

固体介质电偶极子等温衰减电流与 激活能分布

刘付德 凌志远 熊茂仁

(华南理工大学无机材料科学与工程系, 广州 510641)

摘要 从经典的单一弛豫时间 Debye 方程着手, 考虑各个弛豫时间的电偶极子对弛豫过程贡献的物理意义后, 近似地获得了以任意激活能分布的电偶极子数与等温衰减电流的基本关系, 即电偶极子激活能分布密度与电流 I 和衰减时间 t 的乘积成正比. 数值计算结果检验该理论时表明: 无论以分立或连续分布形式存在的电偶极子, 精确的与近似的 $It-\log t$ 关系符合得相当好. 该理论解决了长期以来电介质中弛豫时间分布非常难得的问题, 应用于介电频谱时得到了 Hamon 早年提出的广泛应用的经验公式的相似结果.

关键词 电偶极子 密度分布 电流衰减 介电弛豫

众所周知, 电介质物理对固体电介质介电弛豫现象的描述主要是解决弛豫时间 τ 的分布问题. 根据 τ 的基本关系 $\tau = \tau_0 \exp(A/kT)$ 可知, 在一定的温度下, τ 的存在形式直接地与激活能 A 的连续或分立取值有关, 获得 A 的信息, 一切将迎刃而解. A 的大小是由材料本身决定的, 在实际电介质材料中常常由于非晶、多晶并存, 各种缺陷呈不规则分布等等, 使得介质中的电偶极子并非处于一个单一的激活能值, 而是极有可能以分布或多个分立激活能值形式存在. 长期以来, 材料工作者对它们表现出的种种特性进行了多方面的研究, 例如介电频谱技术^[1]、热刺激电流技术^[2,3]等等. 在介电频谱技术上, 往往是先验地对电偶极子分布作一假设, 然后才对理论和实验结果验证. 然而由于实际介质中电偶极子分布面的多样性, 假设分布是不可能进行广泛描述的. 热刺激电流理论往往是采用初始曲线上升段求斜率的方法获得激活能的单一平均值, 这种求导方法分辨率低, 求导数结果误差大, 还很难获得电偶极子激活能密度分布. 至今, 还没有一种实验分析方法可以直接描绘电偶极子激活能分布的直接图象, 多数情况下只能对实验结果作分析以寻找规律, 例如 Hamon 从众多实验结果上总结出描述介电常数损耗因子 ϵ'' 与频率和衰减电流的基本经验公式^[4], 并被广泛地采用^[5,6], 可是物理过程本质却不清. 有鉴于此, 本文从 Debye 方程着手, 分析各电偶极子弛豫行为的物理过程, 寻找一种描述电偶极子激活能分布直接图象的方法, 并对 Hamon 的经验公式进行理论推导和赋予物理意义.

1 等温电流衰减与激活能密度分布理论

从电介质物理学可知, 对于具有单一弛豫时间的电偶极子, 它的等温弛豫方程可表示为

$$dP(t)/dt = -\frac{1}{\tau} P(t). \quad (1)$$

式中 $P(t)$ 为时间 t 时单位体积电偶极子极化强度, τ 为弛豫时间, 可表示为

$$\tau = \tau_0 \exp(A/kT), \quad (2)$$

其中 τ_0 为常数, A 为激活能, k 为 Boltzmann 常数, T 为绝对温度. 对 (1) 式两边积分得到

$$P(t) = P_0 \exp(-t/\tau), \quad (3)$$

其中 $P_0 = N\mu_0^2 f E_0 / kT_0$ 为初始极化强度, $f E_0$ 为内电场, 对于自由转向偶极子 $f = \frac{1}{3}$, μ_0 为电偶

极矩, T_0 为形成 P_0 时的绝对温度, 它可以等于 (2) 式上的 T , 也可以不相等, 视实际情况可取不同值. 由 (2) 式可知, 存在分布的弛豫时间, 则必须是 A 取连续值, 即电偶极子是以激活能分布形式存在的. 在实验上已发现很多介质热刺激电流曲线在很宽的温度区间内展宽而且峰值也平坦, 介电谱偏离 Debye 单 τ 模型等, 这些都足以说明存在这种分布形式. 设电偶极子单位体积上激活能为 A 的分布密度为 $N(A)$, 则单位体积下所有激活能的电偶极子对极化的贡献为对 (3) 式的积分, 即

$$P_{\text{总}} = \int_0^{\infty} \frac{N(A)\mu_0^2 f E_0}{kT_0} \exp(-t/\tau) dA, \quad (4)$$

