

3. 掺杂对于载流子迁移性能的影响也可以由数据的对比得到一些结论。三种样品在各自较好的实验条件之下得到的载流子迁移率之间的关系为： $\text{Fe}0.15: \text{KLTN} > \text{Cu}0.25: \text{KLTN} > \text{Fe}0.03: \text{KLTN}$ ，这一关系我们可以这样理解： $\text{Fe}0.15$ 重量比掺杂晶体要强于 $\text{Fe}0.03$ 掺杂的载流子迁移率，可以解释为铁元素掺杂量越多，对 KLTN 晶体载流子迁移性能的提升越明显；铜元素 0.25 摩尔比掺杂经过换算相当于 0.03 重量比的掺杂，这就说明相同掺杂量之下，铜元素对 KLTN 晶体载流子迁移性能的提升强于铁元素的作用。这些结果与其他光折变实验中所得到的性能关系是相应的。

4.2.3 迁移率与外加电场的依赖关系

分析以上实验得到的 TOF 信号，可以看出它们都是按指数的趋势下降的，这就表明 KLTN 晶体材料中存在深陷阱。在深陷阱存在的情况下与外加电场有关的一个模型被称为 Poole-Frenkel 效应^[42]，它描述的是载流子的电离能在外加电场库仑势作用下的降低，从这个理论中得到的载流子迁移率与温度、电场的关系式为：

$$\mu(E, T) = \mu_0 \exp \left[\frac{\beta E^{\frac{1}{2}}}{k_B T} \right] \quad (4-4)$$

这个关系式被称为 Poole-Frenkel 公式，对这个公式两边取 $\ln$ 就可以得到以下的表达式：

$$\begin{aligned} \ln \mu &= \ln \mu_0 + \frac{\beta E^{\frac{1}{2}}}{k_B T} \\ &= \ln \mu_0 + \alpha E^{\frac{1}{2}} \end{aligned} \quad (4-5)$$

其中， $\alpha = \frac{\beta}{k_B T}$ 。由式(4-5)可见，载流子迁移率与外加电场之间应该存在

$\ln \mu \sim E^{\frac{1}{2}}$ 的关系，也就是说，外加电场的平方根应与其对应的载流子迁移率之间存在线性关系，从中我们可以分析它们之间这一关系的走势，并可以确定漂移速度，即未加电场时载流子的迁移速度等信息。

分析 $\text{Fe}0.03: \text{KLTN}$ 晶体的空穴与电子载流子迁移率与外加电场的变化关

系，可以得到如图 4-9 所示的结果。而对于 Fe0.15: KLTN 晶体，Cu0.25: KLTN 晶体两实验样品，载流子迁移率与外加电场的变化关系为图 4-10 和图 4-11 所示：

