

利用冬季气温较低的特点来进行，而对于需在室温以上进行的实验，我们自行制作了一个具有温控功能的样品盒，其温控范围为室温到 40℃左右，精度在 2℃，基本可以满足实验的要求。

另外，由测得电容数据，我们可以大体确定所应选择的取样电阻的范围。由于晶体材料的渡越时间多为百到千微秒的量级^[27]，为保证 RC 电路所测得的数据精确，必须满足：

$$RC \ll T_r \quad (2-3)$$

即电路的响应时间要远小于晶体的渡越时间^[28]，通常假定外电路中的电容只来自样品本身，则每个样品在进行测试时所应选择的取样电阻范围列于表 2-3 中：

表 2-3 晶体样品可选用的取样电阻范围

Table 2-3 available scale of load resistor lined with crystal sample

编号	样品	电容(nF)	取样电阻(kΩ)
1#	纯 KLTN	0.23	<500
2#	Fe0.03wt%掺杂 KLTN	1.455	<70
3#	Fe0.15wt%掺杂 KLTN	1.225	<80
4#	Cu0.25mol%掺杂 KLTN	1.916	<50

在实验的过程中，参数的设置会依照以上的结果进行，以保证 TOF 实验所得到的渡越时间值的正确性以及精确度。

2.5 本章小结

本章介绍了 KLTN 晶体实验样品的准备工作，包括生长、切割、抛光等过程。介绍真空镀膜技术以及磁控溅射镀膜机的使用，给出金膜的导电、通光的情况。给出晶体样品吸收光谱的测定过程与最终结果，并确定了可用的激励光波长。进行了晶体样品介温谱的测试，并给出测试结果，包括居里温度以及电容等信息，确定了实验中可以选择的取样电阻的范围。

本章的内容是为样品载流子输运性质的测试做准备的工作，对能否得到真实、准确的实验结果有至关重要的作用。

第3章 载流子迁移机制以及 TOF 实验系统

3.1 引言

光折变效应于 1966 年被首次发现,随后人们对这种效应的物理机制进行了深入的研究, Kukhtarev 等人在综合前人的理论模型的前提之下,提出了带输运模型,概括了光折变效应的物理过程,给出了光折变效应的一组动力学方程。模型中,假定所有的施主占据同一个深能级,施主中心通过吸收光而发生电离,产生电子空穴对,其中的主要载流子被激发至导带,可通过扩散或漂移或光生伏打效应在导带中运动。当光电子迁移至暗区时,被该处的陷阱复合,它们亦可以再次被激发,而后再次复合,最终形成空间电荷的分离^[29]。该理论较为全面地分析了光折变效应的微观过程,是后期从事光折变研究时普遍认同的理论模型。

然而带输运模型并不能给出该过程中的载流子迁移率的直接计算方法,这就造成目前对于载流子迁移性能的测试多采用间接的光学测量方法,测试系统比较复杂,却仍旧无法直接得到材料载流子迁移的动力学信息,从这个角度而言,对于光折变材料载流子迁移过程进行直接测试的研究就尤为重要。

3.2 载流子迁移机制

晶体中的杂质、缺陷和空位是光激发载流子的主要来源。从能级结构来看,它们在晶体的禁带中形成局域能级,充当施主与受主的角色。因此,晶体中杂质成分与掺杂浓度对光折变效应至关重要。

在光折变材料中有三种不同机制影响光激发自由载流子的迁移:扩散、漂移和光生伏打效应^[30]。

3.2.1 扩散

在正弦型分布光场的激发下产生的电离施主和自由电荷载流子开始呈现与光强相似的浓度分布。假设自由电荷载流子是以电子作为例子,在线性激发下,光强较强的位置比在光强弱弱的暗处产生密度相对高的电子,由于电子浓度分布的不均匀性,而引起扩散,这种扩散迁移使得在弱光区积累多余的电子,

而在强光区留下多余的正电荷。

3.2.2 漂移

光折变晶体中光激发电荷载流子,除因浓度分布不均匀引起扩散迁移外,若存在外加电场,它们还会沿外电场方向漂移。漂移和扩散足以说明在顺电相晶体中以及高光电导体中的光折变效应。本课题中所研究的钽铌酸钾锂晶体中的光生载流子迁移机制就属于此类情况,在情况分析的时候要充分考虑样品的特性,并对实验条件加以调整。

3.2.3 光生伏打效应

电光晶体在无电场情况下,受均匀光照射也可以产生光电流,这种光电流的起因是光激电子进入导带后,自由载流子沿极轴方向为最可能的运动方向,此外,在不同方向上电子的俘获与离子的位移是各向异性的,也可以产生光电流。

从微观上分析,光生伏打效应起因于电子的跃迁几率和电子的自由程沿极化方向具有某种不对称的缘故,表现为非对称电荷输运及激活离子沿晶体极轴方向位移所致。也就是说,这种载流子输运机制只出现于非中心对称结构晶体中,而对于本课题中所研究的 KLTN 系晶体,在居里点以上时具有中心对称结构,故在实验数据分析时可以不考虑光生伏打效应对载流子迁移的影响,而只计算扩散和漂移所产生的效应。

3.3 晶体内的缺陷及陷阱对载流子的影响

假定所有电荷在理想晶体中以平面波形式传播,同时电路的响应时间又可以忽略不计,光电流脉冲应该是像一个矩形的形貌,当光生载流子在样品中消失时,理想的情况之下所测得光电流脉冲信号会在这个时候有一个急剧的下降,与下降的时间相对应的就是通常所称的载流子的渡越时间。

而在实际情况之下,电路的响应时间不可能达到零,此时光电流脉冲会以一个幂指数形式衰减而结束。如图 3-1 就是一个典型的 TOF 光电流信号。除了曲线的平直部分,在这张图中,在曲线的起始处,会有一个急剧的下降,曲线的尾巴部分也会变宽。曲线中尾巴部分比幂指数形式的衰减还要长的原因可以由陷阱的存在来解释。当陷阱的浓度不是很高时,大部分载流子将会在平直部分漂移。如果材料中只有有限的陷阱,并假设陷阱密度分布均匀,则在迁移

