



AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10

http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>

N° Inv.	2004 0315
Cote	S/M ₃ 04/11
Lec	



Laboratoire Matériaux Optiques,
Photonique et Systèmes
Unité de recherche commune à l'Université de Metz et Supélec
FRE CNRS 2304



THESE

*Croissance d'un micro-composant en bout de fibre
optique par photopolymérisation*

présentée dans le cadre de l'école doctorale EMMA pour l'obtention
du grade de Docteur de l'Université de Metz
mention Physique

Malik HOCINE

BIBLIOTHEQUE UNIVERSITAIRE DE METZ



031 536085 7

Remerciements

Ce travail a été mené au Laboratoire Matériaux Optique Photonique et Systèmes *FRE CNRS 2304* de l'université de Metz et Supelec.

Je remercie vivement :

- Pr Godefroy Kugel pour avoir dirigé ma thèse, pour sa rigueur scientifique et rédactionnelle.
- Pr Nicolas Fressengeas pour son sérieux et sa disponibilité permanente.
- Mes collaborateurs, Renaud Bachelot du LNIO appartenant à l'université de technologie de Troyes, Christiane Carré du DPG de l'école nationale supérieure de chimie de Mulhouse pour son aide précieuse, ses conseils et son soutien permanent.
- Les membre du jury pour avoir accepté d'examiner ce mémoire,
- Toute l'équipe du Laboratoire MOPS, Delphine, Hocine, Michel, Paul, Marc, Naïma
...
- Enfin tout les membres de ma famille, qui sans eux je ne serais ce que je suis aujourd'hui.

Table des matières

1	Microlentillage sur fibre optique	19
1.1	Etat de l'art sur le microlentillage en extrémité de fibre optique	19
1.1.1	Microlentilles et fabrication	19
1.1.2	Utilisation de microlentille pour le couplage de faisceaux lumineux dans la fibre optique	24
1.2	Photopolymérisation en bout de fibre optique	27
1.2.1	Principe de la photopolymérisation en bout de fibre optique.	27
1.2.2	Autofocalisation ou propagation non linéaire	28
1.3	La micropointe optique (μ PO)	30
1.3.1	Intérêts et applications	30
1.3.2	Objectifs et déroulement de la thèse	32
2	Etude expérimentale de la fabrication de la micropointe optique	35
2.1	Principe de la photopolymérisation	36
2.1.1	Composition du mélange chimique photopolymérisable	36
2.1.2	Description du processus chimique	39
2.1.3	Processus de désactivation lors de l'amorçage	39
2.2	Montage expérimental et mode opératoire	40
2.3	Etude du rayon de courbure de la micropointe en fonction des paramètres physicochimiques de l'expérience	42
2.3.1	Influence de la durée d'exposition à puissance d'exposition constante sur le rayon de courbure de la micropointe.	43
2.3.2	Influence de la puissance optique à durée d'exposition constante sur le rayon de courbure de la micropointe	45
2.3.3	Influence du taux d'éosine sur le rayon de courbure des micropointes	48
2.3.4	Conclusion et bilan	48

2.4	Evolution de l'absorbance de la formulation lors de l'irradiation	50
2.4.1	Description	50
2.4.2	Principe de la mesure	50
2.4.3	Résultats de la mesure	53
2.5	Quelques exemples d'utilisation de la micropointe	53
2.5.1	Utilisation de la micropointe pour la caractérisation du profil du faisceau émis par une diode laser	53
2.5.2	Utilisation de la micropointe pour le couplage de diode laser-fibre optique	58
2.6	Conclusion	61
3	Modélisation de la formation de la micropointe optique	63
3.1	Méthode globale de modélisation utilisée	63
3.1.1	Principe général de la BPM	64
3.1.2	Algorithme BPM	67
3.1.3	Solution dans le domaine numérique	68
3.1.4	Modélisation de la cinétique de polymérisation	70
3.1.5	Introduction du modèle de la cinétique de photopolymérisation dans l'algorithme BPM	76
3.1.6	Introduction du modèle de l'énergie de seuil dans l'algorithme BPM	76
3.1.7	Synoptique et algorithme de la simulation	77
3.2	Résultats de simulation	79
3.2.1	Introduction	79
3.2.2	Influence des paramètres physicochimiques intervenant dans la simulation	79
3.2.3	Etude de la micropointe en fonction des caractéristiques du faisceau	87
3.2.4	Croissance de la micropointe sous l'approximation gaussienne . . .	95
3.2.5	Croissance d'une micropointe au cours du temps	96
3.3	Analyses et interprétations	97
3.3.1	Influence de C_s et C_{smax}	97
3.3.2	Influence de la distance de diffusion de l'oxygène extérieur D_{diff} . .	100
3.3.3	Influence du waist	100
3.3.4	Influence de la constante α	102
3.3.5	Influence de la puissance et de la durée d'exposition	102
3.4	Conclusion	102

4	Comparaison expérience-simulation et amélioration de la modélisation	105
4.1	Comparaison entre les résultats expérimentaux et les résultats de simulation	105
4.1.1	Evolution du rayon de courbure en fonction de la durée d'exposition	106
4.1.2	Evolution du rayon de courbure en fonction de la puissance	107
4.1.3	Evolution du rayon de courbure de la micropointe en fonction du taux d'éosine et de la distance de diffusion D_{diff}	108
4.2	Affinement du modèle	110
4.2.1	Des phénomènes physicochimiques non encore modélisés	110
4.2.2	Diffusion de l'oxygène dissout	112
4.2.3	Nouveau modèle d'absorption et influence	117
4.2.4	Mise en évidence du lien entre la concentration en éosine et la dis- tance de diffusion D_{diff} et modélisation de ce lien.	126
4.2.5	Photochimie Non linéaire	128
4.3	Approche globale et correction	129
4.3.1	Choix des paramètres du modèle	130
4.3.2	Rayon de courbure en fonction du temps et de la puissance	133
4.3.3	Interprétation des résultats	138
4.3.4	Comparaison entre l'expérience et la simulation	139
4.4	Conclusion	140

Table des figures

1.1	Fusion par chauffage au CO ₂ et étirage de la fibre	20
1.2	Intégration de microlentilles par fusion par arc électrique	21
1.3	Intégration de microlentilles par polissage et fusion	22
1.4	Fabrication d'une microlentille par attaque chimique. La fibre est plongée dans une solution d'acide hydrofluorique qui s'évapore à vitesse constante.	22
1.5	Comparaison du profil d'intensité du faisceau pour une fibre sans lentille (a) et une fibre avec lentille(b) (1)	26
1.6	Exemple de réalisation (images obtenues au laboratoire LNIO). <i>Les dimensions de la micropointe sont : 30µm de longueur et 9µm de diamètre de base</i> , la fibre est multimode avec un rapport diamètre du cœur/gaine = 3/125	28
1.7	Exemple de micropointe obtenue sur une fibre monomode (images obtenues au laboratoire LNIO). Les dimensions sont 3µm de diamètre de cœur et 125µm de gaine. Ouverture numérique : 0,12, longueur d'onde d'irradiation : $\lambda=543,5\text{nm}$, puissance = 2,5µW , la durée d'exposition au faisceau : 1s, le rayon de courbure en extrémité est de 1µm , les échelles sont directement lisibles au bas de chaque figure. On voit la longueur de la totalité de la pointe.	29
1.8	Création d'un pont polymère reliant deux fibres optiques	31
1.9	Application de la micropointe pour la focalisation.	32
1.10	Caractérisation 3D du mode de propagation LP21 et LP11	33
2.1	Formule de l'éosine Y	36
2.2	Spectre d'absorption de l'éosine Y.	37
2.3	Formule du co-amorceur	38
2.4	Formule du monomère	38
2.5	Étapes de fabrication de la micropointe	40
2.6	Méthode adoptée pour mesurer le rayon de courbure de la micropointe optique	42

2.7	Influence de la durée d'exposition à la lumière sur le rayon de courbure de la micropointe optique	44
2.8	Influence de la puissance de sortie de la fibre sur le rayon de courbure de la micropointe.	46
2.9	Comparaison entre deux micropointes : à droite = rayon de courbure $0,8\mu\text{m}$ obtenue avec une puissance de $1\mu\text{W}$ et à gauche = rayon de courbure $11,6\mu\text{m}$ obtenue avec une puissance de $10\mu\text{W}$. Le taux d'éosine est de 4%	47
2.10	Influence du taux d'éosine sur le rayon de courbure de la micropointe. Puissance du faisceau : $2,5\mu\text{W}$, durée d'exposition : $1/2\text{s}$	49
2.11	Mesure de l'absorption en fonction du temps de la résine photopolymérisable	51
2.12	Variation de la partie imaginaire de l'indice de réfraction en fonction du temps	52
2.13	Principe du montage expérimental pour la caractérisation d'une diode laser .	55
2.14	Profil d'intensité de la diode laser à une distance de $3\mu\text{m}$ de la fibre. . . .	56
2.15	Profil d'intensité de la diode laser à une distance de $1\mu\text{m}$ de la fibre. . . .	57
2.16	Profil d'intensité de la diode laser à une distance $< 1\mu\text{m}$ de la fibre. . . .	58
2.17	Banc expérimental permettant la mesure du taux de couplage diode-fibre, Diamètre du cœur/fibre = $9/125$, ouverture numérique = $0,15$, multimode à 544nm et monomode à 1550nm , diode infrarouge (MITSUBISHI, ML701B8R) émettant à 1310 nm , $I_{TH}=15\text{ mA}$, $\theta_{\parallel} = 25^{\circ}$, θ_{\perp}	59
2.18	Comparaison du couplage avec et sans micropointe pour différents taux d'éosine. Ce déplacement est selon l'axe longitudinal (z)	60
3.1	Représentation schématique de la Split Step Fourier Transform	65
3.2	Système de lentilles séparée par Δz schématisant la propagation du faisceau lumineux dans la fibre optique	68
3.3	Organigramme de la BPM.	69
3.4	Exemple de cinétique de photopolymérisation. $dn=0,04$, $E_s=10$, $\alpha=1$	73
3.5	Diffusion de l'oxygène de l'atmosphère.	74
3.6	Variation de l'énergie de seuil en fonction de la distance par rapport à l'interface air-polymère	75
3.7	Organigramme du code de calcul	78

