



Croissance de fibres cristallines de Méta-borate de baryum (β -BBO) par la technique de micro-Pulling Down pour la conversion de fréquences dans le domaine VUV

**Nawal Ferdi, Régine Maillard, Marianne Cochez, Alain Maillard
(3^{ème} année de thèse)**

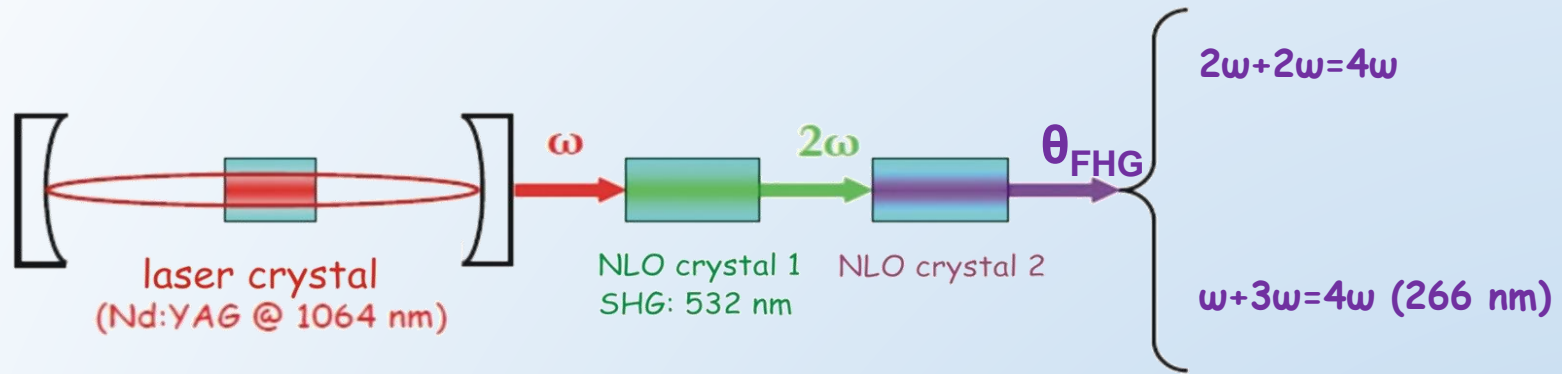
- Laboratoire Matériaux Optiques, Photonique et Systèmes, E.A. 4423
 - *nawal.ferdi@univ-lorraine.fr*

6 juillet 2021

Lasers à solide

Motivation

Génération de lumière UV (193 nm – 300 nm) par conversion de fréquences IR



Intérêt des lasers à solides :

- Meilleure qualité de faisceau
- Miniaturisation des dispositifs
- Durée de vie plus longue
- Coût d'utilisation faible

Application des lasers a solide :

- ✓ Micro-usinage : Marquer le verre, inox, bijoux...
- ✓ Secteur médical : chirurgie médicale
- ✓ Secteur militaire : diriger des cibles...
- ✓ Au laboratoire : synthèse photochimique ...
- ✓ Marché des écrans : Auditorium cinéma

Les Cristaux Non linéaires : pourquoi ?

Cahier des charges de base pour un cristal optique non linéaire:

- ✓ Transparence dans la gamme de longueur d'onde d'intérêt (depuis IR jusqu'à l'UV)
 - ✓ Non centrosymétrique et non cubique
 - ✓ Efficacité conversion des fréquences (coefficient non linéaire d_{eff} élevé)
 - ✓ Biréfringence permettre d'assurer un accord de phase
 - ✓ Seuil de dommage optique élevé,
 - ✓ Bonnes propriétés chimiques (hygroscopie) et thermomécaniques
- +** Faisabilité de la cristallogenèse → Cristal de bonne qualité optique

Application aux cristaux à base de borate

Les matériaux étudiés :

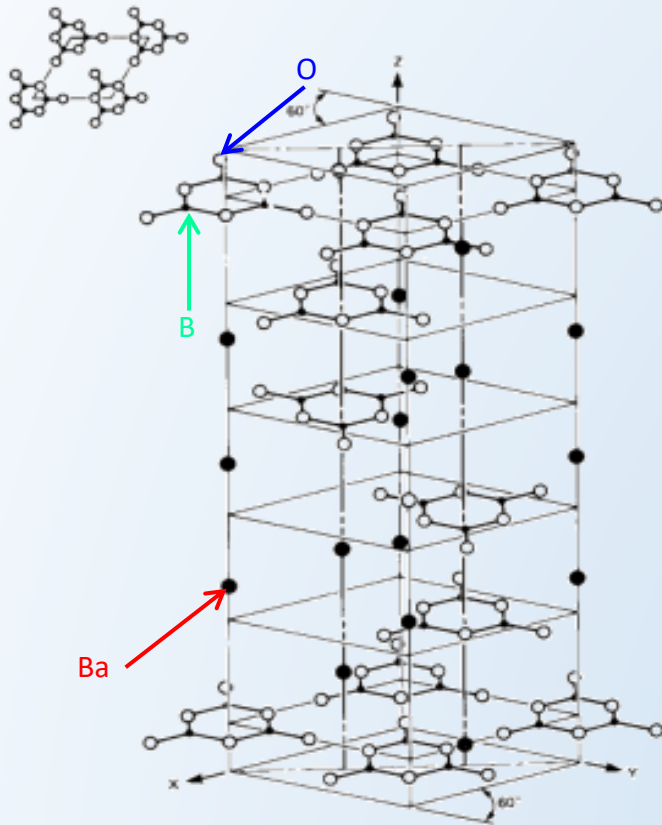
1) $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_4$