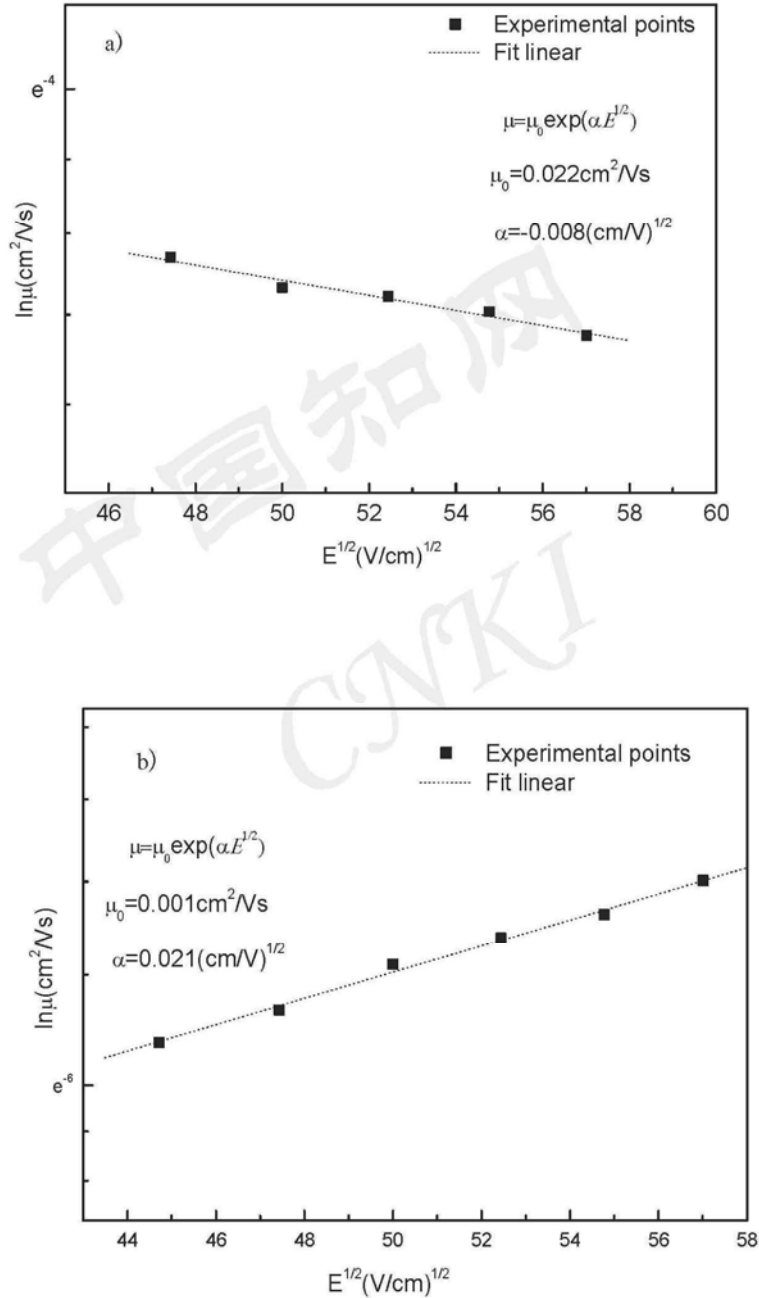


图 4-9 Fe0.03: KLTN 晶体载流子迁移率随电场的变化关系 a)空穴 b)电子

Fig. 4-9 Fe0.03: KLTN carrier mobility versus field a) hole b) electron

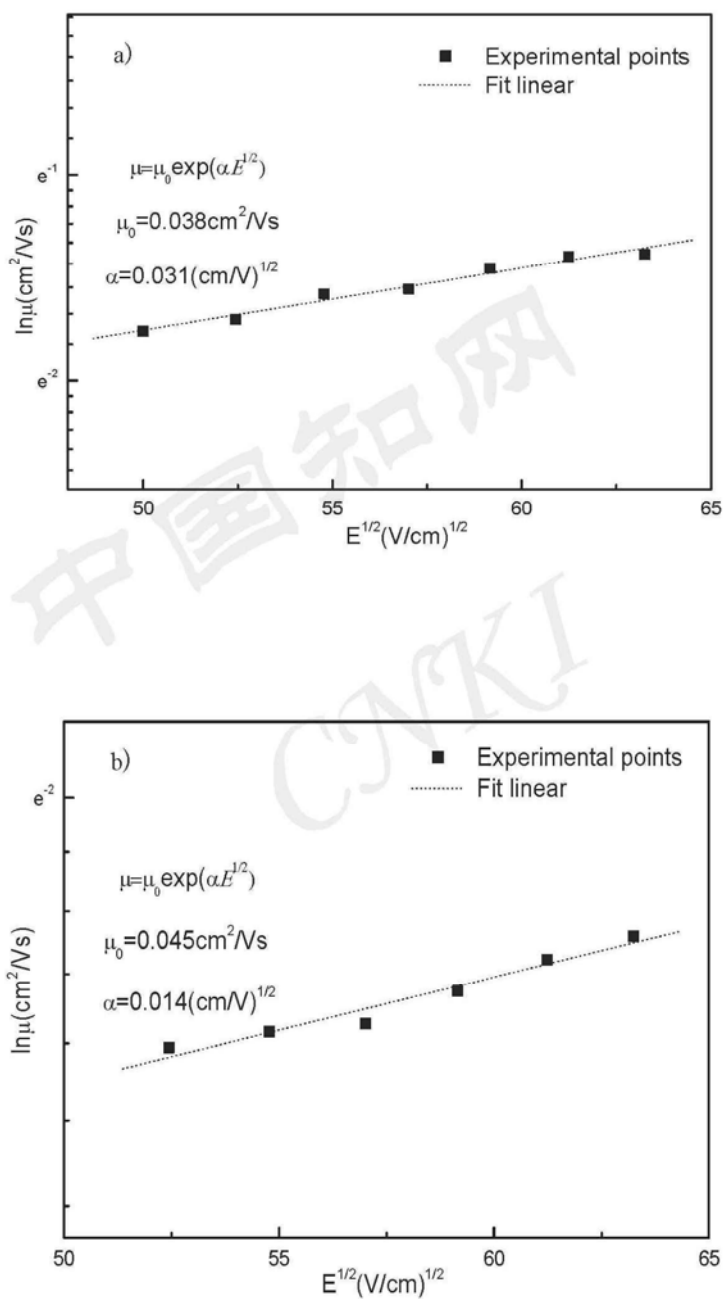


图 4-10 Fe_{0.15}: KLTN 晶体载流子迁移率随电场的变化关系 a)空穴 b)电子

Fig. 4-10 Fe_{0.15}: KLTN carrier mobility versus field a) hole b) electron

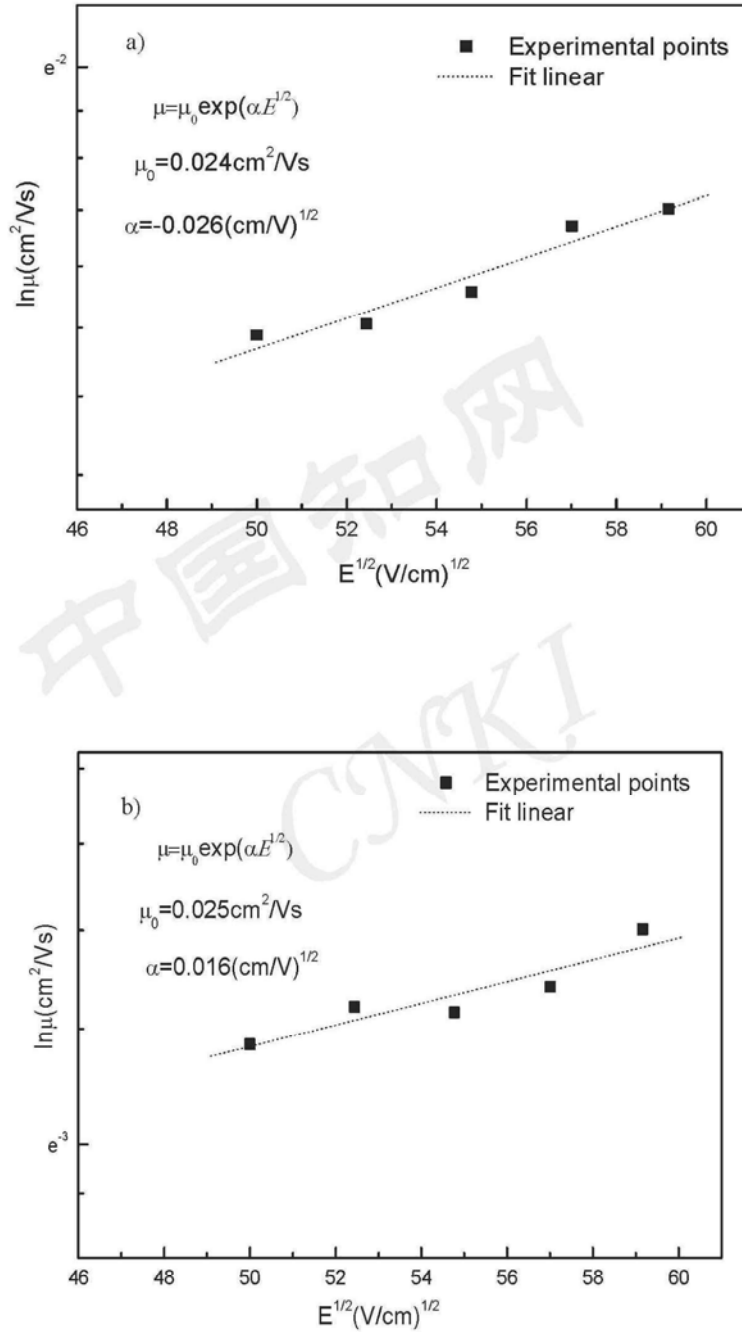


图 4-11 Cu_{0.25}: KLTN 晶体载流子迁移率随电场的变化关系 a)空穴 b)电子

Fig. 4-11 Cu_{0.25}: KLTN carrier mobility versus field a) hole b) electron

从以上的实验结果，我们可以推出零场时的扩散迁移率 μ_0 的值如表 4-6 所

示, 以及载流子迁移过程中的性能常数。

表 4-6 KLTN 晶体空穴和电子的扩散迁移率