3.8 Influence des constantes de seuil C_s et C_{smax} correspondant au tableau 3.1 page 81.
 Pour une distance de diffusion $D_{diff} = 3\mu\text{m}$ a)→ e) $C_s = 10^3$, C_{smax} est variable. f)→ j) $C_s = 10^4$, C_{smax} est variable. k)→ o) $C_s = 10^5$, C_{smax} est variable, la valeur de l'isoindice choisi pour ces résultats est de 1,50 82

3.9 Influence des constantes de seuil C_s et C_{smax} correspondant au tableau 3.2 page 81.
 Pour une distance de diffusion $D_{diff} = 2\mu\text{m}$ a)→ e) $C_s = 10^3$, C_{smax} est variable. f)→ j) $C_s = 10^4$, C_{smax} est variable. k)→ o) $C_s = 10^5$, C_{smax} est variable, la valeur de l'isoindice choisi pour ces résultats est de 1,50. 83

3.10 Influence des constantes de seuil C_s et C_{smax} . Pour une distance de diffusion $D_{diff} = 1\mu\text{m}$ a)→ e) $C_s = 10^3$, C_{smax} est variable. f)→ j) $C_s = 10^4$, C_{smax} est variable. k)→ o) $C_s = 10^5$, C_{smax} est variable correspondant au tableau 3.3 page 84, la valeur de l'isoindice choisi pour ces résultats est de 1,50. 85

3.11 Influence de la constante de diffusion D_{diff} correspondant au tableau 3.5 page 86.
 a) $D_{diff}=0,25\mu\text{m}$; b) $D_{diff}=0,5\mu\text{m}$; c) $D_{diff}=0,75\mu\text{m}$; d) $D_{diff}=1\mu\text{m}$; e) $D_{diff}=1,25\mu\text{m}$; f) $D_{diff}=1,5\mu\text{m}$; g) $D_{diff}=1,75\mu\text{m}$. Durée d'exposition = 1 s, Puissance = $2,5\mu\text{W}$, mode de propagation fondamental approché par une gaussienne. 88

3.12 Variation du rayon de courbure en fonction de D_{diff} . Durée d'exposition = 1 s, Puissance = $2,5\mu\text{W}$ 89

3.13 Influence du paramètre α sur la forme de la micropointe. Les valeurs de α sont données dans le tableau 3.6 page 87. 90

3.14 Influence du waist(W) du faisceau lumineux (a) $W=0,5\mu\text{m}$, (b) $W=0,75\mu\text{m}$ (c) $W=1\mu\text{m}$ (d) $W=1,5\mu\text{m}$ 93

3.15 Influence de la puissance sur la forme de la micropointe pour une durée d'exposition d'une seconde, correspondant au tableau 3.8 page 95 94

3.16 Une micropointe issue du mode de propagation fondamental LP_{01} 96

3.17 A gauche : la croissance de la micropointe sur une fibre 9/125, à droite : la propagation du champ. $C_{smax}=10^7$, $C_s=10^5$, Fréquence normalisée $V=9.11$, $u=2,16$, $v=8.85$, $D_{diff}=1\mu\text{m}$, durée d'exposition : 5s, ces résultats sont sans absorption, ni diffusion de l'oxygène interne. 98

3.18	A gauche : la croissance de la micropointe sur une fibre $3\mu\text{m}$ de cœur, à droite : la propagation du champ. $C_{smax}=10^7$; $C_s=10^5$; Fréquence normalisée $V=2,93$; $u=1,76$; $v=2,35$; $D_{diff}=1\mu\text{m}$; durée d'exposition : 5s; ces résultats sont sans absorption, ni diffusion de l'oxygène interne.	99
3.19	La constante de diffusion $D_{diff}1$ donne un rayon de courbure R_1 de la micropointe plus petit que R_2	101
3.20	Influence de la constante α sur la courbe <i>réponse du matériau</i>	103
4.1	Désaccord entre l'expérience et la simulation : influence de la durée d'exposition sur le rayon de courbure de la micropointe. <i>Données expérimentales</i> : Puissance : $2,5\mu\text{W}$, Taux d'éosine : 4%, <i>Données de simulation</i> : $C_s : 5 \times 10^2 \text{J/m}^2$, $C_{smax} : 10^8 \text{J/m}^2$, distance de diffusion de l'oxygène extérieur D_{diff} : $1\mu\text{m}$ dans un milieu non absorbant ni diffusion de l'oxygène interne.	107
4.2	Comparaison expérience-simulation du rayon de courbure de la micropointe en fonction de la puissance du champ émergeant de la fibre optique. <i>Données expérimentales</i> : Durée d'exposition : 1s, Taux d'éosine : 4%, <i>Données de simulation</i> : $C_s : 5 \times 10^2 \text{J/m}^2$, $C_{smax} : 10^8 \text{J/m}^2$, distance de diffusion de l'oxygène D_{diff} : $1\mu\text{m}$ dans un milieu non absorbant ni diffusion de l'oxygène interne	109
4.3	Comparaison du rayon de courbure en fonction du taux d'éosine et de la distance de diffusion de l'oxygène extérieur D_{diff}	110
4.4	Diffusion de l'oxygène interne des zones non éclairées vers les zones éclairées.	112
4.5	Exemple de l'énergie de seuil, illustrant l'influence de la diffusion de l'oxygène dissout des zones non éclairées vers les zones éclairées dans le milieu photopolymérisable. Diamètre de la fibre : $9\mu\text{m}$, à 1/20 du début de la goutte.	114
4.6	Comparaison d'une micropointe avec et sans diffusion de l'oxygène interne, pour une durée d'exposition d'une seconde, $C_s : 5 \times 10^2 \text{J/m}^2$, $C_{smax}=10^8 \text{J/m}^2$, $D_{diff}2=0,1\mu\text{m}$, $C_{smax}2=10^4 \text{J/m}^2$	115
4.7	Diminution du rayon de courbure avec la diffusion de l'oxygène dissout en fonction de la durée d'exposition. L'ensemble des micropointes simulées présentent la même évolution relative que celle qui passe par le point "triangle jaune".	116
4.8	Transmittance du faisceau gaussien en fonction du rayon pour différents temps sur une longueur de $35\mu\text{m}$. (Taux d'éosine : 2%, longueur d'onde : 514nm, puissance : 200mW)	119

4.9	Transmittance du faisceau gaussien au cours du temps pour différent rayons	120
4.10	Exemple théorique de la transmittance pour une durée d'exposition de 20 secondes, $k=1$, $T_0=0,01$, $r=0$.	121
4.11	Exemple d'absorption pour une durée d'exposition de 20 secondes, $k=1$, $T_0=0,2$	123
4.12	Niveau d'intensité du faisceau lumineux au cours du temps dans un milieu photopolymérisable avec une absorption qui varie au cours du temps (de haut en bas : 1, 2, 3 et 4s). Puissance : $2,5\mu W$, $C_s : 5 \times 10^2 J/m^2$, $C_{smax} : 10^8 J/m^2$, Distance de diffusion de l'oxygène extérieur $Ddiff : 0,1\mu m$	125
4.13	Comparaison d'une micropointe sans absorption (à gauche) et avec absorption (à droite), du milieu photopolymérisable pour une durée d'exposition d'une seconde et pour une puissance de $2,5\mu W$, $C_s : 5 \times 10^2 J/m^2$, $C_{smax} : 10^8 J/m^2$, Distance de diffusion $Ddiff : 0,1\mu m$	126
4.14	Modélisation de la photochimie non linéaire.	130
4.15	Détermination de la zone de fonctionnement du code de simulation	131
4.16	Premier résultat d'une micropointe issue du mode de propagation fondamental LP_{01} .	132
4.17	Croissance de la micropointe pour : de gauche à droite 1s, 3s, 6s, 9s, 15s, 40s, Puissance : $2,5\mu m$, $C_s : 5 \times 10^2 J/m^2$, $C_{smax} : 10^8 J/m^2$, Distance de diffusion $Ddiff=Ddiff2 : 0,1\mu m$, $C_{smax2} : 10^4 J/m^2$.	135
4.18	Comparaison expérience-simulation du rayon de courbure de la micropointe en fonction de la durée d'exposition. <i>Données expérimentales</i> : Puissance : $2,5\mu m$, taux d'éosine : 4% <i>Données de simulation</i> : $C_s : 5 \times 10^2 J/m^2$, $C_{smax} 10^8 J/m^2$; Distance de diffusion $Ddiff=Ddiff2 : 0,1\mu m$, $C_{smax2} : 10^4 J/m^2$ dans un milieu qui photoblanchit selon le nouveau modèle à 2% d'éosine.	136
4.19	Comparaison expérience-simulation du rayon de courbure de la micropointe en fonction de la puissance du champ émergeant de la fibre optique. Durée d'exposition : 1s, $C_s : 5 \times 10^2 J/m^2$, $C_{smax} : 10^8 J/m^2$, $Ddiff=Ddiff2 : 0,1\mu m$, $C_{smax2} : 10^4 J/m^2$	137
4.20	Energie électromagnétique totale dans la micropointe optique et aux alentours.	142
4.21	En haut, énergie se propageant de gauche à droite, donc issue de la fibre. En bas, énergie se propageant de droite à gauche donc issue des réflexions internes	143

Liste des tableaux

2.1	Influence de la durée d'exposition sur le rayon de courbure pour une puissance injectée de $2,5\mu\text{W}$. Le taux d'éosine est de 4%, longueur d'onde $\lambda=543,5\text{ nm}$	43
2.2	Résultats de mesure du rayon de courbure en fonction de la puissance du faisceau laser à une durée d'exposition de 1 s et une longueur d'onde λ égale à 543,5nm, le taux d'éosine est de 4%.	45
2.3	Résultats de mesure du rayon de courbure en fonction du taux d'éosine présent dans la formulation pour une durée d'irradiation de 1/2 s à $2,5\mu\text{W}$	48
3.1	Première analyse de l'influence des constantes C_s et C_{smax} correspondant à la Figure 3.8 page 82. Durée d'exposition = 1 s, puissance = $2,5\mu\text{W}$, mode de propagation fondamental approché par une gaussienne, dimension de la fibre optique : 9/125	81
3.2	Deuxième analyse de l'influence des constantes C_s et C_{smax} correspondant à la Figure 3.9 page 83, Durée d'exposition = 1 s, Puissance = $2,5\mu\text{W}$, mode de propagation fondamental approché par une gaussienne, Dimension de la fibre optique : 9/125	81
3.3	Troisième analyse de l'influence des constantes C_s et C_{smax} correspondant à la Figure 3.10 page 85, Durée d'exposition = 1 s, Puissance = $2,5\mu\text{W}$, mode de propagation fondamental approché par une gaussienne, Dimension de la fibre optique : 9/125.	84
3.4	Variation des limites de C_{smax} en fonction de D_{diff} . Ces limites sont données pour exprimer le fait que le plus petit intervalle est effectivement celui de $D_{diff}=1,75\mu\text{m}$	86