过程中有一些载流子被陷阱所俘获，迁移电量减少，电流曲线向下倾斜而偏离平台。陷阱越深，这一偏离就会越大。

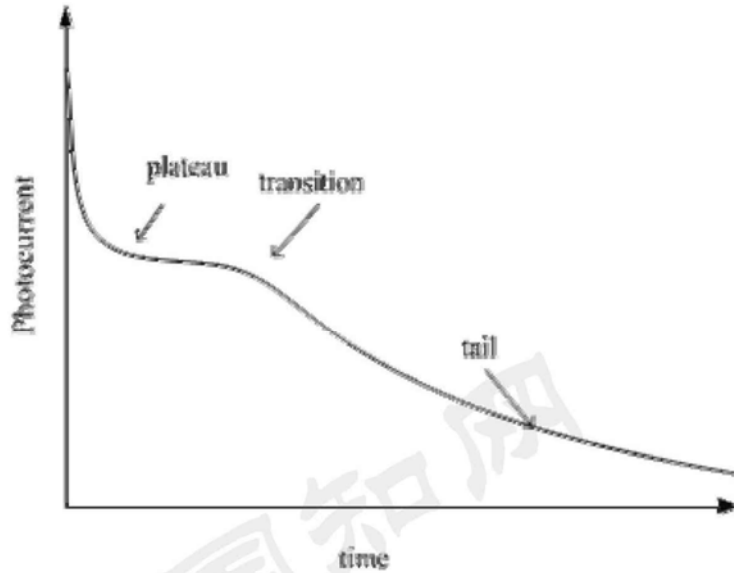


图 3-1 实际情况下一个典型的非弥散型光电流

Fig.3-1 Typical nondispersive photocurrent transient in practice

对于深陷阱来说，飞行时间中的电流曲线将以指数形式衰减，其中衰减常数 τ 称为被陷阱俘获寿命，它表征了载流子从激发产生到被陷阱俘获的平均迁移时间，这类光电流曲线所描述的弥散输运过程是本课题研究的重点。

陷阱的存在对载流子的迁移有直接的影响，很大程度上样品中深浅陷阱的存在与作用就决定了在实验过程中所能够得到的光电流信号，换言之，光电流信号可以表征样品内部所具有的陷阱情况。

首先定义漂移迁移率为 μ_d ，它是由全部的被激发的载流子引起的迁移率，其中包括导带中的载流子密度 n_c 和陷阱中的载流子浓度 n_t 。若定义 μ_0 为自由载流子在样品导带中的迁移率，则有：

$$(n_c + n_t) \mu_d = n_c \mu_0 \quad (3-1)$$

由式(3-1)直接推导，可得到 μ_d 的表达式为：

$$\mu_d = \frac{n_c}{n_c + n_t} \mu_0 \quad (3-2)$$

如果被复合的载流子浓度足够小，其浓度并没有使其过多的偏离它们的热

平衡，则被束缚的载流子与自由载流子浓度应满足以下关系：

$$\frac{n_t}{n_c} = \frac{N_t}{N_c} \exp\left(\frac{E_t}{k_b T}\right) \quad (3-3)$$

式中 N_t 是陷阱浓度， N_c 是导带中的有效态密度， E_t 是陷阱的能级， k_b 是玻尔兹曼常数， T 是温度。将式(3-3)代入(3-2)中，可以得到：

$$\mu_d = \mu_0 \left[1 + \frac{N_t}{N_c} \exp\left(\frac{E_t}{k_b T}\right) \right]^{-1} \quad (3-4)$$

由表达式(3-4)就可以理解，在温度较高的时候，再束缚是很快，此时 $n_t \approx 0$ ， $\mu_d \approx \mu_0$ ；而在低温的情况下，式中的第二项经过近似处理后，可得到：

$$\mu_d \approx \mu_0 \frac{N_c}{N_t} \exp\left(-\frac{E_t}{k_b T}\right) \quad (3-5)$$

也就是说，浅陷阱在高温下对 μ_d 无显著影响，测得的漂移迁移率接近自由载流子迁移率 μ_0 ；而在温度较低时使测得的迁移率会变小，因为在测得的渡越时间中增加了许多载流子落在陷阱中的时间。

若材料中存在深陷阱，很多载流子会被陷阱束缚住，同时载流子会对温度有一个更加复杂的依赖关系。如果深陷阱和浅陷阱对载流子运动的影响占统治地位，那么载流子会被陷阱束缚多次，甚至出现直接从一个陷阱跳跃到另一个陷阱的情况，在渡越过程中载流子也会不断地损失， N_c 不再保持常数，这种情况之下实验中会得到更加复杂的结果。一般情况之下，载流子迁移率会随电场强度的增加而增加，并随温度的升高而增加的幅度减小^[31]。

3.4 TOF 实验系统的搭建

上一章的内容已经为样品测试做好了准备的工作，在确定了样品的基本性质之后，就可以搭建 TOF 的实验系统，通过实验，探测 KLTN 晶体样品载流子迁移的情况。该方法的理论基础上文已经介绍，在这里可以进行简要的表述。

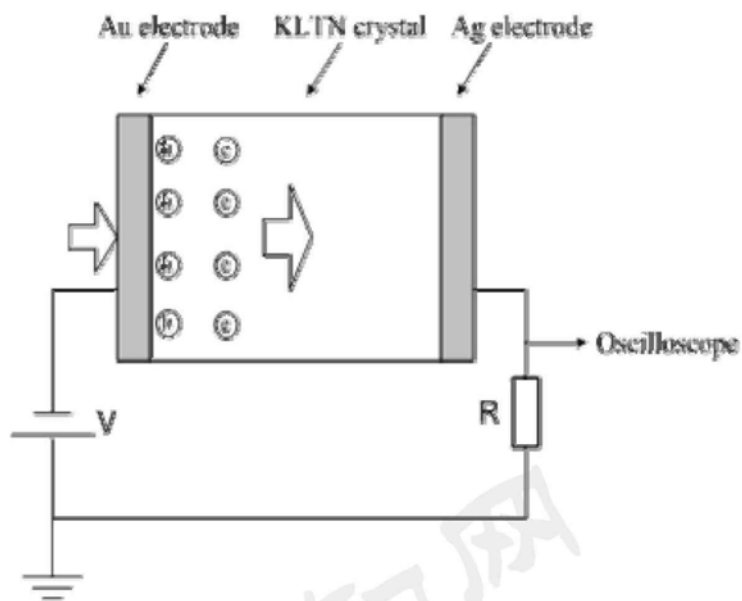


图 3-2 TOF 简易原理图

Fig.3-2 Simple elementary diagram of TOF system

如图 3-2 所示，脉冲激光器所发出的一个脉冲照射到样品前表面后，会在紧贴前表面的位置产生电子空穴对，这时在样品前后表面加一个适当的电场，电子与空穴中的某一种会被前表面电极复合，另一种就会在电场的作用之下穿过样品，向另一电极运动，载流子运动就会引起电流，由于这一电流很微小，不易观察，故在外电路中串联一个取样电阻，通过读取电阻两端的电压变化来得到回路中的电流。这个电流随时间的变化就能够反映出样品内部的陷阱情况，并且可以通过电流与时间的关系曲线得到样品内部载流子的渡越时间以及迁移率。