由 (4) 式得到等温电流衰减规律为

$$I = -dP_{\text{总}}/dt = \int_0^{\infty} \frac{N(A)\mu_0^2 f E_0}{kT_0} \frac{1}{\tau} \exp(-t/\tau) dA, \quad (5)$$

该式中由于实际 $N(A)$ 分布是一未知函数, 同时积分中还含有超越函数, 因此直接求解 (5) 式是很困难的, 因而无法获得 (5) 式的解析解 (除个别特殊分布外). 可是 (5) 式却又是电偶极子弛豫对电流的贡献, 它必然与电偶极子微观过程相关. 我们不妨考虑函数

$$M(A, t) = \frac{1}{\tau} \exp(-t/\tau), \quad (6)$$

它表示温度为 T 时, 激活能为 A 的电偶极子在时间 t 时对电流贡献的权重因子. 取 n 个不同的时刻 t , 作函数 $M(A, t)$ 与激活能的关系曲线结果如图 1 所示. 由图可见, 曲线呈钟型不对称, 在 $A = A_m$ 处取得最大值, 半高宽能量约 $3kT$, 因此, 可以肯定在等温弛豫

过程的任一时刻, 只有哪些激活能位于 A_m 附近 $\frac{3}{2}kT$ 范围内的电偶极子才对电流衰减起显著的作用. 同时从该图中还可见, 随着时间 t 的增加, A_m 从最小值

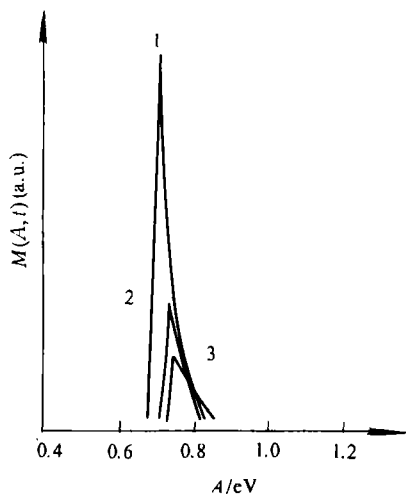


图 1 不同时间时函数 $M(A, t)$ 与激活能 A 的关系曲线

$\tau_0 = 10^{-11}$ s, $T = 300$ K; 1 — $t = 20$ s,
2 — $t = 50$ s, 3 — $t = 100$ s

逐渐扫过所有激活能. 因此, 激活能小于 A_m 的电偶极子趋向稳态, 而大于 A_m 的电偶极子仍维持初始状态.

A_m 与 t 的关系可以从下列关系获得:

$$\partial M / \partial A|_{A=A_m} = 0, \quad (7)$$

由 (6) 和 (7) 式得到

$$A_m = kT \ln(t/\tau_0). \quad (8)$$

从图 1 的结果还可见, 在宽广的激活能范围内, $M(A, t)$ 曲线可以近似地用 δ 函数表示, 即

$$\frac{1}{\tau} \exp(-t/\tau) \approx C \delta(A - A_m), \quad (9)$$

其中 C 是曲线围成的面积. 对 (9) 式两边积分得到

$$C = \int_0^\infty \frac{1}{\tau_0} \exp(-A/kT) \exp\left[-\frac{t}{\tau_0} \exp(-A/kT)\right] dA, \quad (10)$$