3.5	Analyse vis-à-vis de la constante de diffusion de l'oxygène D_{diff} avec un waist de $1,44\mu\text{m}$. Durée d'exposition = 1 s, Puissance = $2,5\mu\text{W}$, mode de propagation fondamental approché par une gaussienne. Les résultats de simulation sont reportés sur la figure 3.11 page 88	86
3.6	Influence de la vitesse de polymérisation α correspondant à la Figure 3.13 page 90.	87
3.7	Caractéristiques des paramètres du modèle permettant de décrire l'influence du waist du faisceau lumineux correspondant à la Figure 3.14 page 93	92
3.8	Analyse de la forme de la micropointe vis-à-vis de la puissance de sortie de la fibre optique correspondant à la Figure 3.15 page 94	95
4.1	Simulation : évolution du rayon de courbure en fonction de la durée d'exposition (s) pour une puissance de $2,5\mu\text{W}$, dans un milieu non absorbant ni diffusion de l'oxygène interne, $C_s : 5 \times 10^2 \text{J/m}^2$, $C_{smax} : 10^8 \text{J/m}^2$, $D_{diff} : 1\mu\text{m}$	106
4.2	Simulation : évolution du rayon de courbure en fonction de la puissance d'exposition pour une durée d'exposition de 1 s, $C_s : 5 \times 10^2 \text{J/m}^2$, $C_{smax} : 10^8 \text{J/m}^2$, distance de diffusion de l'oxygène extérieur $D_{diff} : 1\mu\text{m}$ dans un milieu non absorbant ni diffusion de l'oxygène interne	108
4.3	Détermination de la valeur optimale de la constante C_{smax}	132
4.4	Détermination de la valeur optimale de la constante C_s	132
4.5	Détermination de la valeur optimale de la constante D_{diff}	133
4.6	Résultats de simulation sur l'influence de la durée d'exposition sur le rayon de courbure de la micropointe, puissance : $2,5\mu\text{W}$, longueur d'onde $543,5\text{nm}$, $C_s : 5 \times 10^2 \text{J/m}^2$, $C_{smax} : 10^8 \text{J/m}^2$, Distance de diffusion $D_{diff} = D_{diff2} : 0,1\mu\text{m}$, $C_{smax2} : 10^4 \text{J/m}^2$ correspondant à la figure 4.18 page 136	134
4.7	Résultats de simulation sur l'influence de la puissance sur le rayon de courbure de la micropointe. Durée d'exposition : 1s, $C_s : 5 \times 10^2 \text{J/m}^2$, $C_{smax} : 10^8 \text{J/m}^2$, $D_{diff} = D_{diff2} : 0,1\mu\text{m}$, $C_{smax2} : 10^4 \text{J/m}^2$ correspondant à la figure 4.19 page 137.	135
4.8	Comparaison entre les constantes du modèle théorique et l'expérience	139

Introduction générale

L'utilité et l'extension actuelle des réseaux de télécommunications sur fibre optique n'est aujourd'hui plus à démontrer. Outre la fibre elle-même, la maîtrise et l'optimisation de ces réseaux passent inévitablement par celles des composants d'extrémité, que ce soit du côté émetteur (laser) ou récepteur. L'un des enjeux principaux est la mise en forme des impulsions lumineuses autant dans leurs caractères spatial que temporel. La mise en forme spatiale nécessite la réalisation du système optique gérant l'interface entre la source laser et l'entrée de la fibre optique. Ces composants sont souvent appelés *microlentilles* car ils jouent le plus souvent le rôle de lentilles qui permettent de focaliser le faisceau issu de la source laser dans le cœur de la fibre.

Un grand nombre de méthodes existe pour fabriquer ces microlentilles en bout de fibre. Une revue en sera faite au chapitre 1. La plupart des procédés permettant de les obtenir sont longs et délicats, générant par là un coût élevé de fabrication. Dans ce travail de thèse, nous proposons de modéliser la formation ainsi que les propriétés optiques d'une microlentille appelée encore *micropointe optique* obtenue par un nouveau procédé proposé et mis en œuvre au Laboratoire de Nanotechnologie et d'Instrumentation Optique (LNIO) de l'Université de technologie de Troyes (UTT) et qui repose sur la photopolymérisation en extrémité d'une fibre optique d'un matériau organique photosensible.

Dans le chapitre 1 de ce travail, un état de l'art des différentes techniques de fabrication des microlentilles en extrémité de fibre sera dressé. Nous y aborderons notamment l'application principale qui est le couplage d'une source laser à une fibre optique.

Le chapitre 2 de ce mémoire concernera la description de la méthode opératoire et des conditions expérimentales de fabrication du composant par photopolymérisation. Nous présenterons également la composition chimique de la résine photopolymérisable, ainsi que les applications de la micropointe réalisées et à venir. Nous proposerons par ailleurs, dans ce chapitre l'étude expérimentale sur laquelle nous nous reposerons pour valider nos modèles.

L'objectif principal de mon travail sera approfondi dans le troisième chapitre. Ce cha-

pitre concerne la modélisation de la photopolymérisation de la formulation en extrémité de la fibre optique. Nous nous attacherons dans un premier temps à décrire phénoménologiquement la photopolymérisation à partir de l'énergie électromagnétique en chaque point. En reliant, sur la base d'un calcul numérique, cette énergie électromagnétique nécessaire à la photopolymérisation à la propagation de la lumière dans la fibre, nous serons à même de simuler la formation de la micropointe optique. Nous nous attacherons aussi à valider le modèle théorique utilisé en comparant systématiquement les résultats de simulation avec ceux de l'expérience.

Le quatrième chapitre sera dévolu à une analyse critique des résultats issus de notre modélisation. Cette approche nous apportera des éclaircissements quant aux améliorations à apporter à nos modèles. Nous terminerons en donnant les résultats de simulations issues de ces modèles affinés et en les comparant à l'expérience. C'est ainsi que nous pensons pouvoir prédire les fonctions optiques créées en bout de fibre en fonction de la composition chimique de la formulation utilisée, de la puissance lumineuse incidente et de la durée d'exposition.

Les travaux qui sont présentés dans ce manuscrit ont été réalisés dans le cadre d'une collaboration entre trois laboratoires : le Département de Photochimie Générale de Mulhouse (UMR 7525), le laboratoire de Nanotechnologie et d'Instrumentation Optique (FRE 2671) et le Laboratoire Matériaux Optique Photonique et Systèmes (FRE 2304)¹. Cette collaboration avait pour objectif la compréhension autant expérimentale que théorique de la formation du composant optique étudié dans cette thèse. Dans cet esprit, soulignons ici le rôle des différents partenaires. La solution photopolymérisable a été fabriquée au DPG grâce à la collaboration active de Christiane Carré. Toutes les études expérimentales ont été conduites au LNIO, Principalement par Laurence Millefaut et Abdeslame Fares (Ingénieurs de recherche) encadrés par Renaud Bachelot, Gilles Lérondel et Pascal Royer. Je saisis cette occasion pour les remercier tous de leur soutien au cours de ces travaux.

¹Cette collaboration a été soutenue par le CNRS dans le cadre de l'Action Coordonnée Optique *Intégration et utilisation de micro-éléments polymères sur composants de l'optoélectronique : expériences et simulations numériques* attribuée en 2000.

Chapitre 1

Microlentillage sur fibre optique

La principale utilisation visée pour la micropointe optique polymère que nous allons étudier dans ce manuscrit concerne la mise en forme des faisceaux issus des fibres optiques. Dans ce cas, la micropointe optique joue un rôle analogue à celui de la microlentille en extrémité de fibre optique. C'est pourquoi nous analyserons au cours de ce chapitre les principales technologies permettant de fabriquer des microlentilles en extrémité de fibre ainsi que leurs utilisations.

1.1 Etat de l'art sur le microlentillage en extrémité de fibre optique

1.1.1 Microlentilles et fabrication

Il est utile, pour comprendre les avantages de la technique présentée dans ce mémoire, de donner un aperçu des autres méthodes de fabrication des microlentilles. Il en existe deux classes :

- Les microlentilles externes (2) qui correspondent aux lentilles placées à l'extérieur de la fibre optique et qui peuvent être déplacées,
- Les microlentilles internes (3) ; ces microlentilles sont directement fabriquées à l'extrémité de la fibre, par une transformation de l'extrémité de la fibre elle-même ou par d'autres moyens que nous allons voir par la suite, cependant ces microlentilles après création, ne peuvent en aucun cas être détachées de la fibre.

Notre technique s'inscrivant plutôt dans le cadre de la seconde classe, attardons nous sur les méthodes de fabrication de microlentilles intégrées ou microlentilles internes. Quatre

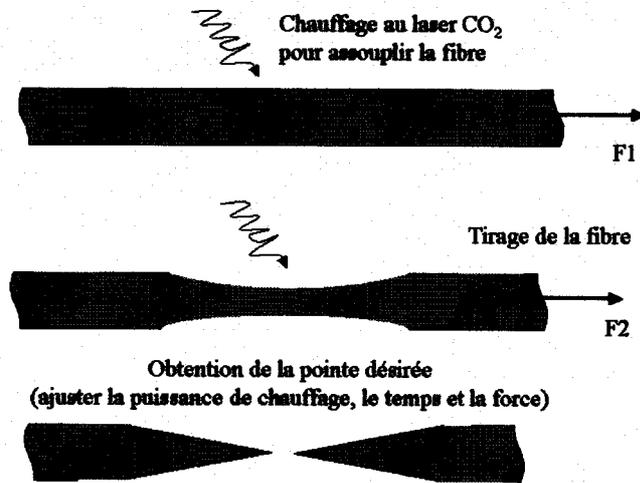


FIG. 1.1 – Fusion par chauffage au CO₂ et étirage de la fibre

méthodes principales sont en général mises en œuvre.

Fusion par décharge électrique ou par chauffage laser

La fusion par décharge électrique ou par chauffage externe est une technique très utilisée dans la réalisation de microlentilles internes. Sous l'action externe d'une source de chaleur, le verre fondu se solidifie ensuite en une forme, gouvernée par la tension superficielle du liquide, souvent hémisphérique et pouvant donc être assimilée à une lentille. Le rayon de courbure de ces microlentilles varie entre 3 et 17 μm pour la fusion par arc électrique (4), entre 50 et 125 μm pour les méthodes utilisant des torches à hydrogène comme source de chaleur (4).