本文的第一章中已经提到，在使用 TOF 方法进行精密光生载流子探测时所应注意的事项，其中几项重要的实验设置将极大地影响实验结果的精确性，必须在实验系统设置时加以注意：

首先，由于载流子的寿命较短，为了得到较好的信号输出，所选择的激发光应具有较窄的脉冲，选择的频率也应较低，尽量保证每一次的脉冲激发不会对上一次的载流子迁移过程有所影响。通过查阅文献，发现硅酸铋系晶体与本课题中所研究的钽铌酸钾锂晶体同为光折变晶体，该类晶体渡越时间的典型值为百微秒，而整个迁移过程的时间跨度多为毫秒量级，在有关数值上具有借鉴意义。

其次，如果激发光的单脉冲能量过高，会产生整个晶体厚度上的电子空穴

对的激发，这时在测试时取得的光电流信号就不能准确表达样品的载流子输运能力，所以，为避免体激发的产生，我们应该采用较弱的单脉冲能量。

再者，由于整个取样电路是一个 RC 振荡电路的结构，通常假定电路中的电容来自样品，而电阻来自外部的取样电阻，显然为了得到准确的渡越时间，RC 远小于渡越时间 T_r 是必须满足的。

结合以上原因，实验设置上我们采用 532nm 的灯泵浦 YAG 固体激光器作为脉冲激发，单脉冲能量小于 $10\mu\text{J}$ ，脉宽小于 10ns，激光频率设定为 10Hz，取样电阻根据上一章中样品电容的测试已决定了大体范围，具体的选择将在试验中进行。

根据 TOF 实验的原理，结合 KLTN 晶体样品的特点考虑满足实验的条件，实验的光路设置如图 3-3 所示。总结组内其他人的工作，发现 KLTN 晶体主要以空穴载流子为主，所以在实验中主要测量它的空穴迁移率，同时也会考察其电子迁移的情况，以达到对比作用。故前表面的金电极接的电源正极，后表面的银金属电极接的电源负极。探测仪器是数字存储示波器，其与电脑连接同时进行检测和数据采集。

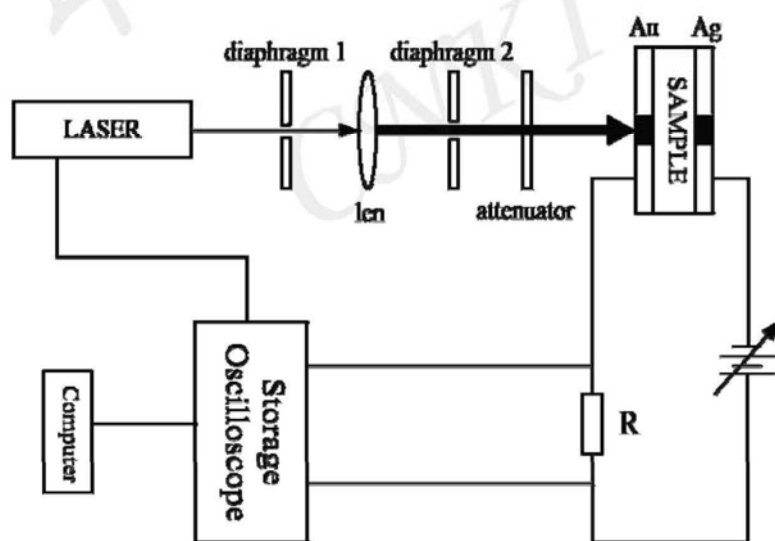


图 3-3 TOF 实验系统光路图

Fig.3-3 TOF experimental system setup

实验电路部分比较简单，依光路图搭好实验系统后，把样品的两个电极用导线引出来，连接上外电路即可，其中接线部分的实物图如图 3-4 所示：

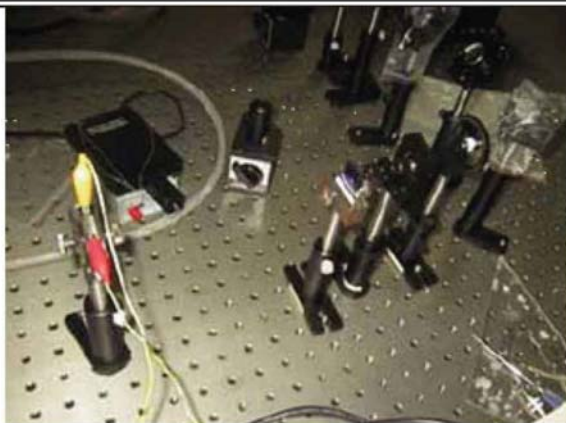


图 3-4 TOF 实验台照片

Fig.3-4 photo of TOF experimental table

下面是实验中所用到的主要仪器的一些参数和型号：

1. 激光器：北京中科思远光电科技有限公司生产，ZK—Laser Nd:YAG 固体调 Q 激光系统，
2. 稳压电源：北京大华生产的 DH1722A-6 型直流稳压稳流电源，调节范围 0~1000V，精度 0.1V。
3. 取样电阻 R：ZX21 型直流多值电阻箱，调节范围 0~ 100k Ω 。
4. 数字存储示波器：Tekronix 公司 TDS3034B 型数字存储示波器，四通道，带宽为 300MHz。
5. 光功率能量计：中科院生产的 LPE 激光功率能量计，分辨率为 1 μ J。
6. 温控：自行设计，室温~100 $^{\circ}$ C，精度为 2 $^{\circ}$ C。

光路中还使用到光阑，平行光调制器，以及可调能量衰减片和扩束透镜组等。

3.5 实验信号的提取和优化

实验系统搭建完毕、样品处理好之后，就可以开始进行 KLTN 晶体载流子迁移的探测。使用光脉冲能量计探测，设定激发光的单脉冲能量为 15 μ J，实验过程中分别测量每个样品的空穴和电子的迁移信号，分别改变外加电场到 200 V/mm、225V/mm、250V/mm 直到 500V/mm 规律变化，取样电阻同时有规律的变化。在以上这些不同的条件下进行测试，我们可以得到一些有规律的结果，便于讨论。

