



УКРАЇНА

(19) UA

(11) 162613

(13) U

(51) МПК

C30B 11/02 (2006.01)

C30B 11/14 (2006.01)

C30B 29/16 (2006.01)

C30B 29/22 (2006.01)

НАЦІОНАЛЬНИЙ ОРГАН
ІНТЕЛЕКТУАЛЬНОЇ ВЛАСНОСТІ
ДЕРЖАВНА ОРГАНІЗАЦІЯ
"УКРАЇНСЬКИЙ НАЦІОНАЛЬНИЙ
ОФІС ІНТЕЛЕКТУАЛЬНОЇ
ВЛАСНОСТІ ТА ІННОВАЦІЙ"

(12) ОПИС ДО ПАТЕНТУ НА КОРИСНУ МОДЕЛЬ

(21) Номер заявки:	u 2025 04360	(72) Винахідник(и):	Ніжанковський Сергій Вікторович (UA), Гринь Леонід Олексійович (UA), Романенко Андрій Олександрович (UA)
(22) Дата подання заявки:	08.09.2025	(73) Володілець (володільці):	ІНСТИТУТ МОНОКРИСТАЛІВ НАЦІОНАЛЬНОЇ АКАДЕМІЇ НАУК УКРАЇНИ, просп. Науки, 60, м. Харків, 61072 (UA)
(24) Дата, з якої є чинними права інтелектуальної власності:	09.04.2026		
(46) Публікація відомостей про державну реєстрацію:	08.04.2026, Бюл.№ 14		

(54) СПОСІБ ОТРИМАННЯ ВИСОКОГРАДІЄНТНИХ ДОПОВАНИХ ОКСИДНИХ МОНОКРИСТАЛІВ ПРИ ВИРОЩУВАННІ МЕТОДОМ ГОРИЗОНТАЛЬНОЇ СПРЯМОВАНОЇ КРИСТАЛІЗАЦІЇ

(57) Реферат:

Спосіб отримання високоградієнтних допованих оксидних монокристалів при вирощуванні методом горизонтальної спрямованої кристалізації включає встановлення у вакуумній камері ростової печі в середині теплової зони подвійного тигля із молібдену. У внутрішній тигель з отворами завантажують сировину з допантом, у зовнішній тигель із затравочним кристалом завантажують сировину без допанта, відкачують з камери повітря, нагрівають та розплавляють сировину, підплавляють монокристалічну затравку, вирощують кристал у захисному газовому середовищі шляхом переміщення тигля з монокристалом через градієнтне теплове поле, охолоджують монокристал до температури 18-24 °С. Швидкість переміщення подвійного тигля на етапі росту кристала змінюється згідно з послідовністю: $V_0 \rightarrow V \rightarrow V_0$ в діапазоні від 0 до 10 мм/год, де $V < V_0$.

UA 162613 U

Корисна модель належить до технології вирощування допованих монокристалів з розплаву і застосовується в галузі лазерної техніки, зокрема стосується отримання активних елементів з високим градієнтом розподілу допанта по товщині.

На даний час підвищується інтерес до застосування тонких (до 3 мм) лазерних елементів (дискові лазерні елементи) з високою концентрацією допанта в наукових та промислових цілях для потужних дискових лазерів. Завдяки цьому, а також оптимальній геометрії дискові лазерні елементи мають високу якість генерованого пучка та низькі енергетичні втрати, але отримання високих концентрацій допанта є складною задачею. Крім того, є невирішена проблема, що впливає на ефективність роботи таких активних елементів, яка полягає в нерівномірному розподілі поглиненої енергії вздовж напрямку поширення променю при однорідному розподілі допанта по товщині елемента, що призводить до неоднорідного нагрівання матеріалу та викликає так званий ефект теплової лінзи [1]. В кінцевому підсумку це знижує ефективність лазерної генерації та підвищує поріг генерації. Дана проблема може бути вирішена, наприклад, градієнтним розподілом допанта (з градієнтом концентрації допанта) в кристалі вздовж напрямку поширення променю накачування. Градієнтно-доповані кристали продемонстрували високу ефективність у пом'якшенні теплових ефектів при поглинанні світла накачування, що в результаті підвищує ефективність лазерної генерації.