Table 4-6 Hole and electron μ_0 of KLTN crystal

样品	空穴扩散迁移率 $\mu_0(\text{cm}^2/\text{V}\cdot\text{s})$	电子扩散迁移率 $\mu_0(\text{cm}^2/\text{V}\cdot\text{s})$
Fe0.03wt%掺杂 KLTN	0.022	0.001
Fe0.15wt%掺杂 KLTN	0.038	0.045
Cu0.25mol%掺杂 KLTN	0.024	0.025

图中电场的开平方与迁移率之间的线性关系在很多的 TOF 实验中都有所体现, 这可以充分验证我们的实验方法的正确性。通常情况而言, 二者之间呈正的线性关系, 但有时也会存在迁移率随电场的增加减小的情况。

对于这些现象, 我们可以利用 Bassler 等人^[43]提出的无序理论进行解释。无序理论认为, 现实的晶体材料并非完美, 其中不可避免地存在着能量无序或缺陷, 也就是说跳跃点之间存在着能量的涨落。当载流子在这些存在着无序和缺陷的跳跃点组成的点阵中跳跃时, 它们每跳一次所能到达的距离, 都是不相同的。Poole-Frenkel 效应描述的是载流子的电离能在外加驱动电场作用下降低的情形, 也可以描述为外加电场给载流子提供的能量使得无序状态中的能量涨落变得越来越小, 或者说所有载流子每次跳跃所能跳过的最远距离趋于一致。