实验中，光脉冲打到样品上，样品固定于样品架上，先给样品加上几十伏

的电压，在电源关闭的情况下用万用电表测量样品电极与引线之间的电阻，要注意样品两个电极处是否与电路部分连接好，验证欧姆接触是否良好。

首先可以在数字示波器上观察到信号捕获的情况，将示波器置于捕获脉冲方式，调节外加电压的大小，并选择峰值测量，同时调整伏/格和秒/格刻度旋钮，为观察信号建立合适的垂直和水平刻度范围。

以 $\text{Fe}_{0.03}\text{:KLTN}$ 晶体样品在 $15\mu\text{J}$ 单脉冲能量， 300V/mm 外加电场， $20\text{k}\Omega$ 取样电阻的条件下得到的 TOF 信号为例，图 3-5 中所示的即为示波器上观察到的信号：

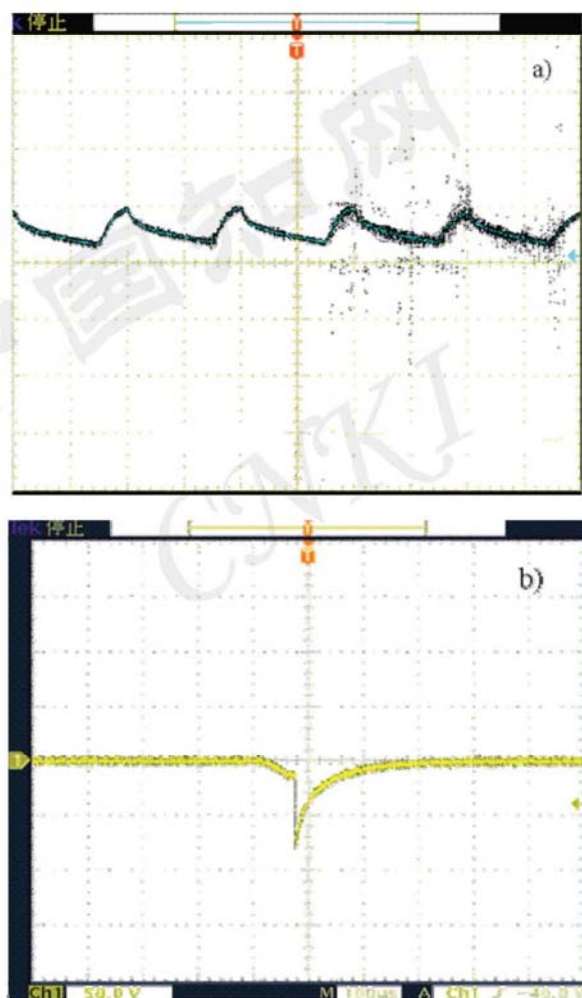


图 3-5 示波器上观察到的 TOF 信号 a) 空穴载流子 b) 电子载流子

Fig.3-5 TOF signal on the screen of oscillograph a) hole carrier b) electron carrier

从图中信号可以看出，无论空穴或者电子的传输信号，都按指数趋势下降的，这就表明该材料中存在着深陷阱。

用数字示波器找到信号后,在研究小光强和小电阻情况下的光电流曲线变化的过程中会使信号变得十分微弱,从数字示波器上已经无法得到良好信噪比的 TOF 信号,此时需要调节实验条件,例如外加电场、取样电阻、激发光能量、取样次数和触发次数以及取样门宽等参数,直到采到良好信噪比的波形为止。

在适宜的实验参数范围之内,固定外加电压和脉冲光的能量,测量 TOF 光电流信号随取样电阻值的变化;固定取样电阻值和脉冲光的能量,测量 TOF 光电流信号随外加电压的变化,实验过程中要注意观察信号幅度的变化是否超出了测量仪器的量程并加以调节。

3.6 本章小结

本章第一部分首先介绍了普遍适用于光折变材料载流子输运研究的带输运模型,然后详细列举分析了光折变材料中主要的三个影响光激发自由载流子迁移的机制:扩散、漂移和光生伏打效应,并针对本课题研究对象的迁移特点进行分析,最后对于影响载流子传输过程的重要物理因素-陷阱效应作了较为详细的阐述,对材料中的深浅陷阱所起的作用进行了一些讨论。

第二部分介绍了 TOF 实验系统的基本原理,以及搭建实验平台时所应该注意的事项。介绍建立实验系统时的详细过程以及实验设备,给出了光路图以及系统的实物图。

第三部分详细阐述了实验过程,实验光路和电路的设计原理,信号的捕获过程,探测器的选取,从最后的结果我们可以看出采用较好的实验条件可以成功对小光强和小电阻条件下的 TOF 光电流信号进行捕获,获得了较好信噪比的信号。

目前我们已知的其他实验研究经常会出现为了提高信噪比,实验参数设置不当的情况,例如选择过大的取样电阻值和过高的光注入能量而不符合 TOF 实验原理所要求的实验条件,这会造成测试的结果有很大的误差,这些问题会在第四章结果分析中详细讨论。

第4章 KLTN 晶体 TOF 信号的处理与迁移率的计算

4.1 TOF 光电流信号处理的理论基础

经调试,实验系统已经可用,通过改变实验条件我们可以得到一系列的光电流信号的数据。光折变的理论模型能够宏观的解释载流子迁移的现象,但却不便于进行从光电流信号中提取渡越时间的运算,这里我们将采用分析 TOF 信号最常用的 Scher-Montroll 模型^[32,33]来进行数据的分析和处理。该方法广泛应用于载流子输运研究中,人们在对硅酸铋晶体^[34,35]、有机晶体^[36,37]、薄膜材料^[38]等光电材料进行研究的的过程中,逐步验证了该理论的可信性,取得了大量的实验结果。

本章将首先简要的介绍 Scher-Montroll 模型,然后给出各个实验样品的测试结果,并对其进行分析处理,最终得出结论。

4.1.1 Scher-Montroll 模型

Scher-Montroll 模型是用统计学的理论来研究弥散输运中载流子迁移率过程的理论,后来被广泛用于分析和描述 TOF 实验中得到的光生载流子的输运现象。他们的模型假设在材料内部存在一个由大量规则分布的晶胞所组成的点阵,载流子跳跃过程所经过的点就是这个点阵中任意的一系列点,如图 4-1 所示。

对于一个在给定位置上的载流子(电子或空穴),其在某一个点处停留的时间符合连续时间随机分布模型。当材料的晶胞不存在无序时,载流子在跳跃点之间的移动速率是一个常数,并且它的迟豫时间和跳跃时间都会遵循着一个指数分布。但是,由于能量和位置不可避免的存在一些无序,载流子移动的速率会发生改变,使移动速率随机变化,所以 TOF 光电流信号会出现一个长长的尾巴。根据这种情况, Scher 和 Montroll 提出了一个弛豫时间呈幂指数分布的函数来描述这种无序的影响。即 $\Psi(t) \approx t^{-(1+\alpha)}$, 式中 α 是表征无序程度的一个参数,它的值介于零到无穷之间。一种物质越无序, α 的值就越小,弥散输运的程度就越高。

