ФИЗИЧЕСКОЕ МАТЕРИАЛОВЕДЕНИЕ PHYSICAL SCIENCE OF MATERIALS

PACS: 32.10.Bi, 61.72.uf

УДК 535.34 EDN: RBHVSE



Особенности пропускания излучения моноизотопными монокристаллами германия в терагерцовом спектральном диапазоне

Г. И. Кропотов, И. А. Каплунов, В. Е. Рогалин, А. А. Шахмин, А. Д. Буланов

На образцах, изотопически чистых монокристаллов германия, полученных из всех пяти стабильных изотопов (70 Ge, 72 Ge, 73 Ge, 74 Ge, 76 Ge), измерены значения пропускания излучения в терагерцовом спектральном диапазоне (для длин волн 30–3000 мкм). Рассчитаны коэффициенты поглощения; установлено, что максимальное пропускания имеет место в диапазоне 200–800 мкм и соответствующие коэффициенты поглощения логитерия поставильном и соответствующие коэффициенты поглощения для этого диапазона составляют менее 1 см⁻¹.

Ключевые слова: германий, коэффициент поглощения, изотопически чистые монокристаллы, терагерцовый спектральный диапазон (ТГц), фононный спектр.

DOI: 10.51368/1996-0948-2024-1-80-84

Введение

Германий (Ge), как кристаллы, так и его соединения, широко используется в науке и

Кропотов Григорий Иванович¹, ген. директор, к.ф.-м.н. E-mail: grigorykropotov@tydex.ru Каплунов Иван Александрович², профессор, д.т.н. E-mail: kaplunov.ia@tversu.ru Рогалин Владимир Ефимович³, зав. лаб., д.ф.-м.н. E-mail: rogalin@mail.ru Шахмин Алексей Александрович¹, вед. инженер, к.ф.-м.н. E-mail: AlexeyShakhmin@tydex.ru Буланов Андрей Дмитриевич⁴, директор, д.х.н., чл.-корр. РАН E-mail: bulanov@ihps-nnov.ru ¹ ООО «Тидекс». Россия, 194292, Санкт-Петербург, Домостроительная ул., 16. ² Тверской государственный университет. Россия, 170100, Тверь, ул. Желябова, 33. ³ Институт электрофизики и электроэнергетики РАН. Россия, 191186, Санкт-Петербург, Дворцовая набережная, 18. ⁴ Институт химии высокочистых веществ им. Г. Г. Девятых РАН. Россия, 603951, г. Нижний Новгород, ул. Тропинина, 49.

Статья поступила в редакцию 4.12.2023 Принята к публикации 20.02.2024 Шифр научной специальности: 1.3.6, 1.3.8, 2.2.7.

© Кропотов Г. И., Каплунов И. А., Рогалин В. Е., Шахмин А. А., Буланов А. Д., 2024

технике [1]. Если первоначально чистые монокристаллы Ge выращивались в интересах полупроводниковой электроники, то в настоящее время самым востребованным направлением использования германия является оптика инфракрасного диапазона (ИК) (работающая в атмосферных окнах 3-5 мкм и 8-14 мкм). Для ИК-техники на основе Ge изготавливают детали проходной оптики (линзы, окна), а также акустооптические элементы [2, 3]. Высовершенный сококачественный монокристаллический германий применяется в детекторах гамма-излучений [4] и для подложек фотоэлектрических преобразователей [2].

В настоящее время получает серьезное развитие оптика терагерцового (ТГц) спектрального диапазона (0,1–10 ТГц; 3–300 см⁻¹; ~ 3 мм – 30 мкм) [5–8]. Проникновение такого излучения в органическую среду в отсутствии ионизирующего влияния стимулирует активные исследования возможностей использования приборов на терагерцовом излучении в медицине [9, 10].

Активно расширяется использование ТГц-приборов для контроля технологических процессов производства продуктов, анализа состава материалов, контроля безопасности, для дистанционного обнаружения отравляющих, взрывчатых, наркотических веществ, для тестирования полупроводников и изделий из них. Одной из проблем ТГц-диапазона является выбор материала для оптических элементов, набор которых пока недостаточен; в той или иной степени имеют место ограничения использования известных органических и кристаллических материалов [6].

Для оптики ТГц-диапазона активно применяется чистый (с большим удельным электросопротивлением) кремний [5], а возможности германия в этой области спектра исследовались достаточно ограничено [11, 12], однако они показали возможность использования акустооптики из германия в диапазоне 200– 800 мкм. Это оказалось важным ввиду недостатка материалов акустооптики для ТГцдиапазона.