Отже, актуальною задачею є отримання високого градієнта концентрації допанта на малій товщині, що забезпечить більшу потужність та ефективність лазерної генерації при використанні вирощених кристалів як тонких дискових лазерних елементів [2].

Відомим способом реалізації підвищення ефективності лазерної генерації за рахунок зменшення неоднорідності нагрівання матеріалу є оптимізація параметрів лазерної системи, а саме: вибір форми елемента та напрямку проходження променю накачування в його об'ємі [3]. Даний спосіб дозволяє змодельовати необхідні параметри активного елемента для отримання майже рівномірного розподілу поглинання світла накачування в об'ємі, що призводить до зменшення неоднорідності нагрівання матеріалу. Недоліком даного способу є складність практичної реалізації виготовлення необхідної форми елемента та висока точність дотримання оптимального напрямку проходження променю накачування.

Відомим способом реалізації підвищення ефективності лазерної генерації за рахунок зменшення неоднорідності нагрівання матеріалу є отримання методом Кіропулоса допованого кристала Nd:YAG з неоднорідним розподілом допанта вздовж напрямку вирощування [4], де концентрація домішки поступово збільшувалась від 0,17 ат. % до 0,38 ат. % на довжині кристала 40 мм, що дозволило мінімізувати теплові ефекти та в результаті цього збільшити вихідну потужність лазерного пучка.

Недоліком даного способу є незначний градієнт концентрації допанта (0,005 ат. %/мм), що обмежує отримання більшої вихідної потужності при застосуванні вирощеного кристала як дискових лазерних елементів.

Відомим способом реалізації підвищення ефективності лазерної генерації за рахунок зменшення неоднорідності нагрівання матеріалу є отримання допованого кристала Yb³⁺:YAG з неоднорідним розподілом допанта вздовж напрямку вирощування методом горизонтальної спрямованої кристалізації (ГСК) [5], що включає вирощування кристала з молібденового тигля, який завантажується з однієї (передньої) сторони сировиною YAG без допанта, а з іншої (кінцевої) сировиною з допантом (Yb³⁺ (20 ат. %):YAG), переміщується через температурну зону зі швидкістю 2 мм/год, при цьому, враховуючи довжину тигля і зони нагріву, а також розподіл вихідної сировини в тиглі і коефіцієнт розподілу допанта в даному кристалі, градієнт концентрації домішки має характер, наближений до лінійного і складає в даному випадку 0,05 ат. %/ мм. Недоліком відомого способу є недостатній градієнт концентрації допанта в порівнянні з найбільш оптимальним розподілом, описаний в роботі авторів [6].

Найближчим аналогом до корисної моделі є спосіб вирощування градієнтно допованих оксидних монокристалів методом горизонтальної спрямованої кристалізації та пристрій для його виконання, описаний у заявці на патент України № а202500244 від 20.01.2025, опублікованій 11.06.2025 бюлетень № 24/2025, який передбачає встановлення у вакуумній камері ростової печі в середині теплової зони подвійного тигля (один всередині іншого) із молібдену, причому у внутрішній тигель, що має отвори для сполучення розплаву між тиглями, завантажується сировина з допантом, а у зовнішній із затравочним кристалом завантажується сировина без допанта, відкачування з камери повітря, нагрівання та розплавлення сировини, підплавлення монокристалічної затравки, вирощування кристала у захисному газовому середовищі шляхом переміщення тигля з монокристалом через градієнтне теплове поле та наступним охолодженням до температури 18-24 °С.

Недоліком даного способу є недостатній градієнт концентрації допанта у вирощеному кристалі (0,01 ат. %/мм), що обмежує отримання більшої вихідної потужності при застосуванні матеріала як дискових лазерних елементів.