进行积分后得到

$$C = \frac{kT}{t} [1 - \exp(-t/\tau_0)], \quad (11)$$

一般地 τ_0 约为 $10^{-10}\text{s} \sim 10^{-12}\text{s}$ 数量级, 在通常情况下, $\exp(-t/\tau_0) \ll 1$, 因此, (11) 式可近似为

$$C \approx \frac{kT}{t},$$

这样函数 $M(A, t)$ 就可以近似地表示为

$$M(A, t) \approx \frac{kT}{t} \delta(A - A_m), \quad (12)$$

将 (12) 式代入 (5) 式并进行积分, 即得

$$I = \int_0^\infty \frac{N(A)\mu_0^2 f E_0}{kT_0} \frac{kT}{t} \delta(A - A_m) dA = \frac{N(A)\mu_0^2 f E_0}{kT_0} \frac{kT}{t}, \quad (13)$$

或者改写为

$$N(A) = It / \mu_0^2 f E_0 \cdot \frac{T}{T_0}, \quad (14)$$

(14) 式表明电偶极子激活能密度分布与它的等温衰减电流和衰减时间的积成正比, 结合 (8) 式的计算公式可知, 只要精确测量出电偶极子等温衰减电流的时间关系就可以获得它的激活能分布密度 $N(A)$. 这在以往的其它方法中是无法得到的直接结果. 与 (5) 式比较, (13) 式可用于计算任意激活能分布密度条件下电偶极子对衰减电流的贡献, 而 (5) 式只能对有限几个特殊分布进行解析计算.

为了说明 (13) 式的有效性和精确性, 我们对下面几种特殊分布同时用 (5) 式和 (13) 式进行 $I-t$ 关系曲线的理论计算. (1) 均匀密度分布: 设 $N(A) = 10^{27}/\text{m}^3\text{eV}$, 将这一假设值代入 (13) 式和 (5) 式, 计算所得结果如图 2 中 (1) 曲线所示, 其中实线表示近似解, 虚线表示精确解. 对这种均匀分布假设, 两者所得结果是一致的. (2) Gauss 分布: 设

$$N(A) = N_2 \exp[-\sigma(A - A_0)^2] = 10^{27} \exp[-25(A - 0.83)^2] (\text{m}^3\text{eV})^{-1}, \quad (15)$$

将 (15) 式代入 (5) 式和 (13) 式并结合 (8) 式分别计算 $I-t$ 结果, 所得结果如图 2 中曲线 2 所示,

其中实线是(13)式近似解,虚线是(5)式精确解,对这种假设分布,两者也非常相符。(3)设电偶极子激活能分布密度如图3实线所示的任意形状。通过(8)式将激活能坐标转换成电流衰减时间坐标,通过(14)式将 $N(A)$ 坐标转换成 It 坐标。这样,图3的实线也表示了(14)式的近似解 $It \sim \log t$ 特性。此外,将图3假设结果代入(5)式进行数值计算,其他参数取值为 $\mu_0 = 10^{-30} \text{ C} \cdot \text{m}$, $T = T_0 = 300 \text{ K}$, $f = 1/3$, $E_0 = 2 \times 10^6 \text{ V/m}$, $k = 1.38 \times 10^{-23} \text{ J/K}$, $\tau_0 = 10^{-11} \text{ s}$ 。计算所得的精确解如图3上的虚线所示,可见近似解与精确解也非常相符,误差小于10%,这表明实际的 $It - \log t$ 特性的确提供了电偶极子激活能密度分布的直接图象。(4)非常特殊地,设电偶极子在一定激活能范围内呈常数分布如图4所示,通过(14)式和(15)式计算所得的近似和精确 $It - \log t$ 特性如图4中1和2所示。这种分布在实际中可能很少出现,但它却是本文提供近似理论的最有说服力的例子,近似解和精确解仍符合得较好,说明本文的近似处理对电偶极子任意激活能密度分布都是有效的。