2) $\text{Li}_4\text{Sr}(\text{BO}_3)_2$ (Poster N° 563)

Méta-borate de baryum
BaB₂O₄ (β-BBO)

Introduction

BaB₂O₄: deux polymorphes α et β
 β -BaB₂O₄ : phase basse temperature
 α -BaB₂O₄ \rightleftharpoons β -BaB₂O₄ transition à 925 °C



Propriétés structurales	β -BaB ₂ O ₄
Unité structurale	[BO ₃] ³⁻
Système cristallin	Rhomboedric
Groupe d'espace	R3 _c
Paramètres de maille	a = b = 12.54 Å, c = 12.73 Å, Z = 6
Autres propriétés	
Biréfringence à 532 nm	0.132
d _{eff} type 1 (1064-532 nm)	1.29 pm.V ⁻¹
Domaine de transparence (nm)	189-3500
hygroscopie	Faible
Fusion congruente	Oui à 1095 °C

Croissance cristalline de β -BBO

En présence de flux (Na_2O , $\text{BaO}\dots$) :

- **Massif** par Top Seeded Solution Growth (Largement développé)
- **Fibre** par Laser Heated Pedestal Growth ^{1,2} (Deux essais uniquement)

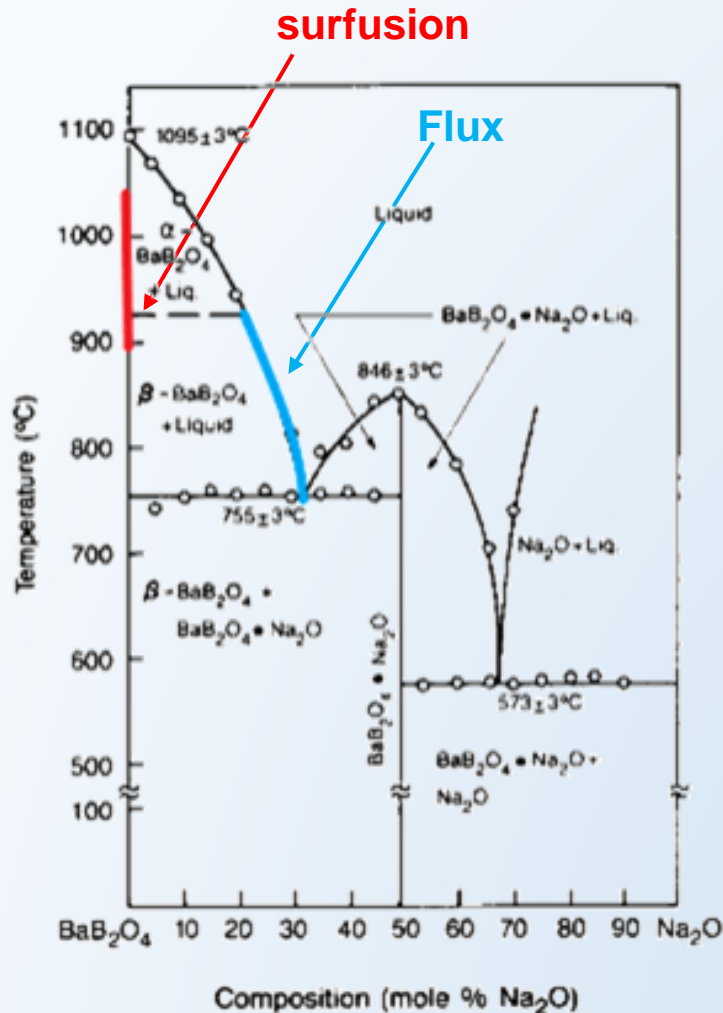
Sans flux (en surfusion) :

- **Massif** par Czochralski
Déjà réalisée au LMOPS (N.Ferdi)

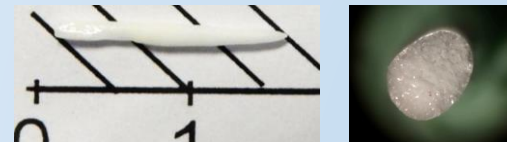
- **Fibre** par μ -Pulling Down

Deux tentatives de croissance :

- (A. Maillard, K. Lebbou) 2007 \rightarrow fibres α
- (M. Ferriol) 2017 \rightarrow fibres polycristallines biphasées α et β



Huang Q.Z. et.al. Acta Physica Sinica, **30-4**(1981) 559



¹ D. Y. Tang, R. K. Route. Journal of crystal growth, **91**(1-2), 81-89(1988).