В основу корисної моделі поставлено задачу створити спосіб вирощування високоградієнтних допованих монокристалів для застосувань як дискових лазерних елементів, що також дозволить керувати величиною градієнта концентрації допанта з різними значеннями коефіцієнта розподілу (k) в кристалі.

Поставлена задача вирішується тим, що спосіб отримання високоградієнтних допованих оксидних монокристалів при вирощуванні методом горизонтальної спрямованої кристалізації, який включає встановлення у вакуумній камері ростової печі в середині теплової зони подвійного тигля із молібдену, причому у внутрішній тигель з отворами завантажують сировину з допантом, у зовнішній тигель із затравочним кристалом завантажують сировину без допанта, відкачують з камери повітря, нагрівають та розплавляють сировину, підплавляють монокристалічну затравку, вирощують кристал у захисному газовому середовищі шляхом переміщення тигля з монокристалом через градієнтне теплове поле, охолоджують монокристал до температури 18-24 °С, згідно з корисною моделлю, швидкість переміщення подвійного тигля на етапі росту кристала змінюється згідно з послідовністю: $V_0 \rightarrow V \rightarrow V_0$ в діапазоні від 0 до 10 мм/год, при цьому $V < V_0$.

Суть корисної моделі пояснює креслення, на якому наведено пристрій, що використовує подвійний тигель, де:

- 1 - зовнішній тигель;
- 2 - затравочний кристал;
- 3 - сировина без допанта;
- 4 - внутрішній тигель;
- 5 - сировина з допантом;
- 6 - монокристал;
- 7 - отвори.

Запропонований спосіб отримання високоградієнтних допованих оксидних монокристалів при вирощуванні методом горизонтальної спрямованої кристалізації реалізується наступним чином: зовнішній тигель 1 із затравочним кристалом 2 завантажують сировиною без допанта 3, а внутрішній тигель 4, що розташований в кінці зовнішнього тигля, завантажують сировиною з допантом 5. В процесі росту монокристала 6 через отвори 7 у внутрішньому тиглі відбувається потрапляння допанта у зовнішній тигель, за рахунок чого поступово збільшується концентрація допанта у розплаві зовнішнього тигля. В залежності від швидкості переміщення подвійного тигля у вирощеному кристалі вздовж напрямку росту змінюється концентрація допанта. Так, якщо при початковій швидкості переміщення V_0 в кристалі утворюється градієнт концентрації G_0 , то при зменшенні швидкості переміщення на певній короткій ділянці кристалізації до V , в ній буде утворюватися градієнт G , причому $G/G_0 \approx V_0/V$. Таким чином, в кристалі утворюється шар матеріалу з високим градієнтом концентрації допанта, а його величина регулюється відповідним вибором швидкості переміщення V_0 та V .

Перевага запропонованого способу в порівнянні з аналогом полягає у значному (до 10 ат. % на 20 мкм) підвищенні градієнта концентрації допанта на певній ділянці кристала вздовж напрямку росту за рахунок зменшення швидкості переміщення подвійного тигля.

У граничному випадку (при $V=0$ мм/год) за рахунок значного потрапляння допанта у внутрішній тигель на певній ділянці в кристалі утворюється ступінчастий розподіл, що відповідає максимальному (до 10 ат. % на 20 мкм) градієнту концентрації допанта. Таким чином, запропонованим способом можна отримати заданий (від 0,01 ат. %/мм до 10 ат. % на 20 мкм) градієнт концентрації допанта вздовж напрямку росту на певній вузькій (від 20 мкм до 3 мм) ділянці кристала.

При обмеженій розчинності допанта в кристалі запропонований спосіб також дозволяє отримати в тонкому шарі монокристала (від 20 мкм до 3 мм) градієнт концентрації допанта в межах його розчинності.

Перевагою запропонованого способу також є здійснення контролю за величиною градієнта концентрації допанта з різними значеннями k в кристалі за рахунок зміни швидкості переміщення подвійного тигля через градієнтну зону.

