



HAL
open science

Croissance de couches minces cristallines par épitaxie en phase liquide : exemple du LiYF_4 dopé Sm^{3+} et Tb^{3+}

Gurvan Brasse, Jonathan Demaimay, Amandine Baillard, Pavel Loiko, Abdelmjid Benayad, Vivien Menard, Alain Braud, Patrice Camy

► To cite this version:

Gurvan Brasse, Jonathan Demaimay, Amandine Baillard, Pavel Loiko, Abdelmjid Benayad, et al.. Croissance de couches minces cristallines par épitaxie en phase liquide : exemple du LiYF_4 dopé Sm^{3+} et Tb^{3+} . OPTIQUE Normandie 2024, La Société Française d'Optique, Jul 2024, Rouen, France. hal-04655093

HAL Id: hal-04655093

<https://hal.science/hal-04655093>

Submitted on 21 Jul 2024

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

CROISSANCE DE COUCHES MINCES CRISTALLINES PAR EPITAXIE EN PHASE LIQUIDE : EXEMPLE DU LiYF_4 DOPÉ Sm^{3+} ET Tb^{3+}

Gurvan BRASSE, Jonathan DEMAIMAY, Amandine BAILLARD, Pavel LOIKO, Abdelmjid BENAYAD, Vivien MENARD, Alain BRAUD, Patrice CAMY

CIMAP – Centre de Recherche sur les Ions, les Matériaux et la Photonique UMR 6252 CEA-CNRS-ENSICAEN-Normandie Université 6 Boulevard du Marechal Juin – 14050 CAEN Cedex 4 France

gurvan.brasse@ensicaen.fr

RÉSUMÉ

La croissance par épitaxie en phase liquide sous atmosphère contrôlée et la caractérisation de couches cristallines de fluorures dopées terres-rares seront présentées, en s'appuyant sur les exemples de couches de LiYF_4 dopées Sm^{3+} et Tb^{3+} pour des applications laser en guide d'onde émettant dans le visible.

MOTS-CLEFS : *Épitaxie en phase liquide ; couches cristallines; terres-rares ; guide d'onde ;*

1. INTRODUCTION

Le CIMAP a développé au cours de ces dernières années une expertise unique en Europe pour la croissance de couches minces cristallines de fluorures par épitaxie en phase liquide (LPE). Cette méthode de croissance en flux permettant la croissance de couches monocristallines de plusieurs dizaines, voire centaines de microns d'épaisseur, est particulièrement intéressante pour l'élaboration de guides d'ondes laser. Le LiYF_4 est un cristal bien connu pour ces propriétés intéressantes, en tant que matériau laser, en particulier grâce à sa bonne conductivité thermique ($7.2 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$) mais également pour sa faible énergie de phonons (446 cm^{-1}). Les ions samarium (Sm^{3+}) et terbium (Tb^{3+}) sont quant à eux des ions dopants particulièrement intéressants, au regard de leurs transitions radiatives dans le domaine visible.

Cette communication présente le procédé d'élaboration par LPE de couches de LiYF_4 dopé Sm^{3+} et Tb^{3+} et leur caractérisation, pour la réalisation de dispositifs lasers compacts et brillants dans le domaine visible.

2. ÉPITAXIE EN PHASE LIQUIDE

Les bains à l'origine des couches de $\text{Sm}:\text{LiYF}_4$ et de $\text{Tb,Gd}:\text{LiYF}_4$ ont la composition molaire 73% LiF - 27% YF_3 , en présentant respectivement un dopage de 2.5 at.% en Sm^{3+} et de 12 at.% en Tb^{3+} codopé 5 at.% en Gd^{3+} , en substitution sur l'yttrium. La Fig. 1(a) présente le diagramme binaire $\text{LiF}-\text{YF}_3$ considéré, pour définir les températures de croissance en fonction des compositions

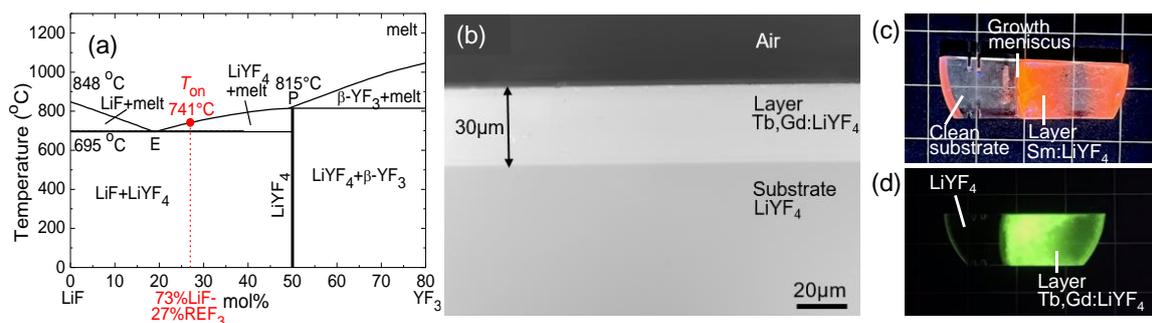


Fig. 1 : (a) Diagramme de phase du système binaire $\text{LiF} - \text{YF}_3$; (b) Observation transverse en microscopie optique d'une couche épitaxiée polie de $\text{Tb,Gd}:\text{LiYF}_4 / \text{LiYF}_4$; (c,d) Photos de couches épitaxiées brutes de croissance de (c) $\text{Sm}:\text{LiYF}_4 / \text{LiYF}_4$ et de (d) $\text{Tb,Gd}:\text{LiYF}_4 / \text{LiYF}_4$ sous excitation UV.