这就使得在外加电场增加的过程中, 载流子的迁移率会先增加, 然后当达到某一个电场强度时, 载流子在这些跳跃点阵中能量无序的影响趋于一致, 使得载流子平均迁移率的大小不再发生变化, 甚至会减小。但是在其他材料中是否都会出现这种现象, 还需要在以后的实验中进行验证。

4.3 本章小结

本章在找到适宜的 TOF 实验条件的基础上, 探测了 KLTN 掺杂晶体在光激发过程中所获得的光电流信号, 并给出了由 Scher-Montroll 模型所确定的渡越时间随它们变化的关系曲线。通过分析可以看出, RC 电路会对 TOF 波形产生较大的影响, 表现为外电路的 RC 响应时间越小, 所得到的载流子的渡越时间就越准确, 在样品电容已经确定的前提之下, 我们采用的减小取样电阻值的办法进行实验。

在确定了合适的实验条件后，对这四种 KLTN 晶体材料的空穴及电子迁移率的值进行了计算，对它们进行了对比分析。最后分析了迁移率与外加电场的依赖关系，发现绝大多数情况下，二者有较好的线性依赖关系，同时也对特殊的情况进行了解释。

中国知网
CNKI

结 论

本论文采用渡越时间 Time-of-Flight 的方法对钽铌酸钾锂晶体及其掺杂晶体的载流子迁移过程进行研究, 得到以下结论:

1. 利用 TOF 方法测量得到 Fe0.03: KLTN 晶体在 300V/mm 时, 空穴载流子的迁移率为 $\mu_h=1.45\times 10^{-2} \text{ cm}^2/\text{V}\cdot\text{s}$, 电子载流子的迁移率为 $\mu_e=0.325\times 10^{-2} \text{ cm}^2/\text{V}\cdot\text{s}$, 这一试验平台也适用于其他晶体材料载流子迁移性能的测试, 具有很好的通用性。
2. 在相同的实验条件下, 取样电阻越小, 所得到的渡越时间就越短且越趋于稳定。可见系统 RC 电路的响应时间越短, 得到的载流子迁移率的结果就越准确。
3. 由于空穴载流子相对于电子载流子具有更高的迁移率, 可以判定, KLTN 系晶体的主要载流子是空穴, 但也有电子载流子的存在。
4. 三种样品的载流子迁移率之间的关系为: Fe0.15: KLTN>Cu0.25: KLTN>Fe0.03: KLTN, 可见, 铁元素掺杂量越多, 对 KLTN 晶体载流子迁移性能的提升越明显; 相同掺杂量之下, 铜元素对 KLTN 晶体载流子迁移性能的提升强于铁元素的作用。
5. 载流子迁移率的自然对数值与外加电场平方根的变化关系呈近似于线性关系, 从中可以推知在不加电场的情况之下, 样品所具有的扩散迁移率。

目前的工作只是对 KLTN 晶体材料载流子迁移性能最基本的讨论, 这一领域还有许多方面值得研究, 例如载流子迁移性能与温度之间的依赖关系、材料陷阱能级对迁移性能的影响等等, 都值得在未来的工作中继续探索。

参考文献

- 1 V. A. Trepakov, L. Jastrabik, S. Kapphan, E. Giulotto, A. J. Agranat. Phase Transitions, Related Properties and Possible Applications of $(K,Li)(Ta,Nb)O_3$. *Opt.Mater.* 2002, 19(1): 13~21
- 2 Gumennik, H. Iian, R. Fathei, A. Israel, A. J. Agranat, I. Shachar, M. Hass. Design Methodology of Refractive Index Engineering by Implantation of High-energy Particles in Electro-optic Materials. *Appl. Opt.* 2007, 46(19): 4132~4137
- 3 A. Ashkin, G. D. Boyd, J. M. Dziedzic, R. G. Smith. Optically-Induced Refractive Index Inhomogeneities in $LiNbO_3$ and $LiTaO_3$. *Appl.Phys.Lett.* 1966, 9(1): 72~74
- 4 F. S. Chen, J. T. Lamacchia, D. B. Fraser. Holographic Storage in Lithium Niobate. *Appl.Phys. Lett.* 1968, 13(7): 223~225
- 5 D. L. Staebler, J. J. Amodej. Coupled-wave Analysis of Holographic Storage in $LiNbO_3$. *J. Appl. Phys.* 1972, 43(3): 1042~1049
- 6 N. V. Kukhtarev, V. B. Markov, S. G. Odulov, M. S. Soskin, V. L. Vinetskii. Holographic Storage in Electrooptic Crystals. *Ferroelectrics.* 1979, 22(3-4): 949~960
- 7 J. Feinberg, D. Heiman, A. R. Tanguay, Jr., and R. W. Hellwarth. Photorefractive Effects and light-induced Charge Migration in Barium Titanate. *J.Appl. Phys.* 1980, 51(3): 1297~1305
- 8 R. Hofmeister, A. Yariv, A. Agranat. Growth and Characterization of the Perovskite Postassium Lithium Tantalate Niobate(KLTN). *J. Crys. Growth.* 1993, 131: 486~494
- 9 A. Agranat, R. Hofmeister, A. Yariv. Characterization of a New Photorefractive Material: $K_{1-y}Li_yTa_{1-x}Nb_xO_3$. *Opt. Lett.* 1992, 17(10): 713~715
- 10 X. L. Tong, M. Zhang, A. Yariv, A. Agranat, R. Hofmeister, V. Leyva. Near Infrared Absorption and Dark Conductivity of $K_{1-y}Li_yTa_{1-x}Nb_xO_3$ Crystal. *Appl. Phys. Lett.* 1996, 69(4): 479~481
- 11 B. Pesach, E. Refeali, A. J. Agranat. Investigation of the Holographic Storage Capacity of Paraelectric $K_{1-x}Li_xTa_{1-y}Nb_yO_3$. *Opt. Lett.* 1998, 23(8): 642~644
- 12 H. Ilan, A. Gumennik, G. Perepelitsa, A. Israel, A. J. Agranat. Construction of an Optical Wire Imprinted in Potassium Lithium Tantalate Niobate by He^+ Implantation. *Appl. Phys. Lett.* 2008, 92: 191101
- 13 J. Y. Wang, Q. C. Guan, Y. G. Liu, J. Q. Wei. Photorefractive Properties and Self-pumped Phase Conjugation of Tetragonal Fe-doped $KTa_{1-x}Nb_xO_3$ Crystal. *Appl. Phys.Lett.* 1992, 61(23): 2761~2763
- 14 H. Tian, Z. X. Zhou, D.W. Gong, H. F. Wang, Y. Y. Jiang, C. F. Hou. Photorefractive Properties of Paraelectric Potassium Lithium Tantalate Niobate Crystal Doped with Iron. *Optics Communications.* 2008, 281: 1720~1724