В таблиці наведено приклад розподілу концентрації ітербію (Yb) у зразках вирощеного кристала Yb:YAG вздовж напрямку переміщення (коефіцієнт розподілу Yb в YAG близько 1,08 [7]) та градієнт концентрації допанта на ділянці кристала зі швидкістю переміщення V (приклади 1 і 2). Отримання високоградієнтних допованих оксидних монокристалів за допомогою запропонованого способу полягає в наступному. Після початку стаціонарного росту

швидкість переміщення від 1 мм до 4 мм в напрямку росту кристала становить $V_0=10$ мм/год, далі проводиться вирощування впродовж 24 годин зі швидкістю переміщення $V=0$ мм/год (приклад 1) та $V=0,1$ мм/год (приклад 2), потім проводиться вирощування зі швидкістю переміщення $V_0=10$ мм/год.

5

Таблиця

Зразки	Розподіл концентрації допанта (Yb) по довжині вирощеного кристала Yb:YAG, ат. %									Гradient концентрації допанта, ат%/мм
	Довжина, мм									
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	
Приклад 1	1,3	1,4	1,5	1,6	2,7	2,8	2,8	2,8	2,8	∞
Приклад 2	1,4	1,4	1,4	1,4	2,2	2,6	2,7	2,7	2,7	0,8

Спосіб отримання високоградієнтних допованих оксидних монокристалів при вирощуванні методом горизонтальної спрямованої кристалізації підтверджується наступними прикладами.

10 Приклад 1. Спосіб отримання високоградієнтних допованих оксидних монокристалів Yb:YAG.

У вакуумну камеру ростової печі в середину теплової зони встановлюють подвійний тигель з молібдену, зовнішній у вигляді човника із затравочним кристалом та з синтезованою сировиною YAG у вигляді таблеток та порошку, в якому в кінцевій частині розміщують додатковий внутрішній тигель з отворами для сполучення розплаву між тиглями, завантажують сировиною Yb (20 ат. %):YAG у вигляді таблеток та порошку, з камери відкачують повітря, сировина в обох тиглях нагрівається та розплавляється, напускається аргон (99,98 % чистоти) до тиску 0,15 МПа і проводять підплавлення монокристалічної затравки YAG, яка розміщена в передній частині зовнішнього тигля, та проводять вирощування кристала шляхом горизонтального переміщення тигля з розплавленою сировиною на першому етапі (розрощування кристала і початок стаціонарного росту) зі швидкістю 10 мм/год, на другому етапі (стаціонарний рост) швидкість зменшується до 0 мм/год на 24 год, далі (на третьому етапі) встановлюється швидкість переміщення 10 мм/год. і проводять завершення кристалізації, після чого вирощений кристал охолоджують шляхом зниження до температури 18 °C зі швидкістю 25 °C/год (таблиця, приклад 1).

25 Приклад 2. Спосіб отримання високоградієнтних допованих оксидних монокристалів Yb:YAG.

Вирощування монокристала проводиться аналогічно до прикладу 1 з відмінністю на другому етапі, а саме: вирощування монокристала на другому етапі здійснюється зі швидкістю переміщення 0,1 мм/год.

30 Встановлено, що для Прикладу 1 на відрізу 20 мкм утворюється ступінчастий розподіл співвідношення концентрацій від 1,6 ат. % до 2,7 ат. % з високим градієнтом. Для Прикладу 2 градієнт концентрацій допанта складає 0,8 ат%/мм. Вимірювання концентрації допанта встановлюється спектрометричним методом або проводиться сканування методом електронно-зондового мікроаналіза у вирізаній з вирощеного кристала пластині вздовж напрямку вирощування.

35 Запропонований спосіб отримання високоградієнтних допованих оксидних монокристалів при вирощуванні методом горизонтальної спрямованої кристалізації з використанням подвійного тигля (один в середині іншого) з програмою зміни швидкості переміщення при вирощуванні кристала значно підвищує градієнт концентрації допанта (таблиця, приклад 1 і 2) до ступінчастого 1,1 ат. % на 20 мкм (приклад 1) та до 0,8 ат. %/мм (приклад 2), а також забезпечує отримання контрольованої концентрації допанта.