Une autre méthode de fabrication qui est la fusion étirage, aboutit en général à une forme hyperbolique de la microlentille; la méthode consiste à placer la fibre entre deux électrodes, puis simultanément fondue et étirée par décharge électrique (figure 1.1). Un deuxième arc d'une durée plus courte sépare en double cône la fibre, ces derniers sont formés durant la fusion étirage. La microlentille résultante a un profil hyperbolique qui peut être ajusté par un arc supplémentaire (5–10).

Toujours dans cette méthode, nous pouvons aussi citer la fusion assurée par un laser CO₂ continu remplaçant la décharge électrique. Les caractéristiques de ce laser sont de 10,6 μm de longueur d'onde pour une puissance de 18 W (11). Cette même référence, Y. Mur *et al* (11), mentionne le dépôt d'un verre à l'extrémité de la fibre. A partir d'une barre

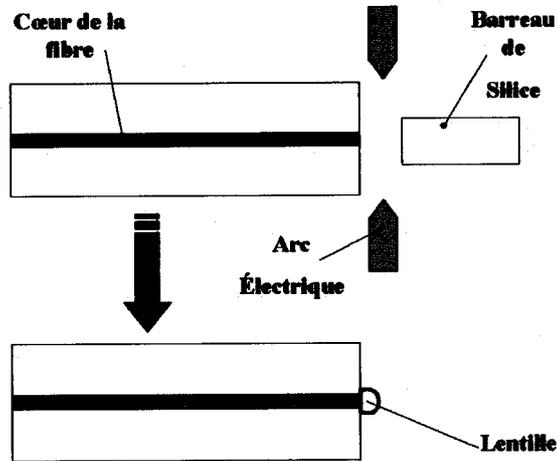


FIG. 1.2 – Intégration de microlentilles par fusion par arc électrique

de silice de diamètre allant de 30 à 50 μm et en utilisant la fusion par arc électrique, il est possible de fabriquer une lentille hémisphérique dont le rayon de courbure dépend du temps de fusion (voir Figure 1.2). Les résultats des tests révèlent une efficacité de couplage¹ de -3dB avec une lentille dont le rayon de courbure est de 8,5 μm .

D'autres techniques consistent, tout d'abord, à polir l'extrémité de la fibre en une forme pyramidale quadrangulaire. Puis, grâce à la fusion par arc électrique (Figure 1.3 page suivante), une autre forme hémisphérique est créée (12). Avec un laser classique, une efficacité de couplage à -3dB a également été obtenue. (2)

Microlentilles hémisphériques réalisées par attaque chimique

La méthode utilisant l'attaque chimique par l'acide hydrofluorique (13; 14), produit une structure de lentille obtenue par trempe de la fibre dans le bain qui contient cette solution s'évaporant lentement. La microlentille est naturellement auto-centrée (voir figure 1.4 page suivante). Ses propriétés optiques dépendent du temps et de la concentration en acide (15; 16). G. Eisenstein et D. Vitello (16) ont déterminé la concentration optimale du bain qui permet de fabriquer des microlentilles coniques dont la base coïncide avec le cœur de la fibre. L'attaque chimique est plus importante dans la région dopée en phosphore (gaine) et moins importante dans la région du cœur.

¹L'efficacité de couplage est le rapport de la puissance optique injectée dans la fibre sur la puissance incidente sur la fibre optique munie de sa microlentille

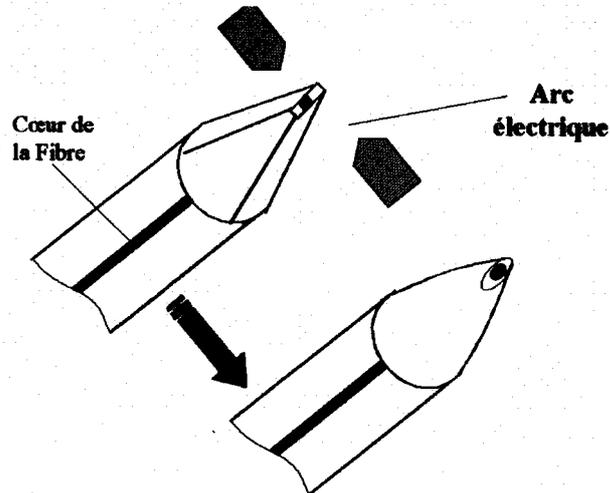


FIG. 1.3 – Intégration de microlentilles par polissage et fusion

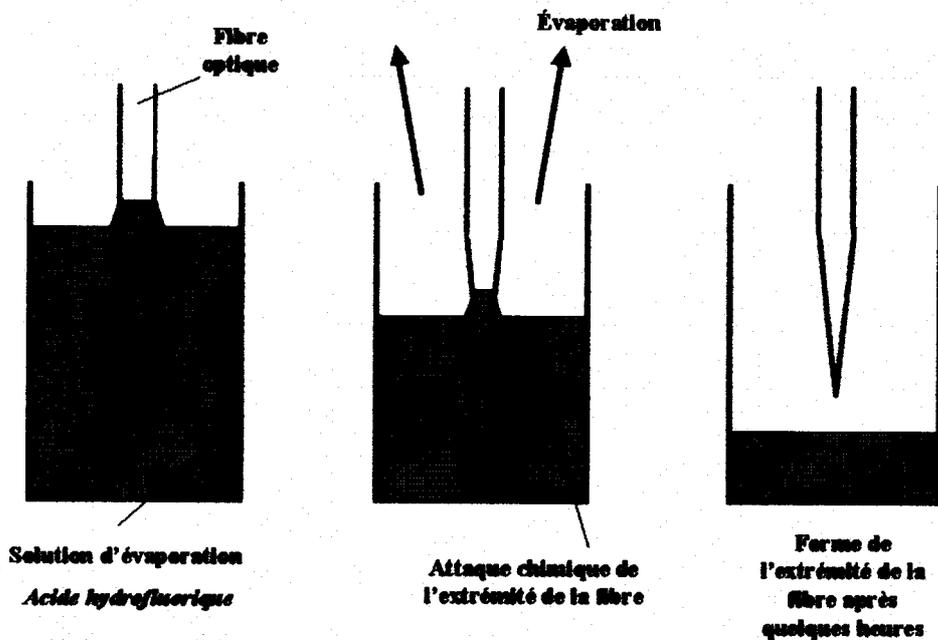


FIG. 1.4 – Fabrication d'une microlentille par attaque chimique. La fibre est plongée dans une solution d'acide hydrofluorique qui s'évapore à vitesse constante.

Cette méthode, bien que présentant des avantages certains, a l'inconvénient d'être longue. Le temps nécessaire pour produire cette microlentille étant de 1 à 2 heures (17). Un exemple de vitesse du processus de fabrication est de $0,07\mu\text{m}/\text{min}$ pour une fibre dont le cœur est composé de $\text{SiO}_2\text{-GeO}_2$ et la gaine en SiO_2 . Cette vitesse d'attaque chimique décroît lorsque la concentration en GeO_2 décroît (18).

D'autres auteurs, T. Pagnot et C. Pierali (19) parlent de fabrication de micropointe en utilisant deux procédés en même temps, la fusion (présenté précédemment) et l'attaque chimique.

Réalisation de microlentille par exposition de film photosensible ou technique de photolithographie

S.Babin *et al* (20), P.D. Bear (1), L. G. Cohen et M.V. Schneider (21) ont travaillé dans les années 70 et 80 sur la réalisation de microlentilles utilisant une résine photosensible déposée en extrémité de la fibre optique, cette technique est voisine de celle qui sera détaillée et modélisée dans notre manuscrit. Ces microlentilles peuvent être réalisées à l'aide d'un laser He-Ne à la longueur d'onde de 632,8nm.

La réalisation d'une microlentille s'effectue alors en déposant une goutte de résine photosensible sur l'extrémité de la fibre et la couplant au laser He-Ne à l'autre extrémité de la fibre². Quelques minutes de séchage permettent alors d'obtenir la microlentille désirée. Cette dernière a une focale qui peut être réajustée en répétant l'opération.

Ce processus simple a donné des résultats probants avec une puissance de 40mW et 775 nm de longueur d'onde.

P.D.Bear met également en évidence une relation entre la durée d'exposition de la résine photosensible au faisceau lumineux et les caractéristiques optiques de la microlentille réalisée. En effet, ils ont pu observer que le faisceau émergent de la microlentille, après fabrication, a un waist qui dépend de la durée d'exposition mentionnée.

En 2000, une équipe japonaise T.Cotoh *et al* (22) a réalisé des microlentilles en extrémité de fibre optique en utilisant un matériau organique photosensible, en l'occurrence un verre chalcogénide. La microlentille réalisée peut être utilisée dans la gamme spectrale du rouge à l'infrarouge. En 2002, la même équipe (23) a reporté des travaux autour de trois différents type de microlentilles :

- La première est une microlentille à gradient d'indice d'une focale supérieure à $50\mu\text{m}$;
l'idée consiste à pulvériser, en extrémité d'une fibre, un film photosensible d' As_2S_3

²Pour faire réagir la résine, une puissance minimale de 1mW est nécessaire.

avec un autre film anti réflexion de GeO_2 . Ainsi, la lumière issue de la fibre induit une photostructuration du milieu grâce à une élévation de l'indice de réfraction voisine de 0,1.

- Le deuxième type de microlentille utilise le fait que le film soit recuit à 180°C et soumis à une exposition d'une heure à la lumière issue de la fibre optique. La focale obtenue avoisine alors $10\mu\text{m}$.
- Le troisième type de microlentille est fabriqué par photopolymérisation des molécules du milieu photosensible. La partie non polymérisée est évacuée grâce au lavage dans une solution NaOH . Ce processus est supervisé *in situ* avec un microscope optique. Là encore, la focale obtenue est de $10\mu\text{m}$.

Micro-usinage en extrémité de fibre optique

Dans les années 90 H.M. Presby *et al* (24) ont travaillé sur la micro-fabrication par usinage de microlentille en extrémité de fibre optique. Ils utilisent des impulsions laser pour faire fondre la pointe de manière à lui donner une forme hémisphérique. Les microlentilles ainsi formées sont évaluées en mesurant leur efficacité de couplage avec un laser à semiconducteur à $1,3\mu\text{m}$ de longueur d'onde. Un taux de 90% d'efficacité de couplage, correspondant à $-0,45\text{dB}$, a été atteint.