² H. Jianguo, T. Dingyuan. Chinese Physics Letters, **7**(12), 568(1990).

Produits de départ

❖ Poudre BBO

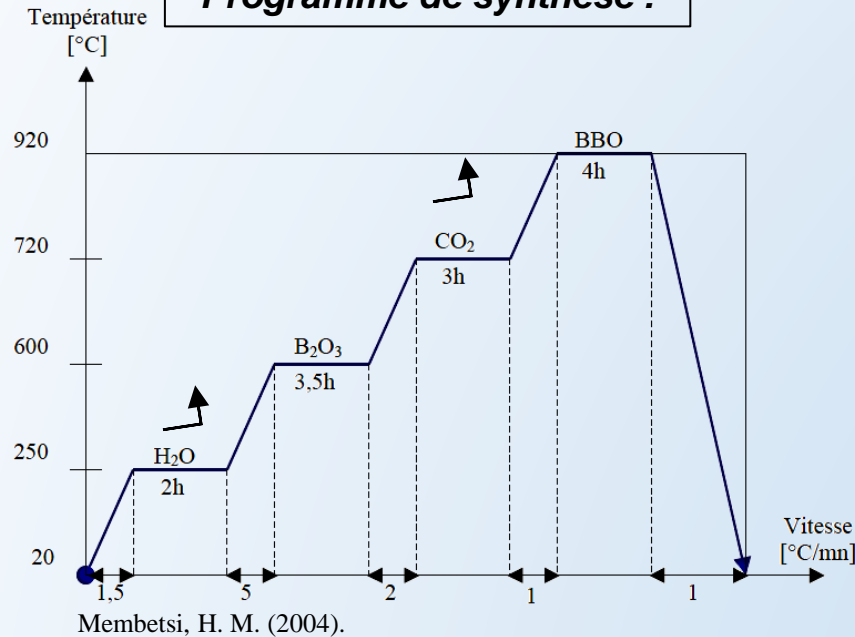
Synthétisée par voie solide selon la méthode carbonate



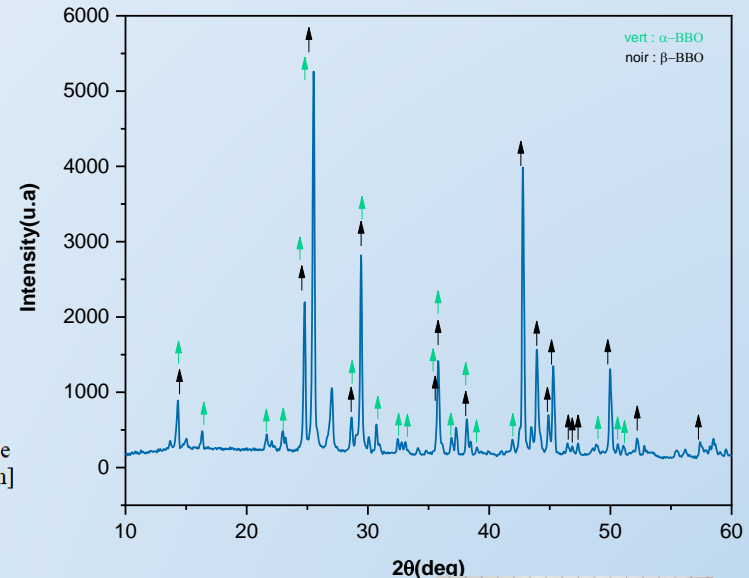
(traitement thermique jusqu'à **920°C**)



Programme de synthèse :