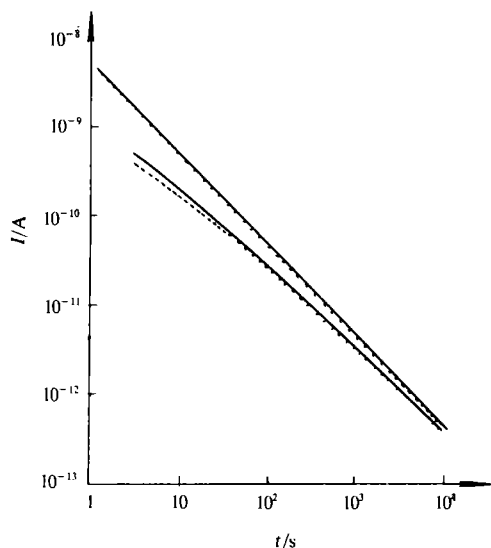


图2 电偶极子等温衰减电流 I 与衰减时间 t 的近似解和精确解

实线为近似解,虚线为精确解, $T = T_0 = 300 \text{ K}$, $\tau_0 = 10^{-11} \text{ s}$, $f = 1/3$, $E_0 = 2 \times 10^6 \text{ V/m}$, $\mu_0 = 10^{-30} \text{ C} \cdot \text{m}$;

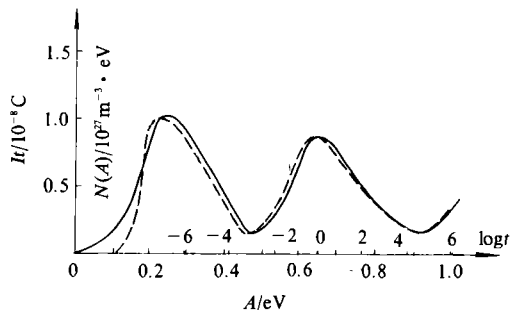


图3 对给定的任意激活能分布密度, (14)式近似解和(5)式 $\times t - \log t$ 精确解

实线为原始分布和近似解,虚线为精确解; $\mu_0 = 10^{-30} \text{ C} \cdot \text{m}$, $T = T_0 = 300 \text{ K}$, $f = 1/3$, $E_0 = 2 \times 10^6 \text{ V/m}$, $k = 1.38 \text{ J/K}$, $\tau_0 = 10^{-11} \text{ s}$

偶极子在一定激活能范围内呈常数分布如图4所示,通过(14)式和(15)式计算所得的近似和精确 $It - \log t$ 特性如图4中1和2所示。这种分布在实际中可能很少出现,但它却是本文提供近似理论的最有说服力的例子,近似解和精确解仍符合得较好,说明本文的近似处理对电偶极子任意激活能密度分布都是有效的。

室温($T = 300 \text{ K}$)条件下, $kT \approx 0.025 \text{ eV}$, 以上讨论的理论是电偶极子激活能分布能量范围大于 $2kT$ 的情形。在某些分立条件下,该理论还不能直接使用,然而实际使用中,存在这种分立形式的激活能分布也是常用的,因此有必要对这种情况加以讨论。假设电介质中只含有单一激活能的电偶极子,激活能为 A_0 , 单位体积电偶极子数为 N_0 , 则由(5)式可以得到

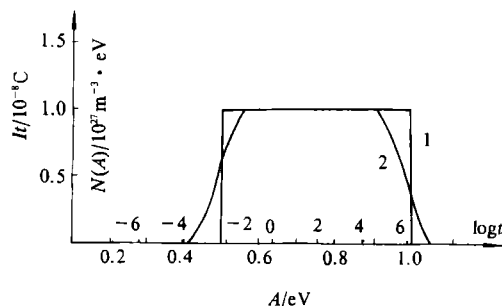


图4 一定激活能范围内电偶极子呈常数分布条件下 $It - \log t$ 关系曲线

1为原始分布和近似解,2为精确解; $\tau_0 = 10^{-11} \text{ s}$, $T = T_0 = 300 \text{ K}$, $f = 1/3$, $E_0 = 2 \times 10^6 \text{ V/m}$, $\mu_0 = 10^{-30} \text{ C} \cdot \text{m}$

$$I = \frac{N_i \mu_0^2 f E_0}{k T_0} \frac{1}{\tau_i} \exp(-t/\tau_i), \quad (16)$$

化成与 (14) 式相似的形式

$$\begin{cases} It = \frac{N_i \mu_0^2 f E_0}{k T_0} \frac{t}{\tau_i} \exp(-t/\tau_i), \\ \tau_i = \tau_0 \exp(A_i/kT). \end{cases} \quad (17)$$