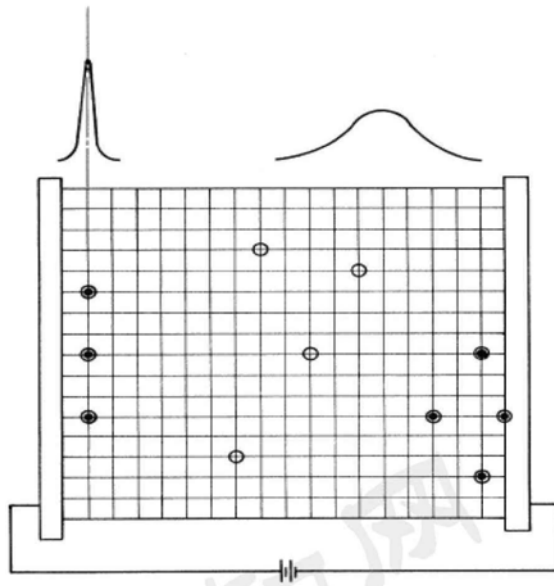


图 4-1 跳跃点阵示意图

Fig.4-1 Schematic diagram for random walk model

4.1.2 KLTN 晶体载流子渡越时间的获得

Scher-Montroll 模型在处理 TOF 信号的过程中有一个最重要的假设是，瞬态光电流会随如式(4-1)的形式衰减：

$$i(t) = \begin{cases} t^{-(1-\alpha)}, & t \leq T_r \\ t^{-(1+\alpha)}, & t \geq T_r \end{cases} \quad (4-1)$$

式中 α 为无序度参数，而 T_r 即为光电流衰减过程中的渡越时间，也就是 TOF 实验所要探测的物理量。

这个关系式被称为幂指数定律，即光电流遵循幂指数的形式进行衰减。根据这个关系式，我们可以很容易地使用对数坐标系，对我们得到的光电流信号的电流和时间坐标轴进行双对数变换，由这一双对数曲线两端走势的切线的交点，得到载流子的渡越时间。

如图 4-2 所示的就是运用该模型从光电流曲线中得到渡越时间的示例。图中所示的是 Fe_{0.03}: KLTN 晶体样品在 15μJ 单脉冲能量，300V/mm 外加电场，20kΩ 取样电阻的条件下得到的研究迁移率的一个典型例子：

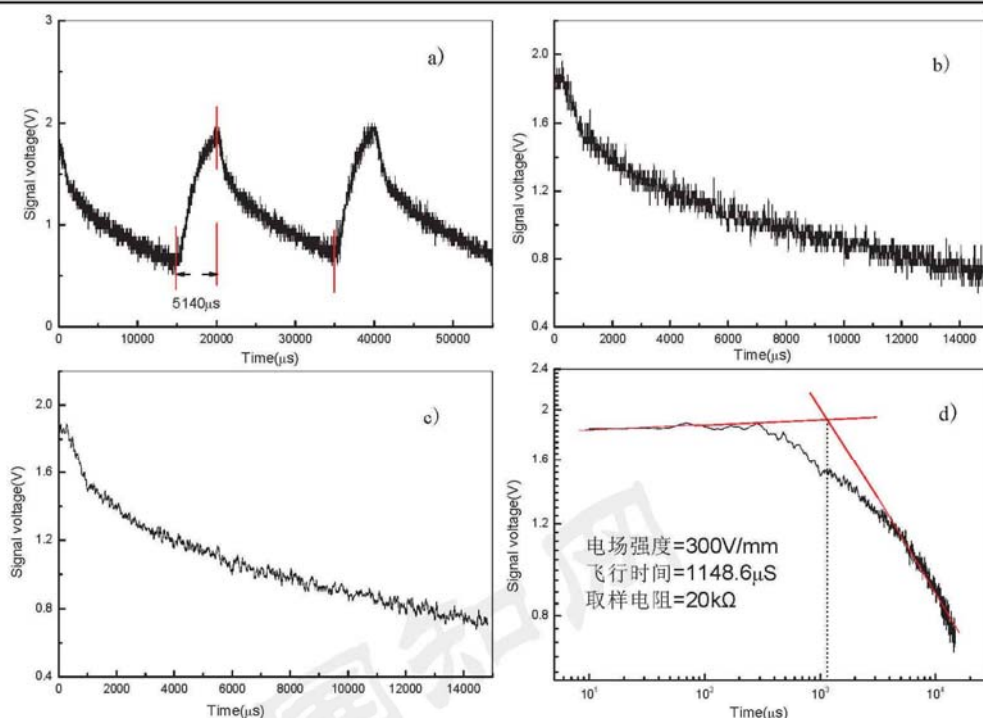


图 4-2 使用 Scher-Montroll 模型处理 TOF 数据过程 a) 原始信号 b) 一次衰减光电流信号
c) 去噪后的光电流信号 d) 对 TOF 信号做双对数展开后的结果

Fig. 4-2 the process of analysis TOF data using Scher-Montroll model a) original data b) a
attenuated signal c) smoothed signal d) double log type curve of TOF signal

在式(4-1)中所表示的分段函数的交叉点，也就是图 4-2d)中直线拟和后，两端的曲线走势的拟合直线的交点决定了渡越时间，即该交点的横坐标为这一过程准确的渡越时间。在得到了渡越时间之后，我们可以利用载流子迁移率的计算公式(4-2)，计算出空穴或电子载流子在这种情况下的迁移率的值。

$$\mu = \frac{L^2}{T_r \cdot V} = \frac{L}{T_r \cdot E} \quad (4-2)$$

式中 μ 为载流子迁移率，单位为 $\text{cm}^2/\text{V}\cdot\text{s}$ ，反映了载流子在电场作用下的运动能力， L 为载流子薄层在样品中所迁移的距离，即样品的厚度， E 为外加电场。由此可见本实验的关键就在于准确地测定出渡越时间 T_r 。