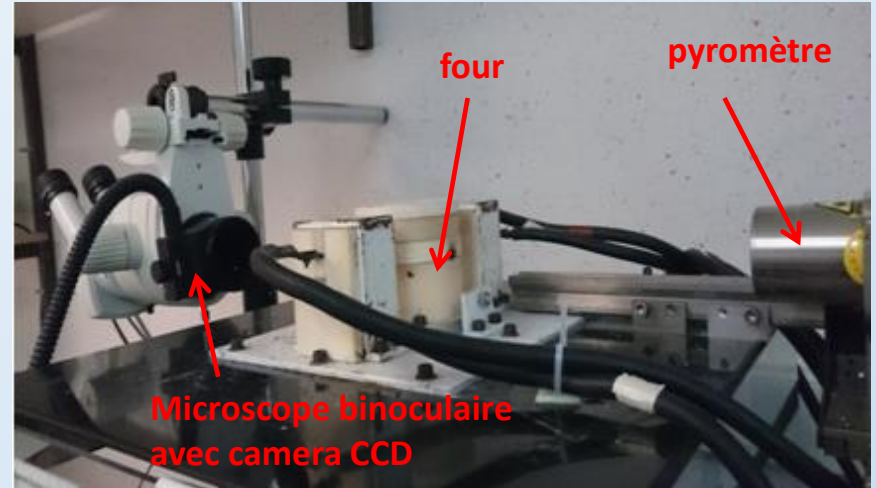
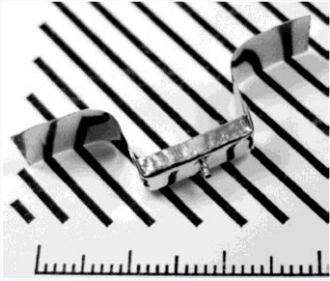
Caractérisation de la poudre par DRX :



❖ Cristaux BBO

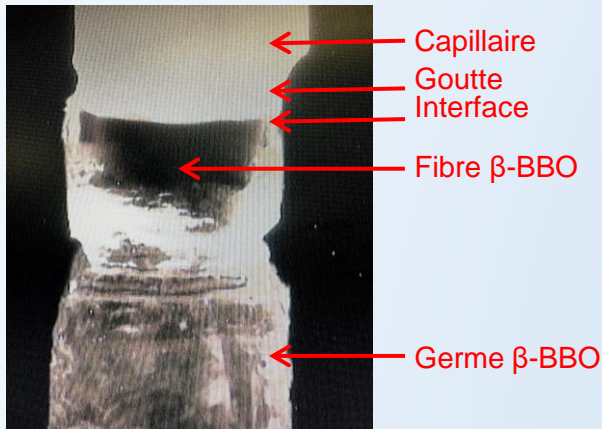
Obtenus par les croissances Czochralski

Croissance de fibres de β -BBO par μ -PD

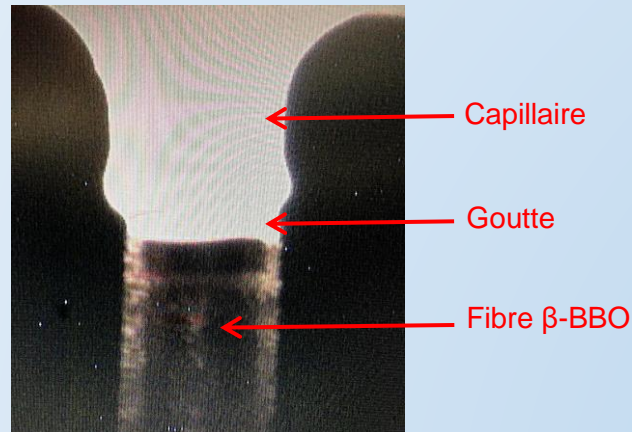


Conditions de croissance:

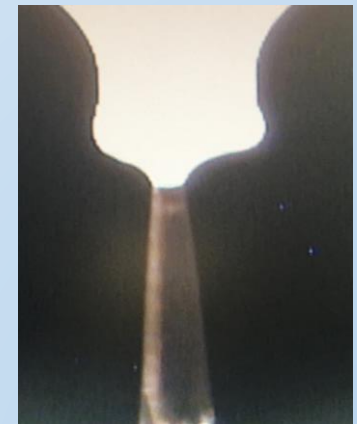
- Vitesse de tirage: 0,1 mm/min
- Germe cristallin de β -BBO orienté
- Atmosphère : air
- Température au niveau du capillaire : 1046°C - 1051°C