L'ensemble des méthodes de fabrication de microlentille en extrémité de fibre présente, selon le type de fabrication, des avantages et des inconvénients, dont un résumé peut être trouvé dans la référence (25). Dans cette dernière référence, il est ainsi décrit des méthodes de fabrications telles que : la fusion par arc électrique, la reflexion, l'attaque chimique, cleavage par acid sulphurique ou par simple outil tranchant, l'utilisation des torches à oxygène et propane, des micro-fours avec un laser Nd : YAG, par la défocalisation laser CO_2 . La comparaison de ces méthodes décrites sont jugées principalement sur leur simplicité de mise en œuvre, la puissance utilisée, la reproductibilité de la méthode.

1.1.2 Utilisation de microlentille pour le couplage de faisceaux lumineux dans la fibre optique

L'amélioration de l'efficacité de couplage entre une source de lumière à semiconducteur et une fibre optique peut être réalisée en utilisant des microlentilles formées en extrémité de fibre. Les lentilles servent à accorder les modes du laser avec la fibre. Plusieurs équipes ont exploré ce champ de recherche afin de comprendre les facteurs clés liés à l'amélioration de l'efficacité de couplage d'une source laser à une fibre optique. Les études faites sont

d'ordre théoriques (26–28) et expérimentales (29–37)

Les caractéristiques souhaitées d'une microlentille idéale sont les suivantes :

- avoir une large ouverture numérique, en tous cas suffisante pour collecter le maximum de rayonnement laser ;
- avoir une longueur de focale parfaitement accordée à la fois avec les modes du laser et de la fibre ;
- ne pas présenter des aberrations sphériques ;
- être convenablement enduite de manière à éliminer les réflexions de Fresnel.

Plusieurs auteurs ont contribué à cette recherche dont :

- L.G. Cohen et M.V. Schneider (38) dans les années 70,
- P.D. Bear *et al* (1) ; G. Eisenstein et D. Vitello (16) ; P.Kayoun *et al* (17) dans les années 80-82,
- H. Ghafouri-Shiraz *et al* (39–42) dans les années 86-88,
- H.M. Presby *et al* (24) et C.W. Barnard et John W.Y (15) dans les années 90.

L.G. Cohen and M.V. Schneider (38) ont réalisé des microlentilles hémisphériques et hémicylindriques, avec un diamètre de 4 à 10 μm , pour le couplage d'une diode laser avec une fibre optique. Ces auteurs ont notamment appliqué les microlentilles réalisées par photolithographie pour le couplage d'une diode laser à jonction Ga-As avec une fibre monomode de 4 μm de cœur. Kyung et Barnes (43) ont publié en 1985 des travaux liés à la fabrication de microlentilles par photolithographie. Ces dernières avaient un rayon de courbure allant de 2,6 μm à 20 μm . Le faisceau lumineux émergeant de ces lentilles pouvait avoir un waist de 0,75 μm avec une longueur d'onde de 830nm.

Les paramètres influençant le plus fortement l'efficacité de couplage et qui sont mentionnés le plus souvent dans les courbes la donnant sont :

- la distance (z) séparant la fibre de la diode Laser ;
- la précision des positionnements latéraux (x et y)

L'influence de ces paramètres est liée à l'angle d'acceptance de l'extrémité de la fibre : le rôle essentiel de la microlentille est d'augmenter cet angle d'acceptance (voir la figure 1.5 page suivante).

Théoriquement, l'angle d'acceptance compte tenu de la microlentille est donné par la formule suivante (44) :

$$\Theta = \sin^{-1}\{n_1 \sin[\sin^{-1}(d/2r) + \cos^{-1}(n_2/n_1)]\} - \sin^{-1}(d/2r) \quad (1.1)$$

Où :

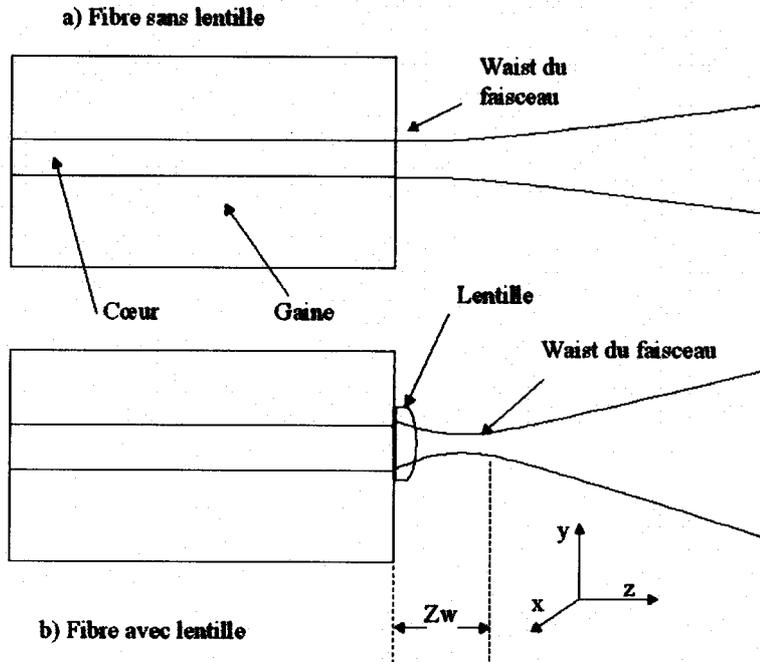


FIG. 1.5 – Comparaison du profil d'intensité du faisceau pour une fibre sans lentille (a) et une fibre avec lentille(b) (1)

- n_1 est l'indice de réfraction dans la gaine ;
- n_2 est l'indice de réfraction dans le cœur ;
- d est le diamètre du cœur ;
- r est le rayon de courbure de la lentille.

L'efficacité de couplage entre une diode laser et une fibre monomode peut être améliorée considérablement par différentes techniques additionnelles. Dans le cas de l'attaque chimique, P. Kayoun *et al* (17) ont obtenu un facteur d'amélioration de 3,5 grâce à un temps de lavage approprié et opéré à température ambiante de l'extrémité de la fibre avec une solution à 40% d'acide hydrofluorique.

Un autre exemple d'amélioration du facteur d'efficacité de couplage est apporté par Bear (1). Il s'agit du couplage entre une fibre optique et un guide d'onde. Le maximum d'efficacité de couplage théorique est calculé en utilisant la formule 1.2 (1) :

$$\eta = \frac{2W_1W_2}{W_1^2 + W_2^2} \quad (1.2)$$

- W_{10} est le waist du faisceau du faisceau au niveau de la fibre ;
- W_2 est le waist au niveau du guide d'onde.

Sans lentille, η est égale à 0,61 et avec lentille η est égale à 0,98, ce qui fait une augmentation d'un facteur 1,6. Sur la figure 1.5 page précédente, nous pouvons voir que le waist du faisceau émergeant de la fibre diminue et se déplace d'une distance Z_w par rapport à l'extrémité de la fibre.

1.2 Photopolymérisation en bout de fibre optique

A partir de la technique de croissance d'une microlentille ou micropointe polymère en extrémité d'une fibre optique développée au LNIO de l'Université de Technologie de Troyes et au DPG de l'Ecole Nationale Supérieure de Chimie de Mulhouse, nous proposons dans ce travail de thèse la modélisation de la formation de cette micropointe. Avant d'explicitier nos travaux, rappelons quelques résultats obtenus par d'autres auteurs

1.2.1 Principe de la photopolymérisation en bout de fibre optique.

Le principe de la réalisation d'une microlentille par photopolymérisation en extrémité de fibre optique peut être classé dans la catégorie des microlentilles réalisées par exposition à la lumière visible d'un film photosensible (comme décrit dans la partie 1.1.1 page 23). Ce principe est assez proche de celui qui est décrit par P.D. Bear (1) dans les années 80 (voir 1.1.1 page 23).

La méthode consiste à déposer en extrémité de fibre une goutte de solution photopolymérisable. Cette goutte est maintenue par sa propre tension surfacique. L'illumination à une longueur d'onde correspondant à la bande d'absorption dans le visible de la solution (543 nm) permet de polymériser une partie de la goutte. La dernière opération est un lavage au méthanol pour éliminer le monomère résiduel. Il en résulte un pic polymère (ou micropointe optique) en bout de fibre (45). Les figures 1.6 page suivante et 1.7 page 29 sont des images de micropointe prises au LNIO au microscope électronique à balayage. Elles représentent une micropointe optique fabriquée sur une fibre monomode à $1,5\mu\text{m}$ en éclairant avec un laser à 543 nm en mode fondamental.

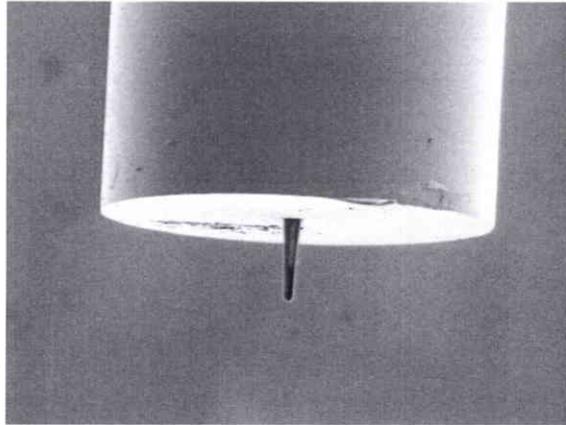


FIG. 1.6 – Exemple de réalisation (images obtenues au laboratoire LNIO). *Les dimensions de la micropointe sont : 30 μm de longueur et 9 μm de diamètre de base, la fibre est multimode avec un rapport diamètre du cœur/gaine = 3/125*

1.2.2 Autofocalisation ou propagation non linéaire

L'origine de la micropointe est liée à l'autoguidage du faisceau dans un chemin optique qu'il a lui-même créé. En effet, la formation du guide est le résultat de la différence d'indice de réfraction entre polymère et monomère. La lumière incidente induit une polymérisation locale du milieu suffisamment éclairé. La polymérisation s'accompagne d'une élévation locale de l'indice de réfraction à l'endroit du faisceau et par là, la création d'un guide optique.

Le faisceau issu de la fibre guidé à sa sortie par un guide qu'il crée lui-même est donc autofocalisé. Cette autofocalisation est à l'origine de la forme de la micropointe. La création de ce guide est donc une conséquence de la polymérisation du matériau et de l'autofocalisation du faisceau qui en résulte.