choisies. Dans ce cas, le LiF est un autoflux car il entre dans la composition du soluté LiYF_4 et assure aussi le rôle de solvant. Les substrats de LiYF_4 sont orientés selon l'axe [001] et sont obtenus à partir de cristaux massifs purs tirés par la méthode Czochralski au CIMAP. La croissance épitaxiale est réalisée sous atmosphère Ar et est contrôlée à partir de la température du bain autour de 740 °C, de la durée de trempe et de la vitesse de rotation du substrat dans le bain. Les paramètres de croissance sont les suivants : le « supercooling » entre 0.5 et 1°C, la durée de croissance entre 30 min et 1h30 et la vitesse de croissance de l'ordre de 1-2 $\mu\text{m}/\text{min}$.

Le contraste d'indice de réfraction entre la couche et son substrat, induit par le dopage, permet de mesurer l'épaisseur des couches élaborées, de l'ordre de quelques dizaines de μm et d'observer la qualité de l'interface couche / substrat à partir d'une observation transverse en microscopie optique, Fig. 1(b). Les échantillons épitaxiés ainsi obtenus sont ensuite nettoyés, afin d'éliminer l'excès de solvant cristallisé sur la surface de la couche, avant d'être amincis, polis et mis en forme pour permettre leur caractérisation.

3. SPECTROSCOPIE OPTIQUE

La luminescence des couches épitaxiées brutes de croissance de Sm : LiYF_4 et de Tb, Gd : LiYF_4 sous excitation UV sont illustrées en Fig. 1(c) et (d). Les couches épitaxiées présentent une émission intense dans l'orange et le vert respectivement. Il peut être de plus observé qu'il n'y a pas de luminescence provenant de leur substrat.

Les spectres d'excitation de ces couches épitaxiées, présentés en Fig. 2(a), montrent plusieurs bandes d'absorption dans le bleu, qui peuvent être utilisées pour le pompage optique à l'aide de diodes laser GaN. La Fig. 2(b) montre les spectres d'émission dans le domaine visible sous une excitation à 488 nm pour deux polarisations principales (π et σ). Les spectres sont fortement polarisés en accord avec les propriétés des cristaux massifs qui confirment l'orientation cristallographique des couches. Les spectres d'émission les plus intenses correspondent à la polarisation π . Les déclin de luminescence provenant des niveaux $^4G_{5/2}$ du Sm^{3+} et 5D_4 du Tb^{3+} sont en Fig. 2(c). Les durées de vie sont 3.85 ms et 5.05 ms respectivement. Les propriétés spectroscopiques des couches épitaxiées sont prometteuses pour des applications laser en guide d'onde émettant dans le visible.

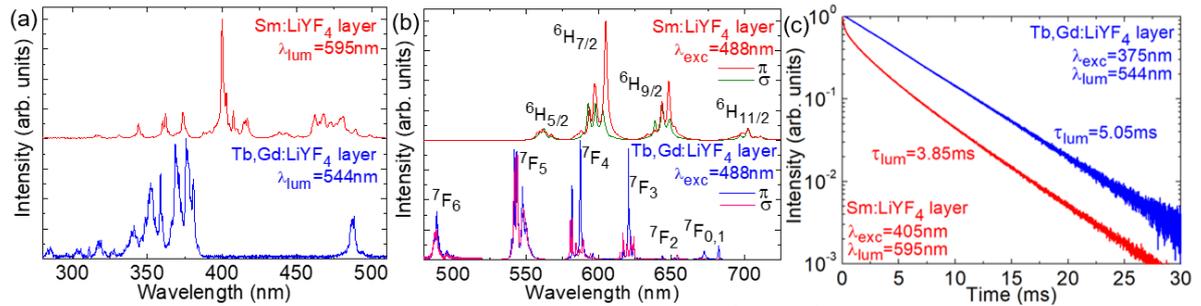


Figure 2: Spectroscopie de couches épitaxiées de LiYF_4 dopées Sm^{3+} et Tb^{3+} : (a) spectres d'excitation dans le domaine UV-visible; (b) spectres d'émission polarisés dans le visible; (c) déclin de luminescence.

CONCLUSION

Au regard de l'expertise du CIMAP pour la croissance de couches minces cristallines de fluorures par LPE en atmosphère contrôlée, de nouvelles homoépitaxies de Sm : LiYF_4 et de Tb, Gd : LiYF_4 ont été élaborées. Ces dernières montrent une haute qualité optique, des émissions dans le domaine visible fortement polarisées et des durées de vie relativement longues des niveaux émetteurs. Ces résultats permettent d'envisager de futures expériences en guide d'onde laser.

RÉFÉRENCES

[1] A. Baillard, G. Brasse, P.Loiko, R. M. Solé, M. Aguiló, F. Díaz, X. Mateos, A.Benayad, V. Ménard, A. Braud, and P. Camy, "Liquid phase epitaxy growth and visible emission of $\text{Tb}^{3+}, \text{Gd}^{3+}:\text{LiYF}_4$ layers," Opt. Mater. Express 13, 2355-2368 (2023)