Début de tirage



Pendant le tirage



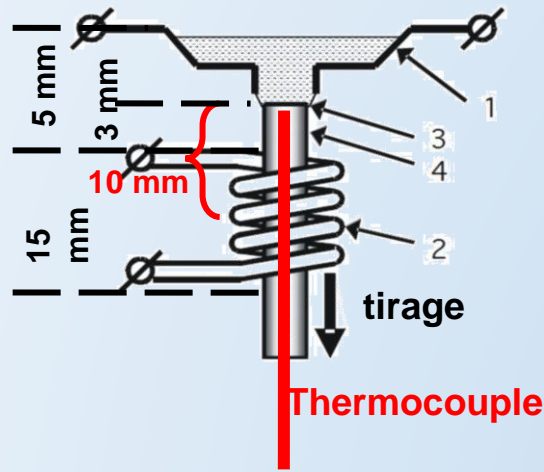
Fin de tirage

Paramètres thermiques

1 - Température de la goutte

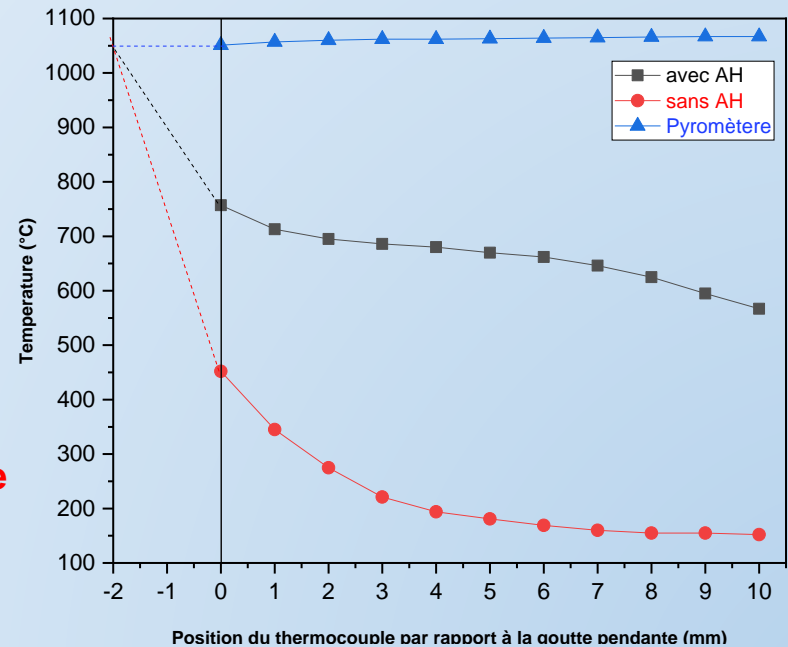
Mesurée au pyromètre au niveau de la sortie du capillaire
Température $\text{C} [1046 - 1049] \text{ } ^\circ\text{C}$

2 - Gradients thermo-axiaux



1. Creuset en Pt, 2. After Heater,
3. Interface, 4. Fibre

Mesures de gradients thermique au sein du four μ -PD:



Paramètres de croissance

- 1 - La température à la sortie du capillaire
- 2 - Gradient de température

3 - Intensité courant A.H

Tension constante = 2 V

Intensité courant injectée dans le A.H (Ampère)	30	35	37	40	42	45
--	----	----	----	----	----	----

4 - Géométrie de capillaire

Diamètre (mm)	0,7	0,7	0,7	0,8	1	1	1
Longueur (mm)	1	2	3	1	1	2	3

Paramètres de croissances

5 - Le germe utilisé

Germe β -BBO selon l'axe c axe optique du cristal, la section est hexagonale ou circulaire

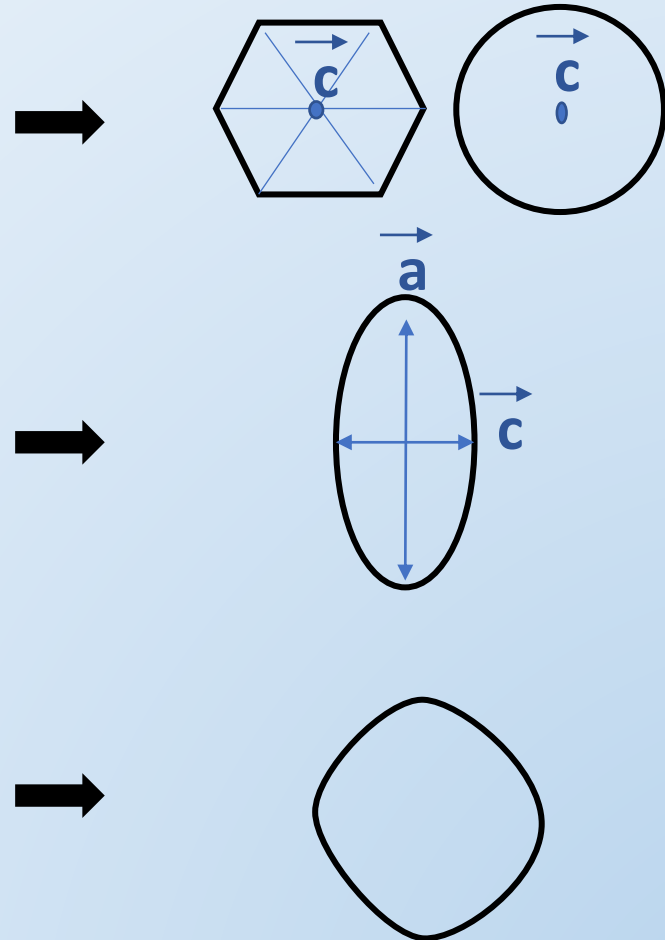
Mais : problème de clivage

Germe β -BBO selon l'axe a, la section est ovale

La direction de croissance la plus favorable !

Germe β -BBO selon l'angle de l'accord de phase ($22,9^\circ$, $47,7^\circ$..)