如果有几个不同的激活能值 A_i , 通过 (17) 式可以获得各激活能值时的 $It - \log t$ 数值计算结果. 图 5 虚线 1 是激活能值分别为 0.65, 0.70, 0.75, 0.80 eV, N_i 均取为 $10^{27}/\text{m}^3$ 时的 $It - \log t$ 数值计算曲线. 由图可见, 对于给定的 N_i 和 τ_0 , 当只改变 A_i 值时, 曲线的形状和大小几乎不变, 只是时间坐标发生变化. 改变温度时, 曲线的高度和各峰间的间隔要相应发生变化, 如降低温度, 曲线峰值高度下降, 各峰间宽度间隔变宽, 但曲线围成的面积不变, 典型结果如图 5 曲线 2 点划线所示. 考虑各激活能值时的结果叠加, 则 It 与 t 的关系可表示为

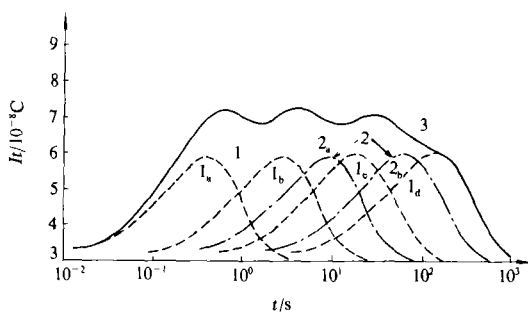


图 5 几个分立 $It - \log t$ 近似曲线

1 为 300 K 时近似曲线; $1_a, 1_b, 1_c, 1_d$ 的激活能分别为 0.65, 0.70, 0.75, 0.80 eV; 2 为 275 K 时激活能为 0.70 (2_a), 0.75 (2_b) 两分立 $It - \log t$ 近似曲线, 3 为叠加结果曲线各激活能差值约为 $2kT$, 其它参数 $N = 10^{27}/\text{m}^3$, $f = 1/3$, $E_0 = 2 \times 10^6 \text{ V/m}$, $\mu_0 = 10^{-30} \text{ C} \cdot \text{m}$, $\tau_0 = 10^{-11} \text{ s}$, $T = T_0$

$$\begin{cases} It = \frac{\mu_0^2 f E_0}{k T_0} \sum_{j=1}^n N_j \frac{t}{\tau_j} \exp(-t/\tau_j), \\ \tau_j = \tau_0 \exp(A_j/kT) \quad j=1, \dots, n, \end{cases} \quad (18)$$

n 是分立激活能电偶极子分布种类数. 对图 5 曲线 1 点线四个峰值叠加, 数值计算结果如图 5 实线 3 所示. 它说明了 (18) 式的结果是由四个激活能间隔大于 $2kT(0.05 \text{ eV})$ 的有较大交迭的分立峰叠加成的. 如果激活能间隔小于 $2kT$ 时, 则情况将同前面所述, 将可近似看成连续分布形式处理.

另一方面, 如果激活能间隔大于 $4kT$ (约 0.1 eV), 此时各分立峰迭加较少, 各分立峰值曲线叠加的总效果将可以分辨出各单一峰值曲线的形状, 这是由于在任一时间, 只有某一激活能的电偶极子弛豫才对电流作出贡献. 在图 5 上可以清楚地得到说明. 图 5 中 1 和 2 曲线各峰中的 $It - \log t$ 关系表现出一个非常明显的特征即曲线形状与激活能和温度无关, 这一特征使人们能够从实验上区分分立的或分布的电偶极子存在形式.

(18) 式各峰值位置可以由以下方法获得:

$$\frac{d}{dt} [t \exp(-t/\tau_j)] = 0, \quad (19)$$

简化 (19) 式可得到

$$A_j = kT \ln(t_j/\tau_0), \quad (20)$$

其中 A_j 是第 j 峰的激活能值, t_j 是出现第 j 峰的时间, 这与 (8) 式的形式是一致的, 只是 (20) 式取分立值, 而 (8) 式可取连续值.