在实验中，我们分别对各个样品进行了实验测试，考察外电路的取样电阻以及外加电场对其迁移性能造成的影响，综合实验条件进行测试，得到了一系列结果。

4.2 KLTN 晶体载流子迁移过程研究

4.2.1 外电路 RC 特性的影响

外电路的 RC 特性对载流子渡越时间的测量精度有着极大的影响。当外电路信号取样电阻较大时，测试系统的响应时间就有可能大于载流子的渡越时间，此时是无法得到真实的渡越时间的。当外电路信号取样电阻足够小时，原则上可获得精确的渡越时间值，但此时信号微弱，影响结果的判断。所以我们应该在尽可能获得较好信号的前提之下选择小的取样电阻，以保证得到稳定而准确的渡越时间值，我们首先改变取样电阻的大小进行了一系列测试。

以 Fe_{0.15}: KLTN 晶体样品的空穴载流子迁移信号为例，在实验中使用控温装置使温度保持在其居里温度 30℃ 附近，保持激励光源的单脉冲能量为 15μJ 不变，同时取定样品的外加电场之后，改变外电路取样电阻值的大小，可以得到一系列 TOF 光电流信号，使用 Scher-Montroll 模型数据处理后的渡越时间的值列于表 4-1 中，从中可以清楚地看出这一系列信号的变化规律，随外电路取样电阻的减小，我们能够得到的渡越时间的值也将变小，最终趋于稳定，我们就可以确定此时的电阻为该样品适宜的外电路负载，实验中就使用该电阻进行测试。

表 4-1 Fe_{0.15}: KLTN 晶体空穴载流子的渡越时间

Table 4-1 Flight time of Fe_{0.15}: KLTN hole carrier

电场 (v/mm)	200	225	250	275	300	325	350	375	400
电压 (V)	60.8	68.4	76	83.6	91.2	98.8	106.4	114	121.6
电阻 (kΩ)	渡越时间(μs)								
80	116.4	109.6	98.8	86.8	75.2	67.6	59.6	50.4	47.6
70	99.6	94.4	90.8	79.6	65.6	56.8	50	46.8	41.2
60	90.9	84	78	68.8	59.6	51.6	43.2	40	36.4
50	87.2	78.4	71.6	62.8	51.6	46.8	39.6	35.2	34
40	86.9	76.8	70.8	61.6	49.2	45.6	38	32.8	31.2
30	85.2	76.4	70.8	60.8	49.2	44.4	37.2	32.8	30.4

由表 4-1 我们可以得出渡越时间随取样电阻值的变化情况，如图 4-3 所示：

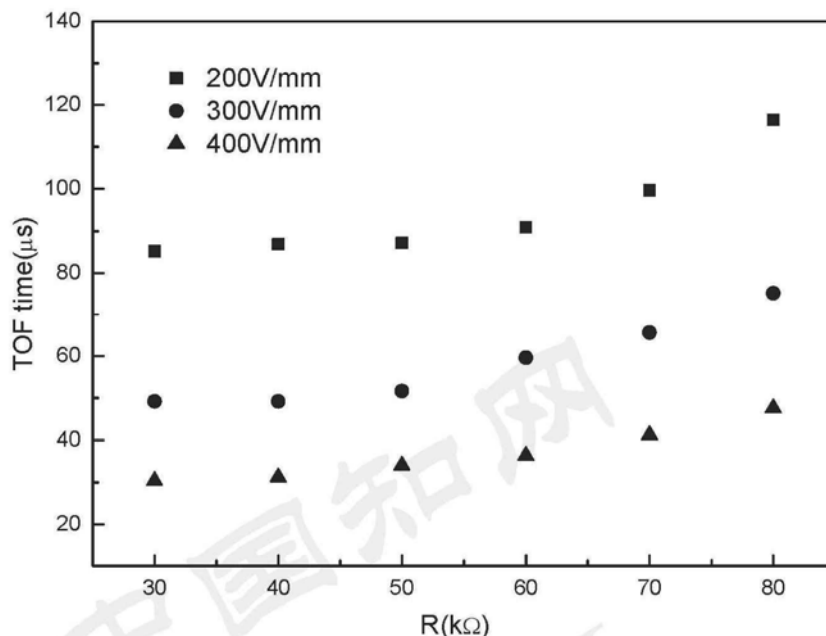


图 4-3 Fe_{0.15}: KLTN 空穴载流子渡越时间随取样电阻值的变化

Fig.4-3 Fe_{0.15}: KLTN hole carrier drifting time change with the sampling resistance

图 4-3 中只是给出了样品在 200V/mm、300V/mm 以及 400V/mm 外加电场情况下的渡越时间随取样电阻的变化关系，对于其他电场下这一性质也能够很好的符合，由图中的结果我们可以看出对于 Fe_{0.15}: KLTN 晶体样品 40kΩ 到 30kΩ 的区间，其渡越时间已经基本稳定，可以选择 30kΩ 作为该样品的实验电阻。

在对其它样品进行测试中我们发现，这一实验特性在每个样品中都有所体现，由 Fe_{0.03}: KLTN 的空穴载流子所得到的渡越时间结果，如图 4-4、5-5 可以更加直观的看到 Scher-Montroll 处理后渡越时间随取样电阻值的变化关系。两图中的信号是样品在外加电场为 325V/mm，激励光源的单脉冲能量为 15μJ，环境温度为 16℃左右的实验条件下得到的，依次改变取样电阻 68、51、20、10、4.7kΩ 得到图中的光电流结果。

从两图中的信号结果可以看出，RC 电路会对 TOF 的波形产生影响，外电路的 RC 响应时间越小，通过它所测得的载流子的渡越时间就越准确，在样品电容都已经固定的情况下，减小取样电阻值是得到精确结果所必须的。

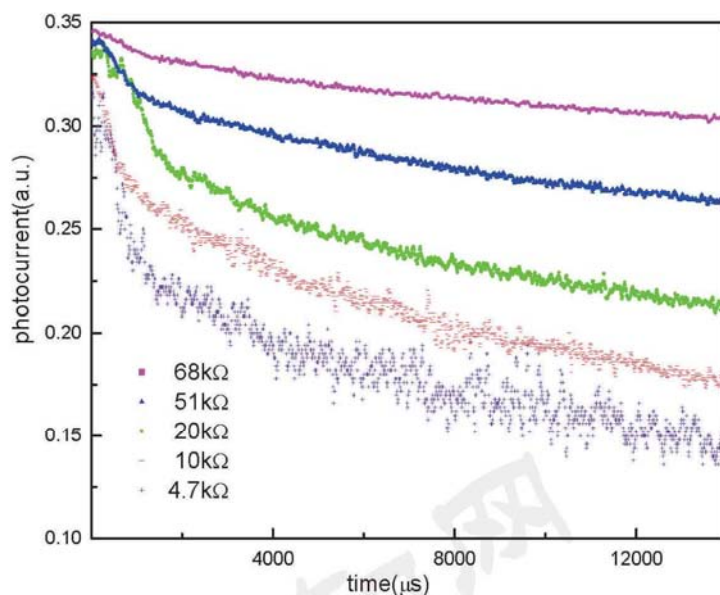


图 4-4 Fe0.03: KLTN 晶体空穴载流子不同取样电阻下的 TOF 光电流曲线

Fig.4-4 Fe0.03: KLTN hole carrier photocurrent curve change with different resistance