Il est possible d'assimiler la propagation de la lumière à l'intérieur de la goutte à celle d'un *soliton spatial*(46). Les travaux pionniers de Anthony S.Kewitsch et Amnon Yariv (47) présentent ces notions d'autoguidage de faisceau ; ils parlent d'autopiégeage de faisceau par photopolymérisation. La polymérisation est amorcée d'abord dans les régions à forte illumination ; par conséquent la dimension latérale du guide créé est plus petite que le faisceau optique. Le profil d'indice est focalisé initialement dans la partie centrale du faisceau. Par la suite, l'indice augmente linéairement avec l'exposition et la distribution de l'indice devient une réplique fidèle au profil transversal de l'intensité. L'autofocalisation étant importante, le guide d'onde se prolonge à travers le milieu. Pour une exposition prolongée

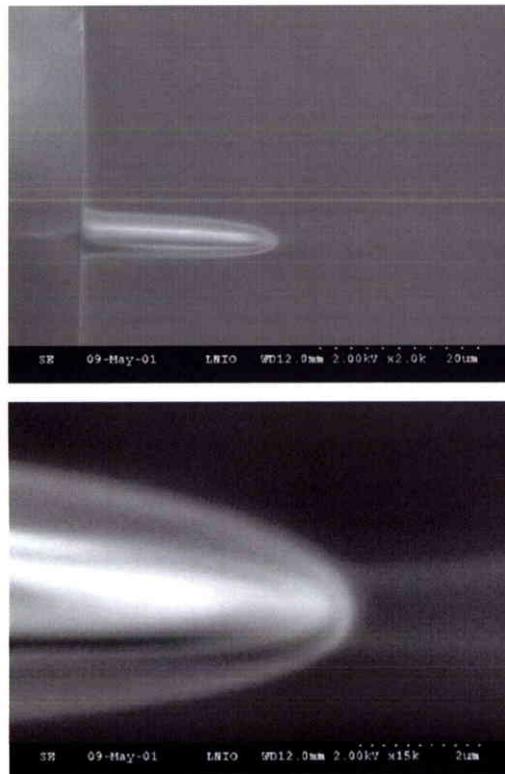


FIG. 1.7 – Exemple de micropointe obtenue sur une fibre monomode (images obtenues au laboratoire LNIO). Les dimensions sont $3\mu\text{m}$ de diamètre de cœur et $125\mu\text{m}$ de gaine. Ouverture numérique : 0,12, longueur d'onde d'irradiation : $\lambda=543,5\text{nm}$, puissance = $2,5\mu\text{W}$, la durée d'exposition au faisceau : 1s, le rayon de courbure en extrémité est de $1\mu\text{m}$, les échelles sont directement lisibles au bas de chaque figure. On voit la longueur de la totalité de la pointe.

dans le temps, le changement d'indice sature au centre du guide et ainsi l'autofocalisation diminue. A ce stade, le guide est considéré essentiellement comme étant une fibre à saut d'indice. Nous allons par la suite (chapitre 3) parler des modèles proposés par Kewitsch et Yariv pour décrire ce phénomène de photopolymérisation. Tanya Monro et al (48) associent également le phénomène de création de guide dans les milieux photosensibles à de l'autoinscription de guide.

Différents facteurs interviennent sur la forme de la micropointe fabriquée; la diffusion de l'oxygène dans le milieu photopolymérisable et l'absorbance du milieu qui varie au cours de la réaction. L'influence de ces différents facteurs sera traitée au long de notre étude.

1.3 La micropointe optique (μ PO)

1.3.1 Intérêts et applications

La micropointe optique polymère créée par photopolymérisation est un micro composant présentant des caractéristiques intéressantes autant d'un point de vue optique que mécanique. Cette technique, qui fait l'objet d'un brevet français³ et une extension internationale en cours, est prometteuse de par la simplicité de sa mise en œuvre et la souplesse de ses paramètres. Nous précisons que la micropointe :

- est résistante.
- est transparente à la lumière.
- guide la lumière entre la fibre et l'air.

Les propriétés de cette micropointe sont très intéressantes et les perspectives d'application envisagées sont multiples; elles se situent dans les domaines tels que les télécommunications ou l'instrumentation optique :

- Une des applications les plus prometteuse est l'obtention d'un bon taux de couplage optique. De récentes expériences menées au LNIO ont mis en évidence un taux de couplage de 66% entre une diode laser et une fibre monomode "type télécom" munie d'une telle micropointe. Validant ainsi le rôle de la microlentille.
- La soudure de deux fibres optiques monomodes (figure 1.8 page ci-contre) est une technique coûteuse et complexe. Elle consiste à aligner deux fibres clivées mises bout

³BACHELOT, R., ROYER, P., WURTZ, G., ECOFFET, C., ESPANET, A., et LOUGNOT, D.J. Nouvelles fibres optiques monomode lentillées à forte ouverture numérique d'extrémité. Application à la réalisation de nouveaux composants optoélectroniques hautes performances. Brevet français N°14 385. 1998.

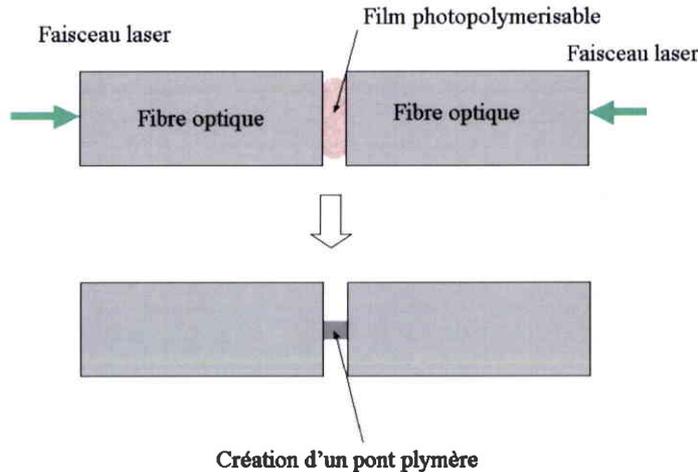


FIG. 1.8 – Création d'un pont polymère reliant deux fibres optiques

à bout, puis à faire fondre leurs extrémités à l'aide d'une décharge électrique. Lorsque la silice refroidit, les fibres se soudent. La technique proposée est simple puisqu'elle consiste à injecter de la lumière dans les deux fibres mises en contact par un film de formulation photopolymérisable. La soudure est ensuite couverte par une protection mécanique.

- Dorkenoo *et al* (49) ont réalisé des fonctions non linéaires en rajoutant des dopants dans le monomère. La polymérisation entre les deux fibres crée un pont polymère non linéaire qui peut permettre de réaliser des composants actifs.
- Une autre application est la focalisation d'un faisceau émergent d'une fibre (figure 1.9 page suivante).
- Une dernière application (illustrée par la Figure 1.10 page 33) consiste en la réalisation d'une micropointe de type *moule* du mode de propagation dans la fibre ou plutôt une *cartographie3D* des modes de la fibre. Deux intérêts à la micropointe de ce type peuvent être :
 - la caractérisation des modes de la fibre, sans avoir à utiliser les techniques d'observation en champ lointain. Les images 1.10 page 33 démontrent la faisabilité de l'expérience, sur laquelle nous pouvons apercevoir un moule 3D du mode de propagation LP_{11} et LP_{21} .
 - le filtrage de modes d'une fibre multimode. En effet, si nous utilisons la micropointe (à multilobe de la figure 1.10 page 33) comme entrée d'une fibre, en injectant un

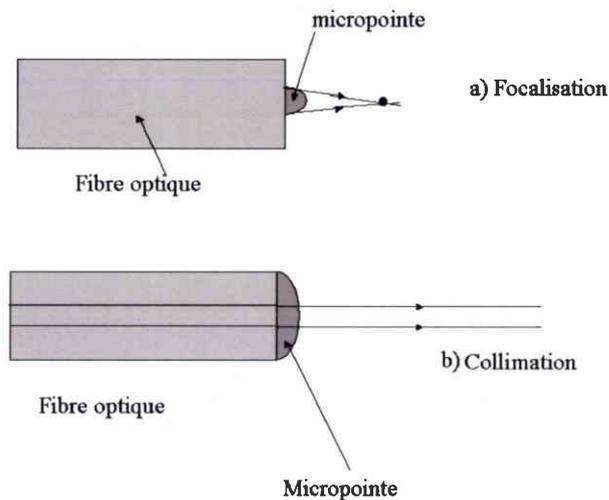


FIG. 1.9 – Application de la micropointe pour la focalisation.

faisceau dans la fibre, seul le mode correspondant aux lobes de la micropointe, c'est-à-dire le LP_{11} , pourrait se propager, ceci quelques soient les conditions d'injection du faisceau.

1.3.2 Objectifs et déroulement de la thèse

L'objectif de cette thèse est la modélisation de la formation de la micropointe optique, ce qui sous-entend la compréhension des mécanismes physicochimiques qui gouvernent la formation de la micropointe et qui régissent les fonctions optiques réalisées. Pour ce faire, une approche théorique est proposée. Le développement d'un modèle de simulation s'appuiera sur les résultats expérimentaux obtenus au LNIO.

L'approche expérimentale a été conduite au LNIO par L. Millefaut et R. Bachelot et sera décrite dans le chapitre 2. Durant ces expériences, on peut déduire l'influence que peuvent avoir les paramètres de l'expérience tel que : l'intensité de la lumière, durée d'exposition et la composition chimique de la formulation comme le photoinitiateur. Ces expériences seront complétées par deux applications en imagerie optique et par le couplage de diode laser avec une fibre optique, concernant la connectique optique.

Nous évoquerons, toujours dans la partie expérimentale, l'apport des chimistes du Département de Photochimie Générale mené par Christiane Carré et Daniel Joseph Lougnot, qui ont étudié les phénomènes chimiques régissant la photopolymérisation et proposé

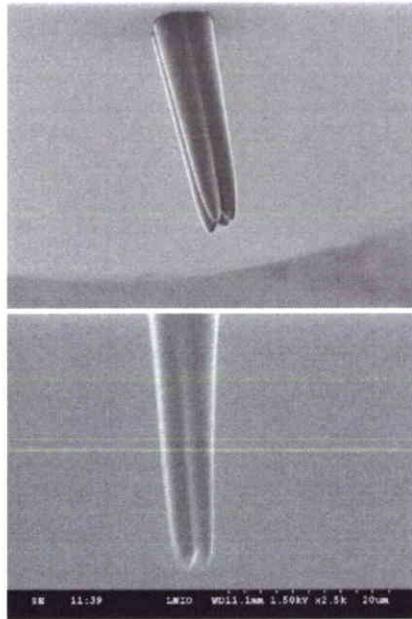


FIG. 1.10 – Caractérisation 3D du mode de propagation LP21 et LP11

un modèle les décrivant.