Représentation de la section transversale



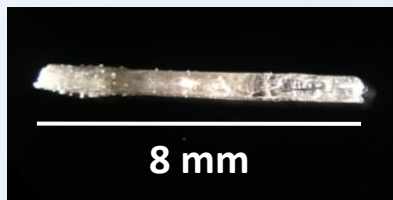
Fibres β -BBO obtenues sans AH

Polycristallines

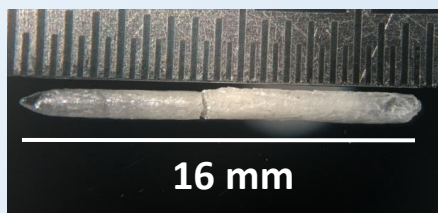
Germe β -BBO selon a
0.7 mm de diamètre

Monocristallines

β -BBO Fibre 1



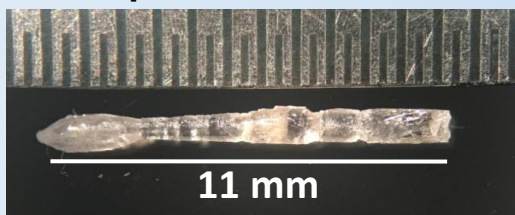
β -BBO Fibre 6



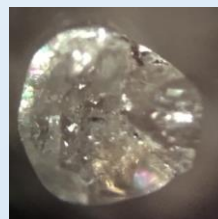
β -BBO Fibre 2



β -BBO Fibre 7

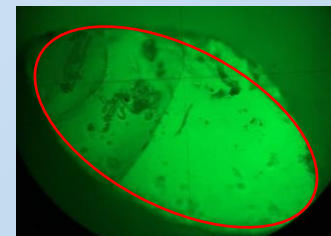


Coupes transversales



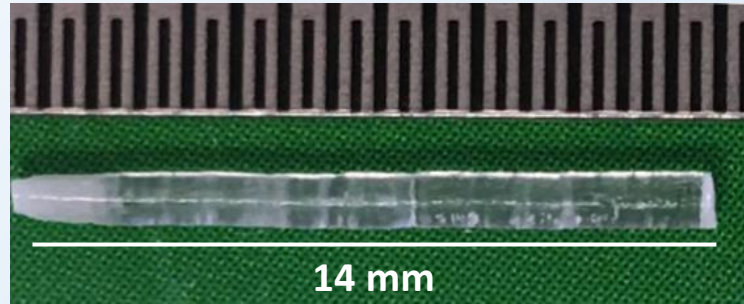
Gradient trop élevé
et instabilité
thermique