Совершенствование методов химической очистки и технологии выращивания чистых монокристаллов привело к пониманию, что в изотопически чистых монокристаллах атом другого изотопа воспринимается кристаллической решеткой, как некая разновидность точечного дефекта, влияющего на фононные процессы в кристалле [13]. В то же время, выяснилось, что изотопическая чистота позволяет получить монокристаллы с заметно отличающимися свойствами, а развитие технологии получения со временем может сделать производство изотопически чистых монокристаллов экономически рентабельным.

Природный германий, как и значительное число химически чистых элементарных веществ, состоит из нескольких изотопов, отличающихся массовым числом изотопа и его процентным содержанием: ${}^{70}\text{Ge} - 20,57 \text{ %},$ ${}^{72}\text{Ge} - 27,45 \text{ %},$ ${}^{73}\text{Ge} - 7,75 \text{ %},$ ${}^{74}\text{Ge} - 36,50 \text{ %},$ ⁷⁶Ge – 7,73 %. Химические и физические свойства изотопов практически не различаются, кроме тех, что зависят от массы. В изотопически чистых монокристаллах наблюдается сдвиг полос поглощения в фононном спектре [13, 14]. В кристаллах имеет место аномалия в температурных зависимостях термоэдс и теплопроводности [15]. Изотопически чистые монокристаллы германия отличаются от природных кристаллов по таким характеристикам, как температура фазового перехода, параметры элементарной ячейки, коэффициенты поглощения и отражения излучения, наблюдается существенное отличие в распространении звуковых волн [16, 17].

Исследования изотопически чистых монокристаллов Ge связаны с перспективными направлениями его использования в электронике, оптике (в том числе, оптике терагерцового диапазона) и других областях.

В данной работе было впервые в едином эксперименте выполнено исследование оптического пропускания германия в терагерцовом спектральном диапазоне для всех пяти стабильных изотопов германия.

Методика, объекты исследования, результаты

В работе исследование оптического пропускания в терагерцовом спектральном диапазоне выполнено для всех пяти стабильных изотопов германия (⁷⁰Ge, ⁷²Ge, ⁷³Ge, ⁷⁴Ge, ⁷⁶Ge) и проведено сравнение с монокристаллами природного состава. Нелегированные монокристаллы с высоким удельным электросопротивлением выращены в лаборатории Института роста кристаллов (IKZ, г. Берлин) методом Чохральского в кристаллографическом направлении <100> из кварцевого тигля в среде высокочистого аргона [18].

Спектральное пропускание образцов в диапазоне 30–670 мкм изучалось с использованием фурье-спектрометра Vertex 70 (Bruker); в спектральном диапазоне 150–3000 мкм – с использованием прибора TeraK8 (Menlo-Systems). Методика измерений подробно изложена в работе [19].

Расчет показателей поглощения (ослабления) α проводился по стандартной методике, учитывающей многократные отражения [11], абсолютная погрешность расчетов – $\Delta \alpha$ определялась согласно работе [20].

На рисунке представлены спектры пропускания и поглощения для изотопов германия в диапазоне 30–3000 мкм. Максимальным пропусканием и, соответственно, минимальным коэффициентом поглощения обладают монокристаллы в диапазоне 200–800 мкм. Рассчитанный коэффициент поглощения для этого диапазона составил менее 1 см⁻¹ для всех образцов, кроме изотопа ⁷⁶Ge, который имел меньшую величину оптического пропускания и более высокие значения коэффициента поглощения практически во всем рассматриваемом спектральном диапазоне.



Рис. Спектры пропускания (а) и поглощения (б) изотопов германия

Заключение

Методом оптической спектроскопии впервые для всех пяти стабильных изотопов германия (⁷⁰Ge, ⁷²Ge, ⁷³Ge, ⁷⁴Ge, ⁷⁶Ge) исследовано оптическое пропускание в терагерцовом спектральном диапазоне до 3000 мкм.

Показано, что минимальное поглощение в интервале длин волн 30–3000 мкм имеет место в диапазоне 200–800 мкм и соответствующий коэффициент поглощения для этого диапазона составляет менее 1 см⁻¹ для большинства исследованных монокристаллов изотопов.

В диапазоне 1000–3000 мкм обнаружена тенденция зависимости роста коэффициента поглощения при увеличении массового числа изотопа. Работа выполнена в рамках государственного задания по научной деятельности № 0817-2023-0006, № 75-03-2022-056 и № 122031000234-2 с использованием ресурсов Центра коллективного пользования Тверского государственного университета и ресурсов ООО «Тидекс».

ЛИТЕРАТУРА

1. *Claeys L., Simoen E.* Germanium–based technologies: from materials to devices. – Berlin: Elsevier, 2007.

2. *Каплунов И. А., Рогалин В. Е. /* Фотоника. 2019. Т. 13. № 1. С. 88–106.