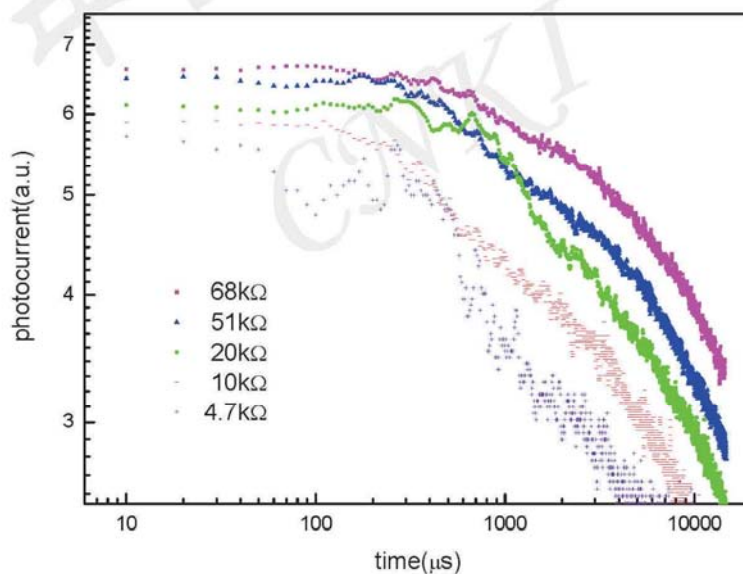


图 4-5 Fe0.03: KLTN 晶体空穴载流子不同取样电阻下的处理后的双对数坐标图

Fig.4-5 Fe0.03: KLTN hole carrier Log-Log plot of photocurrent change with different resistance

Fe0.03: KLTN 晶体样品渡越时间随取样电阻值的变化规律，如图 4-6 所示：

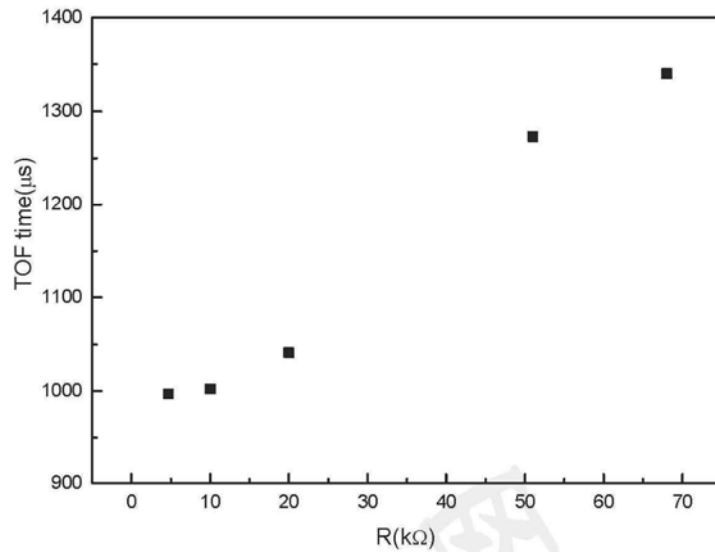


图 4-6 Fe0.03: KLTN 空穴载流子渡越时间随取样电阻值的变化

Fig.4-6 Fe0.03: KLTN hole carrier drifting time change with the sampling resistance

由图 4-6 我们可以确定 Fe0.03: KLTN 晶体样品适宜的实验电阻为 $10\text{k}\Omega$ 到 $4.7\text{k}\Omega$ ，考虑到对于较低的外加电场情况之下 $4.7\text{k}\Omega$ 上得到的信号不是很清晰，故对该样品进行实验时我们使用 $10\text{k}\Omega$ 的取样电阻。

在对 Cu0.25: KLTN 晶体样品进行测量中也有类似的过程，并且这种性质不仅针对空穴载流子，对于非主要载流子的电子也同样适用，样品中电场为 200V/mm 时，电子载流子渡越时间随取样电阻值的变化如图 4-7 所示：

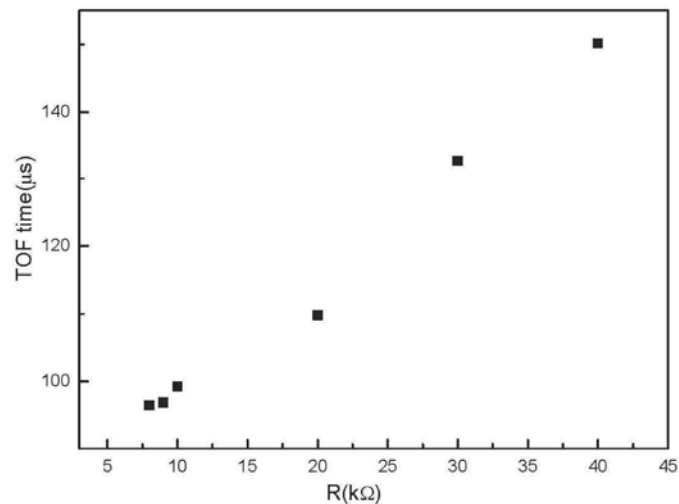


图 4-7 Cu0.25: KLTN 电子载流子渡越时间随取样电阻值的变化

Fig.4-7 Cu0.25: KLTN electron carrier drifting time change with the sampling resistance

由图中的渡越时间的数据点的变化我们可以看出，对于 $\text{Cu}_{0.25}\text{:KLTN}$ 晶体样品， $10\text{k}\Omega$ 以下的实验结果就已经趋于稳定， $9\text{k}\Omega$ 是比较适合的取样电阻大小。

以上的实验过程也同样在纯的 KLTN 晶体中进行，但我们并没有得到很好的实验信号，这主要是由于纯的 KLTN 的迁移性能不是很强，另外我们的系统对于较弱信号的鉴别能力还不够好，参阅有关文献发现，针对这一问题可以使用 boxcar 等用于弱信号提取的仪器，目前我们的实验没有使用该方法，仅对铁掺杂以及铜掺杂的样品进行载流子迁移率的计算，从该情况可以看出，掺杂离子对样品的性能提高的意义在其载流子迁移的性能上就有很好的体现。