Coupe transversale après
polissage sous microscope



Fibres après modification de la positions de AH

α -BBO Fibre 12

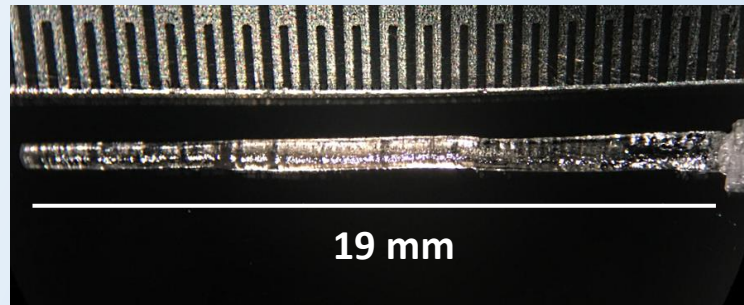


Coupe ovale

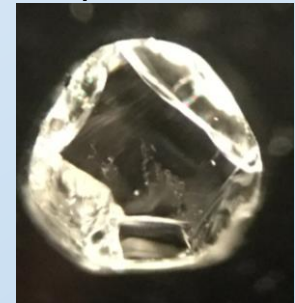


Germe β -BBO selon a
Capillaire (0,8x1) mm²
A.H = 42A

α -BBO Fibre 39

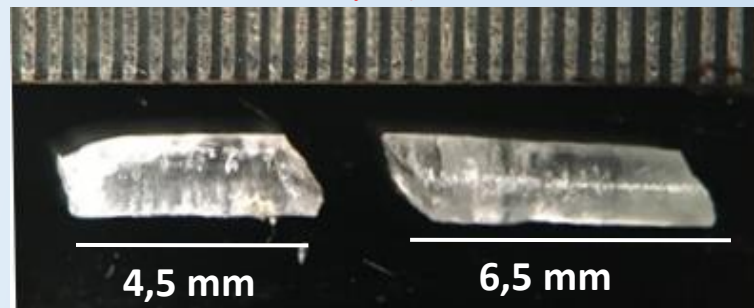


Coupe arrondie

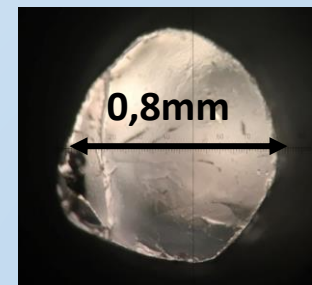


Germe β -BBO selon c
Capillaire (0,7x1) mm²
A.H = 40A

α -BBO Fibre 24



Coupe arrondie

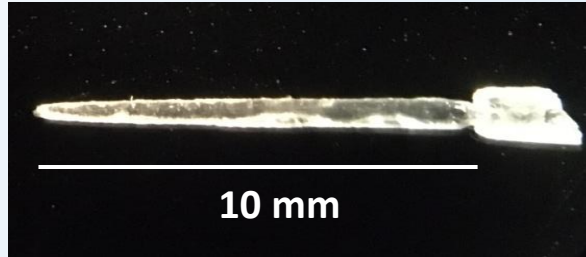


Germe β -BBO selon
SHG ($\theta = 22,9^\circ$)
Capillaire (1x1) mm²
A.H = 37 A

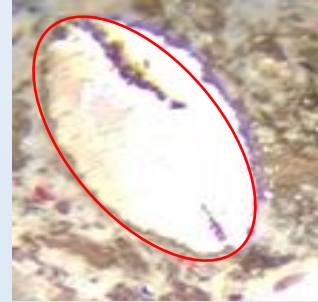
Fibres avec AH et modification de la longueur de capillaire

Germe β -BBO selon a
Capillaire (0,7x2) mm²
A.H = 45 A

β -BBO Fibre 12



Coupe Ovale

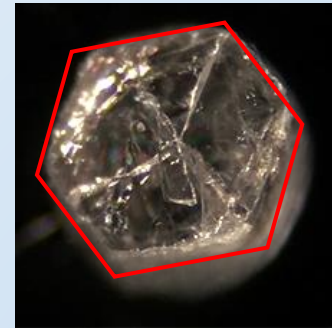


Germe β -BBO selon c
Capillaire (0,7x2) mm²
A.H = 40 A

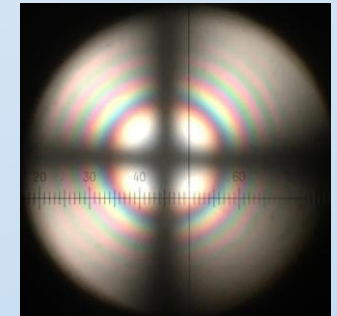
β -BBO Fibre 38



Coupe hexagonale

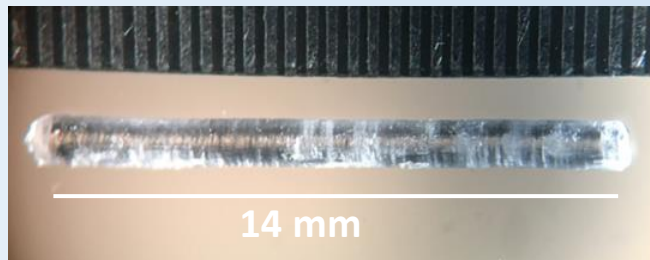


Interférogramme

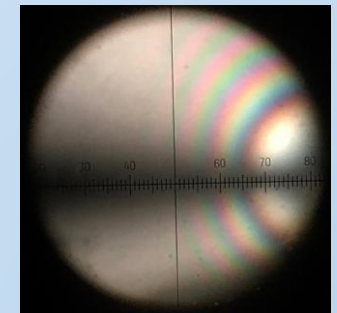
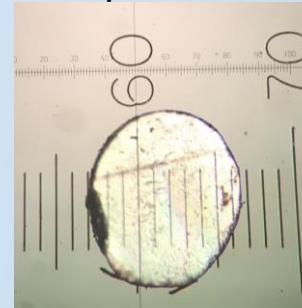


