]样品, 加不同异号电压对“解冻”的影响

同时记录样品温度 T 和光衍射强度 I , 得到 $I-T$ 曲线(图 5). 对不同直流电压作 $I-T$ 曲线, 考察电压对“解冻”的影响, 由图 5 可知, 电压较高时, “解冻”温度较低.

五、讨 论

由(1)和(2)式知, 有两种微观过程对 $\alpha\text{-LiIO}_3$ 在静电场作用下的光衍射增强有贡献, 它们可能对应于不同类型的缺陷的贡献. 根据文献[4]的分析, 在 $\alpha\text{-LiIO}_3$ 中存在着多种点缺陷.

τ'_1, τ'_2 比 τ_1, τ_2 小得多, 即切断电压后光衍射强度的衰减过程, 要比加电压后光衍射的增强快得多.

不同样品, 遵从同样的弛豫规律, 但其弛豫参数可以有很大差别. 它表明尽管不同样品中的缺陷可以不同, 但它们在电场作用下的运动规律却是相同的. 弛豫参数随温度的变化很复杂, 反映了微观相互作用的复杂性. 它们随电压变化的关系则较为简单, 随电压增大, τ_1 和 τ_2 增加.

在低温下或低电压下, 有时发生在(1)和(2)式中只出现一项的情况.

光衍射的弛豫行为和静电场作用下的中子衍射^[4]及表观介电常数的弛豫行为很不一样. 根据朱镛等同志提供的数据, 我们可求得 $\alpha\text{-LiIO}_3$ 加电场后表观介电常数 $\epsilon(t)$ 的增长过程为

$$\epsilon_s - \epsilon(t) = \epsilon_1 \left(\frac{t}{t_0} \right)^{-\ln(t/t_0)/\ln(\tau/t_0)} \quad \text{当 } t \geq t_0 \text{ 时} \quad (3)$$

撤去电压后表观介电常数的衰减过程为

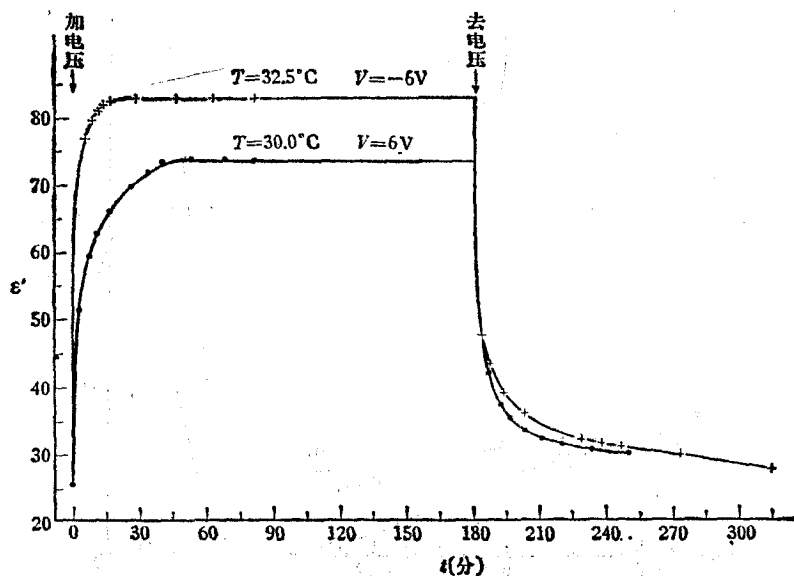


图 6 加上和撤去电压后表观介电常数的弛豫过程

●为加同号 6 V 偏压的实验值; +为加异号 6 V 偏压的实验值; 实线为按(3)式与(4)式算出

$$\epsilon(t) - \epsilon_0 = \epsilon_1 \left(\frac{t}{t_0'} \right)^{-\ln(t/t_0') / \ln(\tau'/\tau_0')} \quad \text{当 } t \geq t_0' \text{ 时} \quad (4)$$

这里 ϵ_0 为未加直流电压时的表观介电常数, ϵ_1 为加直流电压后表观介电常数所达到的稳定值. 通常 $t_0 = 1$ 分钟, 也有例外情形, 但总小于 10 分钟. 对文献[11]中的图 4(a), 按 (3) 和 (4) 式算出的结果示于图 6.

中子衍射的弛豫行为和表观介电常数的弛豫行为相同, 也可以用 (3) 和 (4) 式描述^[4], 只需将 ϵ 换成相应的中子衍射强度 $I_{\text{中}}$ 即可. 弛豫参数随样品不同, 温度、电压的极性和大小及摇动曲线的不同部位而变化. 图 7 是根据杨桢等同志的实验结果画出.

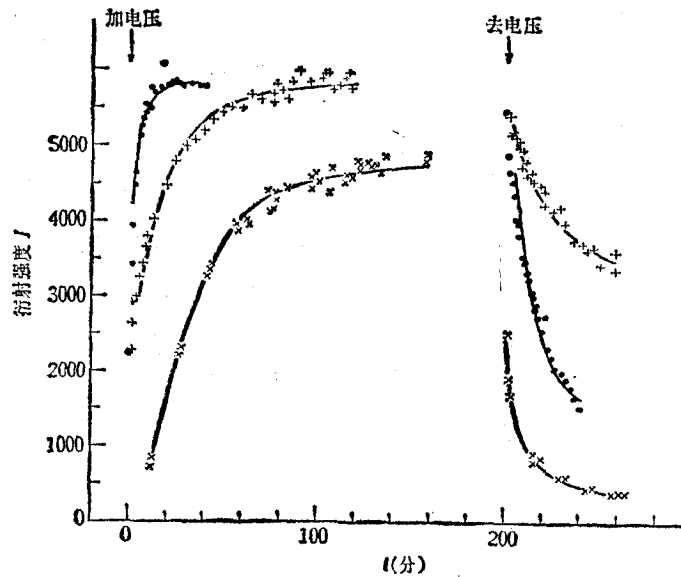


图 7 加上和撤去偏压后中子衍射强度的弛豫过程
● 为温度 71°C, 加异号 15V, 摇动曲线峰中心; + 为温度 53°C, 加异号 15V, 摇动曲线峰中心; × 为另一样品, 加同号 105V, 双晶衍射摇动曲线峰边缘部位