- 15 H. Tian, Z.X. Zhou, D.W. Gong, H.F. Wang, D. J. Liu, Y.Y. Jiang. Growth and Optical Properties of Paraelectric $K_{1-y}Na_yTa_{1-x}Nb_xO_3$ Single Crystals. *Appl. Phys. B.* 2008, 91: 75~78
- 16 R. Grousseau, M. Henry, S. Mallick, and S. L. Xu. Measurement of Bulk Photovoltaic and Photorefractive Characteristics of Iron Doped $LiNbO_3$. *J. Appl. Phys.* 1983, 54(6): 3012~3016
- 17 R. Grousseau, M. Henry, S. Mallick, and S. L. Xu. Transport Properties of Photoelectrons in $Bi_{12}SiO_{20}$. *J. Appl. Phys.* 1984, 56(1): 224~229
- 18 R. A. Mullen, R. W. Hellwarth. Optical Measurement of The Photorefractive Parameters of $Bi_{12}SiO_{20}$. *J. Appl. Phys.* 1985, 58(1): 40~44
- 19 M. D. Ewbank, R. R. Neurgaonkar, W. K. Cory. Photorefractive Properties of Strontium Barium Niobate. *J. Appl. Phys.* 1987, 62(2): 374~380
- 20 S. L. Hou, R. B. Iauer, R. E. Aldrich. Transport Processes of Photoinduced Carriers in $Bi_{12}SiO_{20}$. *J. Appl. Phys.* 1973, 44(6): 2652~2658
- 21 Tayag, T. J., Batchman, T. E., Sluss, J. J., Jr. Electric-field Dependence of the Photocarrier Hopping Mobility in Bismuth Silicon Oxide. *J. Appl. Phys.* 1994, 76(2): 967~973
- 22 J. P. Partanen, P. Nouchi, J. M. C. Jonathan, R. W. Hellwarth, Comparison between Holographic and Transient-Photocurrent Measurements of Electron Mobility in Photorefractive $Bi_{12}SiO_{20}$. *Phys. Rev. B.* 1991, 44(4): 1487~1491
- 23 P. Nouchi, J. P. Partanen, R. W. Hellwarth, Simple Transient Solutions for Photoconduction and the Space-Charge Field in a Photorefractive Material with Shallow Traps. *Phys. Rev. B.* 1993, 47(23): 15581
- 24 H. Antoniadis, B. Rhsieh, M. A. Abkowitz. Charge Transfer from Poly (p-phenylenevinylene) into Molecularly Doped Polymer. *Appl. Phys. Lett.* 1993, 62(24): 3167~3169
- 25 L. B. Lin, S. Ajenekhe, P. M. Borsenberger. High Electron Mobility in Bipolar Composites of Organic Molecules. *Appl. Phys. Lett.* 1996, 69(23): 3495~3497
- 26 赵凯华, 钟锡华. 光学(下). 北京大学出版社, 1982: 228~229
- 27 D. B. Loom, S. W. S. McKeever, Trapping of Photocarriers in Ga-doped $Bi_{12}GeO_{20}$ at 80 K, *J. Appl. Phys.* 1995, 77(12): 6511~6520
- 28 J. J. Jr. Sluss, T. J. Tayag, T. E. Batchman, Effects of Impurities on Photocarrier Mobility in $Bi_{12}SiO_{20}$. *IEEE Proceedings J (Optoelectronics)*. 1992, 139(5): 357~360
- 29 刘思敏, 郭儒, 许京军. 光折变非线性光学及其应用. 科学出版社 2004: 2~3
- 30 李铭华, 杨春辉, 徐玉恒. 光折变晶体材料科学导论. 科学出版社, 2003: 21~22
- 31 D. B. Loom, S. W. S. McKeever. Temperature Dependence of Electron Mobility in $Bi_{12}GeO_{20}$ and $Bi_{12}SiO_{20}$ Using the Time-of-Flight Technique. *J. Appl. Phys.* 1997, 82(1): 249~258