3. Молчанов В. Я., Китаев Ю. И., Колесников А. И., Нарвер В. Н., Розенитейн А. З., Солодовников Н. П., Шаповаленко К. Г. Теория и практика современной акустооптики. – М.: МИСиС, 2015.

4. https://iftp.ru/cat/blok-detektirovaniyakoaksialnyy-tipa-bdeg/

5. http://www.tydexoptics.com/ru/products/thz_opti cs/thz_materials/

6. Рогалин В. Е., Каплунов И. А., Кропотов Г. И. / Опт. и спектр. 2018. Т. 125. № 6. С. 851–863.

7. *Никитин П. А.* / Светотехника. 2022. № 5. С. 52–58.

8. Каплунов И. А., Кропотов Г. И., Рогалин В. Е., Шахмин А. А. / Опт. и спектр. 2020. Т. 128. № 10. С. 1473–1477.

9. Dolganova I. N., Aleksandrova P. V., Chernomyrdin N. V., Beshplav S.-I. T., Kosyrkova A. V., Nikitin P. V., Gavdush A. A., Reshetov I. V., Tuchin V. V., Zaytsev K. I. / Proc. SPIE. 2019. Vol. 11073. Art. number 110730R.

10. Zaytsev K. I., Dolganova I. N., Chernomyrdin N. V., Katyba G. M., Gavdush A. A., Cherkasova O. P., Komandin G. A., Shchedrina M. A., Khodan A. N., Ponomarev D. S., Reshetov I. V., Karasik V. E., Skorobogatiy M., Kurlov V. N., Tuchin V. V. / J. Opt. 2020. Vol. 22. № 1. Art. number 013001.

11. Каплунов И. А., Колесников А. И., Кропотов Г. И. Рогалин В. Е. / Опт. и спектр. 2019. Т. 126. № 3. С. 271–274.

12. Волошинов В. Б., Никитин П. А., Герасимов В. В., Князев Б. А., Чопорова Ю. Ю. / Квант. электрон. 2013.Т. 43. № 12. С. 1139–1142.

13. *Жернов А. П., Инюшкин А. В. /* УФН. 2001. Т. 171. № 8. С. 827–854.

14. Кропотов Г. И., Буланов А. Д., Рогалин В. Е., Каплунов И. А., Шахмин А. А. / ДАН. 2023. Т. 511. С. 10–15.

15. Inyushkin A. V., Taldenkov A. N., Gibin A. M., Gusev A. V., Pohl H.-J. / Phys. stat. sol. (C). 2005. Vol. 1. Is. 11. P. 2995–2998.

16. Кулеев И. Г., Кулеев И. И., Инюшкин А. В., Ожогин В. И. / ЖЭТФ. 2005. Т. 128. Вып. 2 (8). С. 370–380.

17. Hu M. Y., Sinn H., Alatas A., Sturhahn W., Alp E. E., Wille H.-C., Shvyd'ko Yu. V., Sutter J. P., Ozhogin V. I., Rodriguez S., Colella R., Kartheuser E., Villeret M. A. / Phys Rev. B. 2003. Vol. 67. P. 113306. 18. Churbanov M. F., Gavva V. A., Bulanov A. D., Abrosimov N. V., Kozyrev E. A., Andryushchenko I. A., Lipskii V. A., Adamchik S. A., Troshin O. Yu., Lashkov A. Yu., Gusev A. V. / Cryst. Res. Technol. 2017. Vol. 52. № 4. P. 1700026(6). Кропотов Г. И., Шахмин А. А., Каплунов И. А., Рогалин В. Е. / Фотоника. 2023. Т. 17. № 5. С. 378–392.
20. Каплунов И. А., Колесников А. И., Талызин И. В.,

Седова Л. В., Шайович С. Л. / Опт. журн. 2005. Т. 72. № 7. С. 76–84.

PACS: 32.10.Bi, 61.72.uf

Particular of radiation transmission of monoisotopic germanium single crystals in the terahertz spectral range

G. I. Kropotov¹, I. A. Kaplunov², V. E. Rogalin³, A. A. Shakhmin¹ and A. D. Bulanov⁴

¹ TYDEX, LLC 16 Domostroitelnaya st., St. Petersburg, 194292, Russia E-mail: grigorykropotov@tydex.ru

> ² Tver State University 33 Zhelyabova st., Tver, 170100, Russia

³ Institute of Electrophysics and Electric Power RAS 18 Dvorzovaya Naberezhnaya, St. Petersburg, 191186, Russia

⁴ Devyatykh Institute of Chemistry of High-Purity Substances RAS 48 Tropinina st., Nizhny Novgorod, 603951, Russia

Received 4.12.2023; accepted 20.02.2024

On samples of isotopically pure germanium single crystals obtained from all five stable isotopes (70 Ge, 72 Ge, 73 Ge, 74 Ge, 76 Ge), radiation transmittance values were measured in the terahertz spectral range (for wavelengths 30–3000 µm). Absorption coefficients were calculated; It has been found that maximum transmittance occurs in the range of 200–800 µm and the corresponding absorption coefficients for this range are less than 1 cm⁻¹.