40 Можливість практичної реалізації корисної моделі підтверджується вирощеними даним способом монокристалами Yb:YAG з високими градієнтами концентрацій ітербію в Інституті монокристалів НАН України.

45 ДЖЕРЕЛА ІНФОРМАЦІЇ:

1. J. Koerner, C. Vorholt, H. Liebetrau, M. Kahle, D. Kloeppel, R. Seifert, J. Hein, M. C. Kaluza, Measurement of temperature-dependent absorption and emission spectra of Yb:YAG, Yb:LuAG, and Yb:CaF₂ between 20 °C and 200 °C and predictions on their influence on laser performance/ J. Opt. Soc. Am. (2012), V. 29, P.2493-2502, DOI: 10.1364/JOSAB.29.002493.

50 2. V.A. Petrov, G.V. Kuptsov, A.O. Kuptsova, V.V. Atuchin, E.V. Stroganova, V.V. Petrov, Enhanced Yb:YAG Active Mirrors for High Power Laser Amplifiers/ Photonics (2023), V. 10, P. 849, DOI: 10.3390/photonics10070849.

3. S. W. Bian, Q. Chen, J. S. Qiu, X. X. Tang, W. Q. Ge, H. Liu, H. C. Wang, Y. L. Liu, Y. Z. Chen, Simulation design of laser diode array side-pumped polygonal Nd:YAG thin-disk laser/ Advanced Laser Technology and Application, Proceed., (2020), V. 11562, AOPC, DOI: 10.1117/12.2579802.

4. S. Ma, Z. Xiong, Z. Liu, L. Wang, R. Dou, Q. Zhang, M. Wei, T. Cheng, H. Jiang, Thermal effects and their suppression of end-pumped gradient-doped Nd:YAG crystals/ Infrared Physics & Technology (2025), V. 148, P. 105845, DOI: 10.1016/j.infrared.2025.105845.

5. M. Azrakantsyan, D. Albach, N. Ananyan, V. Gevorgyan, J.-C. Chanteloup, Yb³⁺:YAG growth with controlled doping distribution using modified horizontal direct crystallization/ Journal of Crystal Growth (2011), V. 329 P.39-43.

10 6. J.-C. Chanteloup, M. Arzakantsyan, S. Marrazzo, Defining the optimal gradient doped Yb³⁺:YAG disk for room and low temperature diode pumped solid-state laser operations/ High Power Laser Science and Engineering (2014), V. 2, e35, 6 pages. DOI: 10.1017/hpl.2014.38.

15 7. X. Xu, Z. Zhao, J. Xu, P. Deng, Distribution of ytterbium in Yb:YAG crystals and lattice parameters of the crystals/ Journal of Crystal Growth (2003), V. 255, № 3-4, P. 338-341 DOI: 10.1016/S0022-0248(03)01260-0.

ФОРМУЛА КОРИСНОЇ МОДЕЛІ

20 Спосіб отримання високоградієнтних допованих оксидних монокристалів при вирощуванні методом горизонтальної спрямованої кристалізації, який включає встановлення у вакуумній камері ростової печі всередині теплової зони подвійного тигля із молібдену, причому у внутрішній тигель з отворами завантажують сировину з допантом, у зовнішній тигель із затравочним кристалом завантажують сировину без допанта, відкачують з камери повітря, нагрівають та розплавляють сировину, підплавляють монокристалічну затравку, вирощують кристал у захисному газовому середовищі шляхом переміщення тигля з монокристалом через градієнтне теплове поле, охолоджують монокристал до температури 18-24 °С, який **відрізняється** тим, що швидкість переміщення подвійного тигля на етапі росту кристала змінюється згідно з послідовністю: $V_0 \rightarrow V \rightarrow V_0$ в діапазоні від 0 до 10 мм/год, при цьому $V < V_0$.