- 32 H. Scher, E. Montroll, Anomalous Transit-Time Dispersion in Amorphous Solids, *Phys. Rev. B.* 1975, 12(6): 2455~2477
- 33 F. W. Schmidlin, Theory of Trap-Controlled Transient Photoconduction, *Phys. Rev. B.* 1977, 16(6): 2362~2385
- 34 A. Ennouri, M. Tapiero, J. P. Vola, and J. P. Zielinger, Determination of the Mobility and Transport Properties of Photocarriers in $\text{Bi}_{12}\text{GeO}_{20}$ by the Time-of-Flight Technique, *J. Appl. Phys.* 1993, 74(4): 2180~2191
- 35 C. Longeaud, C. Main, Deconvolution of the Transient Photocurrent Signals: Application to the Study of the Density of States of a BTO crystal, *Journal of Physics-Condensed Matter*, 2008, 20: 135217
- 36 Masahiro Kotani, Koji Kakinuma, Masafumi Yoshimura, Kouta Ishii, Charge Carrier Transport in High Purity Perylene Single Crystal Studied by Time-of-Flight Measurements and Through Field Effect Transistor Characteristics, *Chemical Physics*, 2006, 325: 160~169
- 37 J. Pflaum, J. Niemax, A. K. Tripathi, Chemical and Structural Effects on the Electronic Transport in Organic Single Crystals, *Chemical Physics*, 2006, 325: 152~159
- 38 F. Fujita, Y. Oshiki, J.H. Kaneko, A. Homma, K. Tsuji, K. Meguro, Y. Yamamoto, Development of a TOF Measurement System of Charge Carrier Dynamics in Diamond Thin Films Using a UV Pulsed Laser, *Diamond & Related Materials*, 2006, 15: 1921~1925
- 39 C. Longeaud, H. Belgacem, C. Douay, Density of states in $\text{Bi}_{12}\text{TiO}_{20}$ from time-of-flight measurements, *Journal of Physics-Condensed Matter*, 2007, 19: 476202
- 40 M. Onoda, K. Tada, K. Miyabe, Transport Phenomena of Poly (3-octadecylthiophene) at the solid-liquid phase transition, *Synthetic Metals*, 2005, 153:173~176
- 41 T. Kreouzis, K. Scott, K.J. Donovan, N. Boden, R.J. Bushby, Enhanced electronic transport properties in complementary binary discotic liquid crystal systems, *Chemical Physics*, 2000, 262: 489~497
- 42 S, B, Lee, T. Yasuda, M. J. Yang, et al. Charge Carrier Mobility in Vacuumsublimed Dye Films for Light-emitting Diodes Studied by The Time-of-flight Technique, *Molecular Crystals And Liquid Crystals*. 2003, 405: 67-73
- 43 H. Bässler, Excitonic Model versus Band Gap Model in Organic Materials: Theory. *Encyclopedia of Materials: Science and Technology*. 2008, 2825~2829