L'approche théorique, présentée dans cette thèse, est menée au laboratoire LMOPS de l'université de Metz et Supélec. Nous nous sommes appuyés sur les expériences précédemment mentionnées pour mettre au point des modèles phénoménologiques de la photopolymérisation. Cette étude théorique basée sur la BPM (Beam Propagation Method) nous a permis de mettre en évidence les paramètres physiques (optiques) et chimiques essentiels pour le processus. La confrontation de nos résultats de simulations avec les résultats expérimentaux obtenus au LNIO et les données du DPG nous a permis d'identifier plusieurs améliorations à apporter à notre approche. Un affinement supplémentaire, prenant en compte les propriétés réactionnelles du milieu photopolymérisable lors de l'illumination, telles que l'absorption et la diffusion des constituants due aux gradients de concentrations photoinduits, a permis de montrer les points forts de la croissance de la micropointe et de corrélérer théorie et expérience.

Chapitre 2

Etude expérimentale de la fabrication de la micropointe optique

Ainsi que nous l'avons déjà mentionné dans le chapitre précédent, les études décrites dans ce manuscrit ont été réalisées grâce à une collaboration entre le laboratoire LNIO de l'UTT de Troyes ¹, le DPG de l'ENSC de Mulhouse ² et le LMOPS³. Les résultats présentés au cours de ce chapitre ont été obtenus par Laurence Millefaut au LNIO⁴. Le premier point concerne la description de la chimie de la photopolymérisation en passant par la composition du mélange chimique photopolymérisable, c'est-à-dire la résine photosensible utilisée dans l'expérience. Le montage expérimental et les étapes de réalisation de la micropointe seront détaillés. Par la suite, nous présentons différentes analyses concernant l'influence des paramètres intervenant dans l'expérience sur le rayon de courbure de la micropointe ; nous finirons ce chapitre en décrivant deux applications qui ont eu pour but de valider la micropointe quant à ses potentialités industrielles.

¹Laboratoire de Nanotechnologies et d'Instrumentation Optique de l'Université de Technologie de Troyes (FRE 2671)

²Département de Photochimie Générale (UMR CNRS 7525) de l'Ecole Nationale Supérieure de chimie de Mulhouse

³Laboratoire Matériaux Optiques Photonique et Systèmes (FRE 2304) de l'Université de Metz et Supélec

⁴Laurence Millefaut était ingénieur de recherche contractuel au LNIO. Avec son aimable autorisation, les résultats présentés dans ce chapitre sont en grande partie issue de son rapport de DESS (50). Je saisis cette occasion pour la remercier grandement.

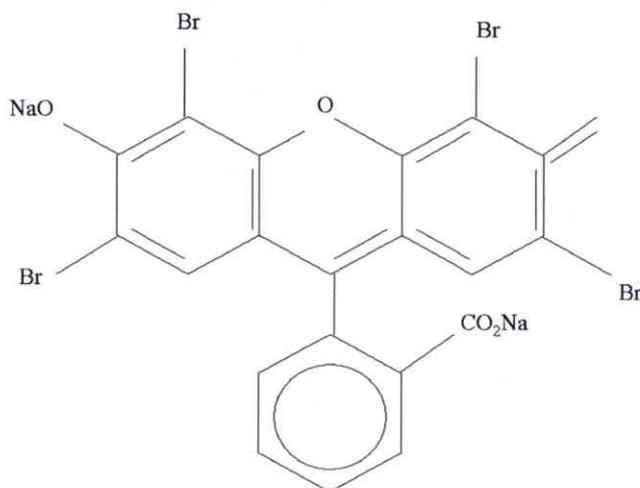


FIG. 2.1 – Formule de l'éosine Y

2.1 Principe de la photopolymérisation

2.1.1 Composition du mélange chimique photopolymérisable

L'obtention des micropointes optiques est basée sur la photopolymérisation radicalaire d'une formulation liquide, photosensible entre 450nm et 550nm. Ce matériau a fait l'objet de nombreuses recherches au Département de Photochimie Générale de Mulhouse partenaire de ce projet (51; 52). La formulation contient trois composants :

- un colorant(E),
- un co-amorceur(AH) générateur de radicaux libres pouvant réagir avec le 3^{eme} constituant,
- un monomère(M).

Le colorant : éosine Y (E)

Le colorant est la molécule d'éosine-Y, dont la formule est donnée par la figure 2.1. Elle est capable d'absorber les photons incidents pour la longueur d'onde de 543,5nm. En effet, comme le montre le spectre d'absorption représenté sur la figure 2.2 page suivante, cette molécule a son maximum d'absorption à 530nm. L'éosine Y est dissoute dans un mélange monomère-amine. Durant l'irradiation, l'éosine passe d'une forme active (sensible à la lumière orange) à une forme passive (appelé forme leuco du colorant) qui est incolore. Il y a donc photoblanchiment du milieu réactionnel. Ce processus est irréversible (53).

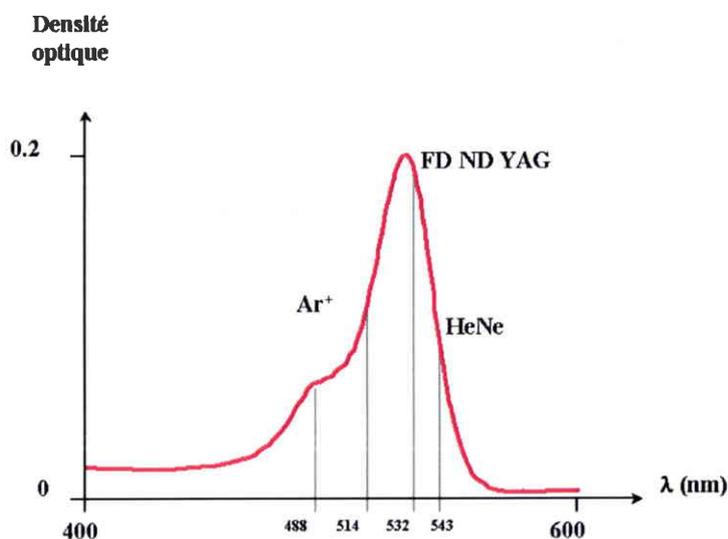


FIG. 2.2 – Spectre d'absorption de l'éosine Y.

Le co-amorceur : (AH)

Le co-amorceur, permettant de générer les radicaux libres, est ici une amine : la N-méthyl diéthanolamine (MDEA) dont la formule chimique est donnée par la figure 2.3 page suivante.

Le monomère : M

Le monomère est un triacrylate : le pentaérythritoltriacyrylate (PETIA), dont la formule est donnée par la figure 2.4 page suivante. Ce monomère a été choisi pour sa bonne compatibilité avec le système amorceur éosine/MDEA et pour la présence de trois fonctions acrylates qui donnent naissance à un réseau polymère tridimensionnel rigide par photoréticulation. L'indice de réfraction de ce monomère est de 1,486 à 20°C ; il se présente sous forme d'un liquide ayant une viscosité élevée :

- PETIA seul : environ 1400cP,
- le mélange : environ 850cP (la diminution est due à l'introduction de l'amine qui est un liquide).

Au cours de la photopolymérisation, l'indice du milieu augmente et peut atteindre une valeur de 1,520 lorsque la polymérisation atteint son maximum de 80% environ.

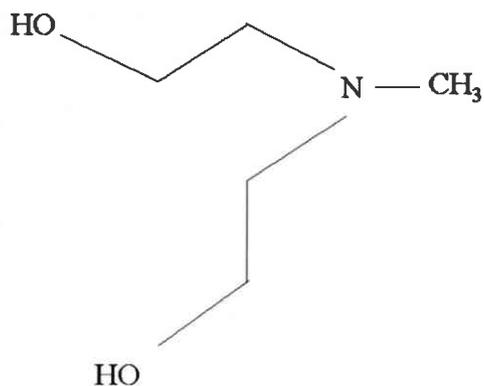


FIG. 2.3 – Formule du co-amorceur

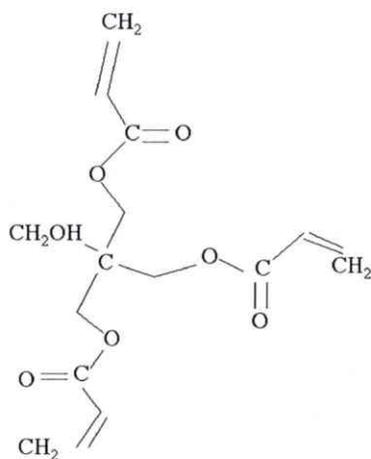
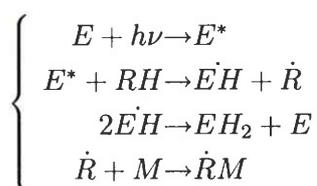


FIG. 2.4 – Formule du monomère

2.1.2 Description du processus chimique

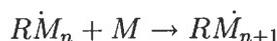
La photopolymérisation se décompose en 3 étapes (voir la référence (54)) :

L'amorçage : L'amorçage est provoqué après absorption d'un photon incident. A partir du colorant E et de l'apport d'énergie, des centres actifs \dot{R} sont créés. Ils sont capables de réagir avec les molécules de monomère M et ainsi d'amorcer la polymérisation.



EH_2 est le leuco colorant.

La propagation : Cette phase consiste en une réaction en chaîne décrite par la formule suivante :



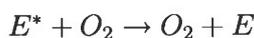
La terminaison : Le macroradical est piégé dans la structure tridimensionnelle et ne peut plus évoluer. Il y a dans ce cas terminaison par occlusion (55).

2.1.3 Processus de désactivation lors de l'amorçage

De multiples réactions peuvent se produire au cours de l'étape d'amorçage. Le chromophore acquiert l'énergie lumineuse du photon absorbé et passe dans son premier état excité S_1 . A partir de cet état, différentes désactivations peuvent se produire (54) dont :

- une conversion interne due à un retour non radiatif à l'état fondamental S_0 ,
- un retour radiatif à l'état S_0 ,
- un passage non radiatif à l'état excité triplet T_1 ,
- ...