Germe β -BBO selon
SHG ($\theta=22,9^\circ$)
Capillaire (0,7x2) mm²
A.H = 35 A

β -BBO Fibre 44



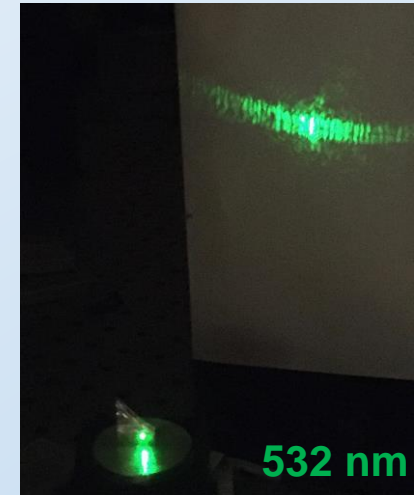
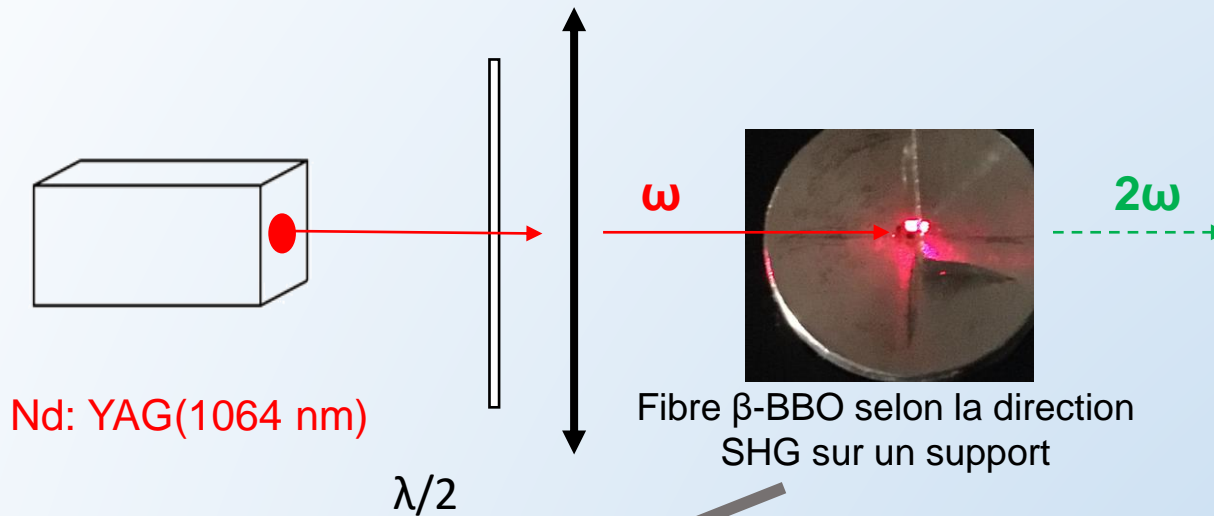
Coupe arrondie



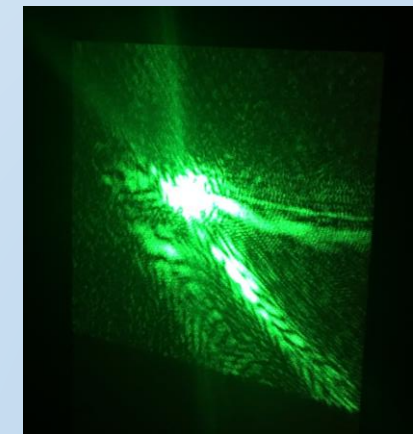
Génération Seconde Harmonique (SHG)

Objectif

Génération de lumière verte par conversion de type 1 de fréquences IR

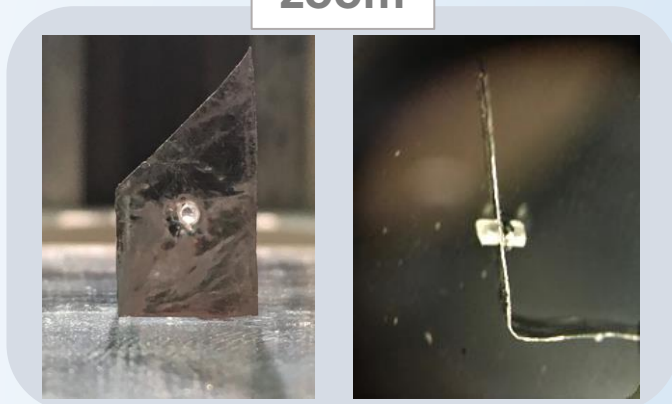


Mode continue



Mode impulsionnel

zoom



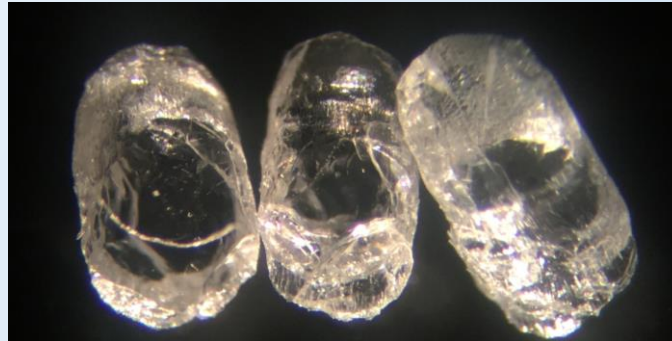
Fibre β -BBO sur un support

Conclusion et perspectives

Conclusion :

- Maîtrise de différents paramètres de croissance de fibres α et β
- Obtention de fibres transparentes et régulières selon a , c et l'angle d'accord de phase ($\theta = 22,8^\circ$) avec :
 - Conservation de la phase β -BBO
 - Conservation de l'orientation
- Tirage de fibre selon l'accord de phase UV ($\theta = 47,7^\circ$)

Premier essai →



Perspectives :

Étude des contraintes le long de la fibre
Amélioration du polissage des fibres
Test UV

Remerciements :

À CRISTAL LASER pour les germes β -BBO orientés