为了对曲线结果进行分析, 有必要了解 τ_0 值, 它可以通过以下实验方法获得. 由于 $It-\log t$ 曲线形状的各个部分与某一特定激活能相对应, 因此在两个不同温度下 (例如 T_1 和 T_2), 测量 $It-\log t$ 曲线, 然后取不同温度下曲线某一明显特征处的特征时间 t_1 和 t_2 , 并找出相应的激活能 (如设为 A_1), 由此从 (8) 式得到如下关系:

$$A_1 = kT_1 \ln \frac{t_1}{\tau_0}, \quad (21)$$

$$A_1 = kT_2 \ln \frac{t_2}{\tau_0}, \quad (22)$$

由 (21) 式和 (22) 式就可以决定 τ_0 值

$$\tau_0 = \exp[(T_1 \ln t_1 - T_2 \ln t_2)/(T_1 - T_2)], \quad (23)$$

如果 τ_0 还是激活能的函数, 则可以通过重复上述实验, 取曲线不同部位对应的激活能值 A_i , 就可以得到 τ_0 与激活能的关系.

2 介电常数与等温电流的关系

从电偶极子激活能密度分布 $N(A)$, 可以得到弛豫时间分布 $g(\tau)$, 两者转换关系如下:

$$g(\tau) d\tau = N(A) dA, \quad (24)$$

或者改写为

$$\frac{g(\tau) \mu_0^2 f E_0}{kT_0} d\tau = \frac{N(A) \mu_0^2 f E_0}{kT_0} dA, \quad (25)$$

式中 $g(\tau) d\tau$ 表示单位体积中弛豫时间位于 $\tau \sim \tau + d\tau$ 间的电偶极子数, 而 $g(\tau) \mu_0^2 f E_0 / kT_0 \cdot d\tau$ 是热平衡时单位体积中弛豫时间位于 $\tau \sim \tau + d\tau$ 范围内的各电偶极子产生的电极化强度, 即

$$dP = \frac{g(\tau) \mu_0^2 f E_0}{kT_0} d\tau, \quad (26)$$

而 dP 与介电系数的关系又可写成

$$d(\varepsilon_s - \varepsilon_\infty) = \frac{dP}{\varepsilon_0 E_1} = \frac{g(\tau) \mu_0^2 f E_0}{\varepsilon_0 kT_0} \frac{d\tau}{E_1}, \quad (27)$$

式中 ε_s 为静态介电系数, ε_∞ 是高频介电系数, E_1 是外加直流电场 (可以等于 E_0), 考虑到单位面积的贡献时, 对 (27) 式进行所有弛豫时间的积分, 得到

$$\varepsilon_s - \varepsilon_\infty = \int d(\varepsilon_s - \varepsilon_\infty) = \int_0^\infty \frac{g(\tau) \mu_0^2 f E_0}{C_0 V_1 kT_0} d\tau, \quad (28)$$

其中 C_0 是真空中的电容量, V_1 是外加直流电压. 如果外加电压是交变信号时, 将介电系数表示为

$$\varepsilon = \varepsilon' - i\varepsilon'', \quad (29)$$

则 (28) 式可以写成

$$\varepsilon' - \varepsilon_\infty = \frac{1}{C_0 V_1} \int_0^\infty \frac{g(\tau) \mu_0^2 f E_0}{kT_0} \cdot \frac{1}{1 + \omega^2 \tau^2} d\tau, \quad (30)$$

$$\varepsilon'' = \frac{1}{C_0 V_1} \int_0^\infty \frac{g(\tau) \mu_0^2 f E_0}{k T_0} \cdot \frac{\omega \tau}{1 + \omega^2 \tau^2} d\tau, \quad (31)$$

如果介质中电偶极子激活能是以分立形式存在, 则(30)和(31)式可表示为

$$\varepsilon' - \varepsilon_\infty = \sum_{j=1}^n \frac{g(\tau_j) \mu_0^2 f E_0}{C_0 V_1 k T_0} \cdot \frac{\Delta \tau_j}{1 + \omega^2 \tau_j^2}, \quad (32)$$

$$\varepsilon'' = \sum_{j=1}^n \frac{g(\tau_j) \mu_0^2 f E_0}{C_0 V_1 k T_0} \cdot \frac{\omega \tau_j}{1 + \omega^2 \tau_j^2} \Delta \tau_j. \quad (33)$$

因为 $g(\tau) d\tau$ [或 $g(\tau_j) \Delta \tau_j$] 可以通过(24)式得到, 因此, $\varepsilon' - \varepsilon_\infty$ 和 ε'' 的频率谱可以通过(30), (31)式或(32), (33)式, 再结合(14)式就可以进行计算了.