4.2.2 KLTN 晶体载流子迁移率的计算

在满足了 TOF 的实验条件的基础上，根据外加条件和渡越时间的测量结果，利用迁移率公式，我们就可以对每个 KLTN 晶体样品的载流子迁移率进行计算。

以 $\text{Fe}_{0.03}\text{:KLTN}$ 的空穴载流子迁移率为例，在外加电场为 325V/mm 的情况下，由 Scher-Montroll 模型处理后得到空穴在样品中的渡越时间如图 4-8 所示：

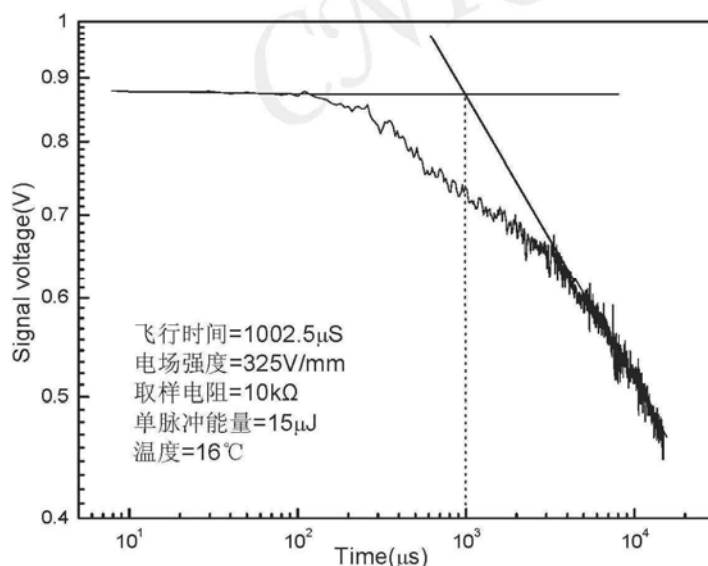


图 4-8 $\text{Fe}_{0.03}\text{:KLTN}$ 场强 325V/mm 时双对数展开后的直线拟合

Fig.4-8 $\text{Fe}_{0.03}\text{:KLTN}$ Log-Log plot of the photocurrent at 325V/mm

根据外加的实验条件以及测量结果， $\text{Fe}_{0.03}\text{:KLTN}$ 晶体样品的有关参数的数据统计如表 4-2 所示，根据载流子迁移率的公式，前面已经介绍过的公式

(4-2)，就可以计算出 Fe0.03: KLTN 晶体在这种实验条件下的载流子迁移率：

表 4-2 Fe0.03: KLTN 样品参数表

Table 4-2 Parameters of Fe0.03: KLTN

电压	样品厚度	电场	渡越时间	温度
149.8V	0.0461cm	3250V/cm	1002.5 μ s	16 $^{\circ}$ C

根据载流子迁移率计算公式可求出：

$$\begin{aligned}
 \mu &= \frac{L^2}{T_r \cdot V} \\
 &= \frac{L}{T_r \cdot E} \\
 &= \frac{0.0461\text{cm}}{1002.5\mu\text{s} \cdot 3250\text{V/cm}} \\
 &= 1.414 \times 10^{-2} \text{cm}^2/\text{V} \cdot \text{s}
 \end{aligned} \tag{4-3}$$

这一数据与文献报道中的硅酸铋系光折变晶体所表现出的载流子迁移率的量级相当^[39]，并且优于有机的电荷传输材料^[40]及有机光折变液晶材料^[41]等。

改变外加电场，我们可以得到其它的结果，包括 Fe0.03: KLTN 晶体的空穴与电子载流子的渡越时间和由此得到的迁移率的值，列于表 4-3 中：

表 4-3 不同场强下 Fe0.03: KLTN 的迁移率

Table 4-3 Fe0.03: KLTN Carrier mobility at different electric field

电压(V)	103.7	115.25	126.7	138.3	149.8
样品厚度	0.461mm				
电场(V/mm)	225	250	275	300	325
空穴渡越时间(μ s)	1335.2	1240.3	1137.4	1059.8	1002.5
空穴迁移率($10^{-2} \text{cm}^2/\text{V} \cdot \text{s}$)	1.54	1.49	1.47	1.45	1.41
电子渡越时间(ms)	7.35	6.14	5.36	4.74	4.14
电子迁移率($10^{-3} \text{cm}^2/\text{V} \cdot \text{s}$)	2.79	3	3.13	3.25	3.43

对于 Fe0.15: KLTN 晶体，Cu0.25: KLTN 晶体两实验样品，类似于 Fe0.03: KLTN 晶体的处理以及计算的方法，我们也可以得到如下表 4-4 和表 4-5 所示

的数据:

表 4-4 不同场强下 Fe0.15: KLTN 的迁移率

Table 4-4 Fe0.15: KLTN Carrier mobility at different electric field

电压(V)	76	83.6	91.2	98.8	106.4	114	121.6
样品厚度	0.304mm						
电场(V/mm)	250	275	300	325	350	375	400
空穴渡越时间(μs)	70.8	60.8	49.2	44.4	37.2	32.8	30.4
空穴迁移率($10^{-2} \text{ cm}^2/\text{V}\cdot\text{s}$)	17.2	18.2	20.6	21.1	23.3	24.7	25
电子渡越时间(μs)	132.2	114.4	102.6	93.6	83.2	74.4	67.6
电子迁移率($10^{-2} \text{ cm}^2/\text{V}\cdot\text{s}$)	9.2	9.7	9.9	10	10.4	10.9	11.2

表 4-5 不同场强下 Cu0.25: KLTN 的迁移率

Table 4-5 Cu0.25: KLTN Carrier mobility at different electric field

电压(V)	42.5	46.75	51	55.25	59.5
样品厚度	0.17mm				
电场(V/mm)	250	275	300	325	350
空穴渡越时间(μs)	78.4	70	60.8	50.4	45.6
空穴迁移率($10^{-2} \text{ cm}^2/\text{V}\cdot\text{s}$)	8.67	8.83	9.32	10.4	10.7
电子渡越时间(μs)	117.5	100.8	93.2	82.8	70.4
电子迁移率($10^{-2} \text{ cm}^2/\text{V}\cdot\text{s}$)	5.79	6.13	6.08	6.32	6.89

由以上三个表格中所列举的实验数据, 我们可以得出以下结论:

1. 掺杂会提高 KLTN 晶体的载流子迁移性能, 相对而言会有较好的光折变性能。
2. 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, 但也有电子载流子存在。空穴作为主要载流子这一结论在二波耦合观察能量转移实验中也有所验证。