Keywords: germanium, absorption coefficient, isotopes, terahertz spectral range (THz), phonon spectrum.

REFERENCES

- 1. Claeys L. and Simoen E., Germanium-based technologies: from materials to devices, Berlin, Elsevier, 2007.
- 2. Kaplunov I. A. and Rogalin V. E., Fotonics, 13 (1), 88-106 (2019) [in Russian].
- 3. Molchanov V. Ya., Kitayev Yu. I., Kolesnikov A. I., Narver V. N., Rozenshteyn A. Z., Solodovnikov N. P. and Shapovalenko K. G., Teoriya i praktika sovremennoy akustooptiki, Moscow, MISiS, 2015 [in Russian].
- 4. https://iftp.ru/cat/blok-detektirovaniya-koaksialnyy-tipa-bdeg/
- 5. http://www.tydexoptics.com/ru/products/thz_optics/thz_materials/
- 6. Rogalin V. E., Kaplunov I. A. and Kropotov G. I., Opt. Spectr. 125 (6), 1053-1064 (2018).
- 7. Nikitin P. A., Svetotekhnika 5, 52–58 (2022) [in Russian].
- 8. Kaplunov I. A., Kropotov G. I., Rogalin V. E. and Shakhmin A. A., Opt. Spectr. 128 (10), 1583-1587 (2020).

9. Dolganova I. N., Aleksandrova P. V., Chernomyrdin N. V., Beshplav S.-I. T., Kosyrkova A. V., Nikitin P. V., Gavdush A. A., Reshetov I. V., Tuchin V. V. and Zaytsev K. I., Proc. SPIE **11073**. Art. number 110730R (2019).

10. Zaytsev K. I., Dolganova I. N., Chernomyrdin N. V., Katyba G. M., Gavdush A. A., Cherkasova O. P., Komandin G. A., Shchedrina M. A., Khodan A. N., Ponomarev D. S., Reshetov I. V., Karasik V. E., Skorobogatiy M., Kurlov V. N. and Tuchin V. V., J. Opt. **22** (1). Art. number 013001 (2020).

11. Kaplunov I. A., Kolesnikov A. I., Kropotov G. I. and Rogalin V. E., Opt. Spectr. 126 (3), 191-194 (2019).

12. Voloshinov V. B., Nikitin P. A., Gerasimov V. V., Knyazev B. A. and Choporova Yu. Yu., Quant. Electron. 43 (12), 1139–1142 (2013) [in Russian].

13. Inyushkin A. V. and Zhernov A. P., Phys.-Uspekhi 44 (8), 785-811 (2001).

14. Kropotov G. I., Bulanov A. D., Rogalin V. E., Kaplunov I. A. and Shakhmin A. A., J. Doklady Phys. **511**, 10–15 (2023) [in Russian].

15. Inyushkin A. V., Taldenkov A. N., Gibin A. M. and Gusev A. V., Pohl H.-J., Phys. stat. sol. (C), **1** (11), 2995–2998 (2005).

16. Kuleev I. G., Kuleev I. I., Inyushkin A. V. and Ozhogin V. I., Exp. Theor. Phys. 101, 322-330 (2005).

17. Hu M. Y., Sinn H., Alatas A., Sturhahn W., Alp E. E., Wille H.-C., Shvyd'ko Yu. V., Sutter J. P., Ozhogin V. I., Rodriguez S., Colella R., Kartheuser E. and Villeret M. A., Phys Rev. B **67**, 113306 (2003).

18. Churbanov M. F., Gavva V. A., Bulanov A. D., Abrosimov N. V., Kozyrev E. A., Andryushchenko I. A., Lipskii V. A., Adamchik S. A., Troshin O. Yu., Lashkov A. Yu. and Gusev A. V., Cryst. Res. Technol. **52** (4), 1700026(6) (2017).

19. Kropotov G. I., Shakhmin A. A., Kaplunov I. A. and Rogalin V. E., Photonics 17 (5), 378–392 (2023) [in Russian].

20. Kaplunov I. A., Kolesnikov A. I., Talyzin I. V., Sedova L. V. and Shaiovich S. L., J. Opt. Technol. **72** (7), 564–571 (2005).