考虑电偶极子以连续分布形式存在, 并考虑(14)和(2)式, 结合(24)式, 在任一给定的衰减时间 t , 位于 $\tau \sim \tau + d\tau$ 间的电偶极子对电流的贡献为 dI , 则所有偶极子的贡献为

$$\varepsilon'' = \frac{1}{C_0 V_1} \int_0^I t dI \int_0^\infty \frac{\omega}{1 + \omega^2 \tau^2} d\tau = \frac{It}{C_0 V_1} \frac{\pi}{2}, \quad (34)$$

即

$$C_0 V_1 \varepsilon'' = \frac{\pi}{2} It, \quad (35)$$

此处时间 t 是电偶极子等温电流衰减的时间. 在介电频谱中应用时, 不妨可以以一个特征时间作信号, 根据(2)式和(8)式, t 也就是各个电偶极子的弛豫时间 τ , 因此作 ε'' 的频率特性时, 从熟知的关系

$$\omega \tau = 1 \quad (36)$$

决定频率, 在 τ 时刻后, 衰减电流已降至原始值的 $1/e \approx 0.37$, 即已有 63% 的这一弛豫时间的电偶极子对电流衰减作出了贡献, 因此, 可以对(35)式规定 I 的取值而获得 ε'' 的频率特性关系式

$$C_0 V_1 \varepsilon'' = \frac{\pi}{2} \cdot I \left(\frac{0.63}{\omega} \right) \cdot \frac{1}{\omega}, \quad (37)$$

与 Hamon 近似经验公式^[4]

$$C_0 V_1 \varepsilon'' = I \left(\frac{0.63}{\omega} \right) \cdot \frac{1}{\omega} \quad (38)$$

相比较, 本文结果(37)式仅差一因子 $\frac{\pi}{2}$. 这里给出的是介质弛豫内存过程的必然结果.

取单一激活能电偶极子为例, 通过(37)式则很容易计算获得 $\varepsilon'' \sim \omega$ 关系呈人们所熟知的如图 5(1)任一单一峰值曲线形状的结果. 并从这一公式可以获得任意低频超低频的介电频谱关系.

3 结论

考虑固体电介质中各单一弛豫时间的电偶极子对电流衰减贡献的物理过程后, 本文近似地获得了一种直接从等温衰减电流获得电偶极子激活能分布的方法, 所得结果表明 $It - \log t$ 关系表示了电偶极子分布的直接图象. 对几种特殊分布进行数值计算检验本文结果发现精确

解与似近解符合得相当好. 本文的工作还对电偶极子分立存在形式进行检验, 精确数值计算结果发现各电偶极子间激活能差值以 $2kT$ 作临界点进行区分分布或分立存在形式. 将本文的近似理论应用于介电频谱关系时, 导出了 Hamon 早年提出的并被广泛应用的近似经验公式, 由此还可以获得一种任意低频超低频介电系数频率特性的描述方法. 进一步研究正在进行中.

参 考 文 献

- 1 张良莹, 姚 燕编著. 电介质物理. 西安: 西安交通大学出版社, 1991. 211
- 2 van Turnhout J. Thermally Stimulated Discharge of Polymer Electrets. New York: Elsevier Scientific Publishing Company, 1975. 86
- 3 王力衡编著. 介质的热刺激理论及其应用. 北京: 科学出版社, 1988. 48
- 4 Hamon V B. Measurement of dielectric loss factor at very low frequency. Proc I E E. 1952, 99, Pt IV: 151~154
- 5 Hino T. Measurement of dipolar relaxation times and dielectric constant using thermally stimulated current. J Appl Phys, 1975, 46(5): 1956~1960
- 6 科埃略 R 著. 电介质物理学. 吕景楼, 李守义译. 北京: 科学出版社, 1984. 90