在同样温度下, 对加上和撤去异号电压, 光衍射趋于稳定所需时间比同号电压情形较短, 对于表观介电常数, 刚好相反, 加同号电压, 弛豫过程更为迅速.

α -LiIO₃ 在静电场作用下的中子衍射增强, 表观介电常数增大和光衍射增强, 都对应于荷电点缺陷在电场作用下于宏观尺度的缺陷处富集. 只要有一部分宏观尺度的缺陷被空间电荷缀饰就能引起介电常数增大和中子衍射增强. 但要引起光衍射增强, 必须大部分准周期层状缺陷被空间电荷缀饰以形成空间光栅. 所以前两者的弛豫行为相同, 但它们不同于光衍射增强的弛豫行为.

由第三节知, 低温下光衍射强度变化的弛豫时间是非常长的. 在图 4 中的 b, d 曲线上的数据的测量中, 把二十分钟内基本不变的衍射强度作为该温度下的 I 的稳定值是不够妥当的. 但在每一点上等待 I 真正达到平衡值后再测量是无法办到的. 因为费时过长, 实验条件难于在如此之长的时间内保持稳定. 此外, 温度变化速率的不同, 以及测温点选取部位不同, 都会影响图 4 曲线形状, 它只是给出定性行为. 它只不过是低温下光衍射增强现象的弛豫时间过于长, 点缺陷运动的迁移率过小的另一种表现形式.

光衍射增强的“低温冻结”现象意味着,低温下离子和缺陷的迁移率非常小,因此低温下加电场不能使离子在准周期缺陷处富集;而高温下加电场然后降至低温,则高温时富集于准周期层状缺陷处的离子基本上保持了下来。

图 4 中的曲线 a 和 d 在接近摄氏零度时仍不相交。其主要原因是: 1. 整个实验时间长达近七十小时,在此期间,激光源强度,模式及整个光路很难保证完全不变; 2. 我们用的是金电极,导电过程也是一种电解过程^[4],长时间通电对电极面附近晶体性质会产生较大的影响; 3. α -LiIO₃ 单晶在静电场作用下光衍射增强所对应的微观过程是晶体中无规分布的点缺陷变成带有规律性的分布^[3],切断电压后,又恢复无规分布,它和原来的无规分布不一定完全相同,特别是考虑到原因 2 的影响更是如此。

参 考 文 献

- [1] 麦振洪,物理学报,24(1975),385.
- [2] 顾本源等,物理学报,26(1977),293;第五期插页.
- [3] “静电场作用下空间电荷对 α -LiIO₃ 单晶准周期层状缺陷的缀饰——透射光衍射增强现象”,中国科学,待发表.
- [4] “静电场作用下 α -LiIO₃ 单晶中衍射增强现象的理论解释”,物理学报,待发表.
- [5] 杨楨等,物理学报,24(1975),6.
- [6] 中国科学院原子能研究所 α -磷酸锂研究小组,物理学报,25(1976),130.
- [7] 李铁城、许政一,物理学报,26(1977),500.
- [8] 许政一,物理学报,27(1978),700.
- [9] 中国科学院物理研究所 α -磷酸锂晶体研究小组,物理,1(1972),28.
- [10] 赵世富,“一种简便而稳定的用于光学和电学实验的恒温器”,物理,待发表.
- [11] 朱镛等,物理学报,26(1977),115.

RELAXATION BEHAVIORS OF THE LIGHT DIFFRACTION INTENSITY AND RELATED “FREEZING” EFFECT AT LOW TEMPERATURES OBSERVED IN α -LiIO₃ SINGLE CRYSTALS UNDER THE ACTION OF AN ELECTROSTATIC FIELD

ZHAO SHI-FU GU BEN-YUAN ZHANG AN-DUNG XU ZHENG-YI

(*Institute of Physics, Academia Sinica*)

ABSTRACT

On the basis of our earlier work^[1,2], the relaxation behaviors of the light diffraction intensity induced by the distribution of space charge in α -LiIO₃ single crystals under the action of an electrostatic field have been investigated by using a space filter. The empirical expressions of the relaxation process were obtained. It was found that the parameters involved change with the temperature and from specimen to specimen, as well as depend both on the magnitude and the relative direction of the polarity of the crystal and the electrostatic field applied. When the temperature is lowered below a certain value ($\simeq -25^{\circ}\text{C}$), the enhancement diffraction intensity due to the applied field becomes not quite evident. When the electrostatic field is applied at a temperature higher than the “freezing” point and then the specimen is cooled to a temperature below the latter, the magnitude of diffraction intensity enhanced by the applied voltage at higher temperatures remains unchanged, it is so even after removing the voltage. This “freezing” effect is parallel to that observed in the enhancement of neutron diffraction intensity^[3].