攻读学位期间发表的学术论文

- 1 Zhongxiang Zhou, Yang Li, Hao Tian, Jun Li, Yuqiang Liu, Yanqiang Yang, Photocarrier transport in iron-doped potassium lithium tantalate niobate studied by time-of-flight measurements. Optics Communications. 2009, 282: 2624~2627(SCI 收录号: 10.1016/j.optcom.2009.03.039, IF=1.552)
- 2 Yang Li, Zhongxiang Zhou, Hao Tian, Jun Li, Yuqiang Liu, Yanqiang Yang, Photocarrier transport and time of flight measurements in iron-doped potassium lithium tantalate niobate. The International Conference on Nanophotonics 2009. harbin, 2009: 190

哈尔滨工业大学硕士学位论文原创性声明

本人郑重声明：此处所提交的硕士学位论文《钽铌酸钾锂晶体载流子迁移性能研究》，是本人在导师指导下，在哈尔滨工业大学攻读硕士学位期间独立进行研究工作所取得的成果。据本人所知，论文中除已注明部分外不包含他人已发表或撰写过的研究成果。对本文的研究工作做出重要贡献的个人和集体，均已在文中以明确方式注明。本声明的法律结果将完全由本人承担。

作者签名：李杨

日期：2009年7月1日

哈尔滨工业大学硕士学位论文使用授权书

《钽铌酸钾锂晶体载流子迁移性能研究》系本人在哈尔滨工业大学攻读硕士学位期间在导师指导下完成的硕士学位论文。本论文的研究成果归哈尔滨工业大学所有，本论文的研究内容不得以其它单位的名义发表。本人完全了解哈尔滨工业大学关于保存、使用学位论文的规定，同意学校保留并向有关部门送交论文的复印件和电子版本，允许论文被查阅和借阅，同意学校将论文加入《中国优秀博硕士学位论文全文数据库》和编入《中国知识资源总库》。本人授权哈尔滨工业大学，可以采用影印、缩印或其他复制手段保存论文，可以公布论文的全部或部分内容。

本学位论文属于（请在以上相应方框内打“√”）：

保密□，在 年解密后适用本授权书

不保密 ☒

作者签名：李杨

日期：2009年7月1日

导师签名：李杨

日期：2009年7月1日

致 谢

两年如白驹过隙，我的硕士生涯又将结束，论文写到尾声时心中已充满留恋，在工大已经度过了六年，在物理系这个大家庭里也经历了五年的青春，在人生的这一个小段落的节点处，我有太多太多的感谢要献给身边的人们。

首先要感谢的是我的导师姜永远教授，两年来，姜老师在我的论文进行过程中给了我很大的帮助，研一时的课以及实验指导都对我的课题以及实验起到了至关重要的作用；生活上姜老师也给了我很多的指导以及照顾，这些都将是受用的财富。

我要感谢周忠祥教授，从本科开始，周老师就是一位和蔼而又不失严谨的好老师，无论学习、生活还是工作，我都可以从周老师这里得到中肯的建议，他对学生的理解和支持是无私的，他严谨勤奋的治学态度以及坦荡的为人也是学生学习的目标。

另外还要感谢的是陈历学教授对我的指导和帮助，感谢孙秀冬教授，侯春风教授，孟庆鑫副教授，宫德维副教授。我的硕士论文的完成也必须感谢杨延强教授以及刘玉强老师在 TOF 实验上给我的莫大帮助，感谢吕喆教授在介温谱测试实验中的帮助和指导，感谢张锐教授无私的将其组内的实验室以及仪器借用，有了以上老师的无私帮助我的论文工作才得以顺利的完成。

这里还要感谢的是师兄师姐们，田浩，信江波，刘大军，王海峰，申艳青，杨文龙，李磊，杜艳伟等，还要特别感谢凝聚态中心的王竹师兄，项阳师姐，魏波师兄，他们都给了我很大帮助。同届同学以及师弟师妹们，包括刘颖、王云、王莹、杨泽超、段倩倩等同学也给了我很多的支持。

最后，我要感谢我的家人，父母亲以及李均同学，是他们陪伴我走过最艰难的日子，一直鼓励我，给我力量，我会永远铭记。

硕士生涯已告一段落，我还有很长的路要走，在学习这条路上我会更加努力，坚持，永不放弃！