Nous citons en particulier le processus de désactivation par les molécules d'oxygène. Celles-ci possèdent une réactivité importante vis-à-vis des états excités singulet et triplet de l'amorceur qu'elles désactivent par transfert d'énergie :



L'oxygène réagit également avec les radicaux amorceurs \dot{R} et les chaînes en croissance pour former des radicaux peroxydes $R\dot{M}_nO_2$. Ces radicaux, dépourvus d'activité amorçante,

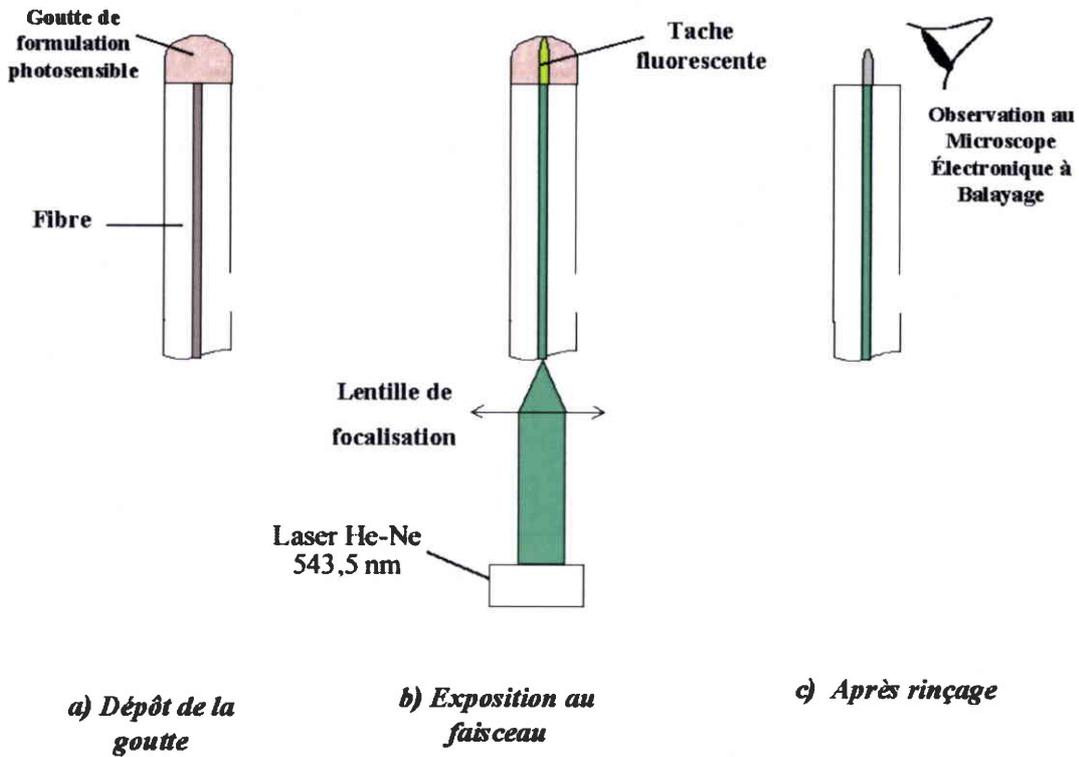
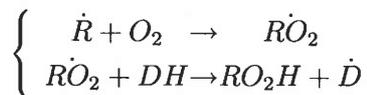


FIG. 2.5 – Étapes de fabrication de la micropointe .

disparaissent en présence d'une molécule, notée DH.



L'oxygène dissout dans le milieu est donc un inhibiteur de la réaction de polymérisation, rôle à priori négatif, mais pouvant être mis à profit lors du contrôle spatial de la polymérisation (56).

2.2 Montage expérimental et mode opératoire

La réalisation de la micropointe est basée sur la photopolymérisation d'une formulation polymérisable telle que décrite précédemment. Le protocole consiste à tremper l'extrémité

polie ou clivée de la fibre dans le milieu réactionnel liquide afin de déposer à l'extrémité de la fibre une goutte de formulation. Sa géométrie est déterminée par :

- la méthode de son dépôt : il s'agit ici de déposer une goutte en effleurant par exemple la fibre avec une pipette contenant du monomère,
- le diamètre de la gaine optique,
- le volume de liquide déposé,
- la viscosité du liquide et son coefficient de tension superficielle.

Notons que la viscosité de la formulation dépend de sa température et de sa composition.

La fabrication de la micropointe est effectuée en injectant à l'autre extrémité de la fibre un faisceau de longueur d'onde en accord avec le spectre d'absorption de la formulation. Un laser He-Ne émettant à 543,5nm convient⁵. Après quelques secondes d'exposition à une puissance d'environ 2,5μW, pendant lesquelles nous pouvons apercevoir une tache de lumière fluorescente correspondant à la tache de la polymérisation, l'extrémité de la fibre est lavée dans du méthanol, afin de ne conserver que la partie polymérisée. Ces différentes étapes sont décrites dans la figure 2.5 page ci-contre.

Fibres optiques utilisées La fibre sur laquelle nous avons réalisé des micropointes optiques est une fibre monomode aux diamètres de cœur et de gaine respectivement de 3μm et de 125μm; son ouverture numérique O.N est égale à 0,12. L'indice de réfraction du cœur est de 1,54, celui de la gaine de 1,53.

Faisceau laser Le faisceau laser utilisé est un laser He-Ne de longueur d'onde 543,5nm. choisi en raison du spectre d'absorption de l'éosine. A la sortie de la fibre, le profil de l'amplitude du champ électrique peut être approché par une fonction gaussienne telle que :

$$E = E_0 \exp\left[-\frac{(x^2 + y^2)}{W^2}\right] \quad (2.1)$$

où x, y sont les coordonnées cartésiennes latérales, l'origine étant au centre de la fibre. W est le diamètre du faisceau.

⁵Un laser Argon à 514 nm conviendrait aussi, de même qu'un YAG doublé dont la longueur d'onde à 532nm correspond au maximum de sensibilité de l'éosine

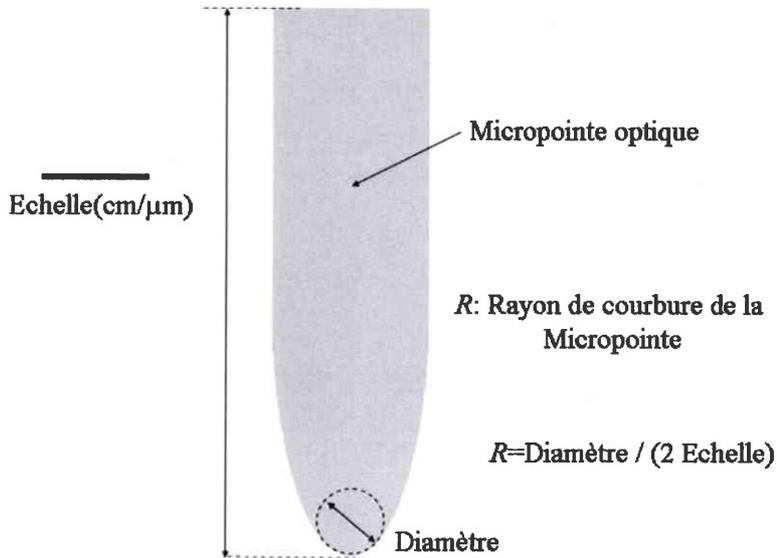


FIG. 2.6 – Méthode adoptée pour mesurer le rayon de courbure de la micropointe optique

2.3 Etude du rayon de courbure de la micropointe en fonction des paramètres physicochimiques de l'expérience

Le rayon de courbure de la micropointe obtenue est un élément important dans notre étude; en effet, comme nous l'avons cité dans le premier chapitre, il est lié directement à l'efficacité de couplage entre une fibre optique et une diode laser. Pour cette raison, trois analyses ont été faites :

- l'influence de la durée d'exposition de la goutte de résine photopolymérisable au faisceau lumineux émergeant de la fibre optique,
- l'influence de la puissance du faisceau,
- l'influence de la concentration en éosine Y.

Avant d'analyser les résultats obtenus par ces études, précisons la méthode utilisée pour mesurer le rayon de courbure. La mesure consiste à dessiner un cercle à l'extrémité de la micropointe, ce cercle doit être tangent au maximum de points de la partie hémisphérique (voir la figure 2.6). Le rayon est donné par le rapport du diamètre du cercle par deux fois l'échelle.

Temps d'exposition (s)	Rayon de courbure (μm)
1/4	0,4 \pm 0,1
1/2	0,3 \pm 0,1
1	0,7 \pm 0,1
2,5	0,6 \pm 0,1
3	1,0 \pm 0,1
4	1,0 \pm 0,1
5	1,4 \pm 0,1
6	1,2 \pm 0,1
7	1,4 \pm 0,1
8	2,3 \pm 0,1
9	2,6 \pm 0,2
10	4,5 \pm 0,2
15	8,0 \pm 0,5
20	11,0 \pm 0,5

TAB. 2.1 – Influence de la durée d'exposition sur le rayon de courbure pour une puissance injectée de 2,5 μW . Le taux d'éosine est de 4%, longueur d'onde $\lambda=543,5$ nm

2.3.1 Influence de la durée d'exposition à puissance d'exposition constante sur le rayon de courbure de la micropointe.

Dans cette partie, nous allons étudier l'influence de la durée d'exposition sur le rayon de courbure des micropointes, celles-ci ont été réalisées avec une puissance constante ($P=2,5\mu\text{W}$). Cette puissance est suffisante en général pour obtenir en quelques secondes des micropointes dont la tenue mécanique⁶ est satisfaisante.

Les résultats obtenus sont regroupés dans le tableau suivant 2.1 et reproduit sous forme de courbe sur la figure 2.7 page suivante.

Analyse Nous pouvons identifier sur la courbe 3 différentes zones :

- entre 0,5 et 7s : le rayon de courbure suit une droite de faible pente d'une valeur de 0,125 $\mu\text{m/s}$. Cette période est le temps nécessaire pour que la micropointe atteigne l'extrémité de la goutte.
- supérieure à 7s : le rayon cette fois-ci augmente avec une pente importante de 0,6 $\mu\text{m/s}$, il s'agit ici de l'élargissement de la micropointe pour qu'elle épouse la forme tangentielle de l'interface air-polymère.

⁶Nous sous-entendons par *tenue mécanique* que la micropointe prend en compte l'état de polymérisation atteint. Lorsque la micropointe n'est pas suffisamment polymérisée, elle se courbe sous l'effet de son poids.

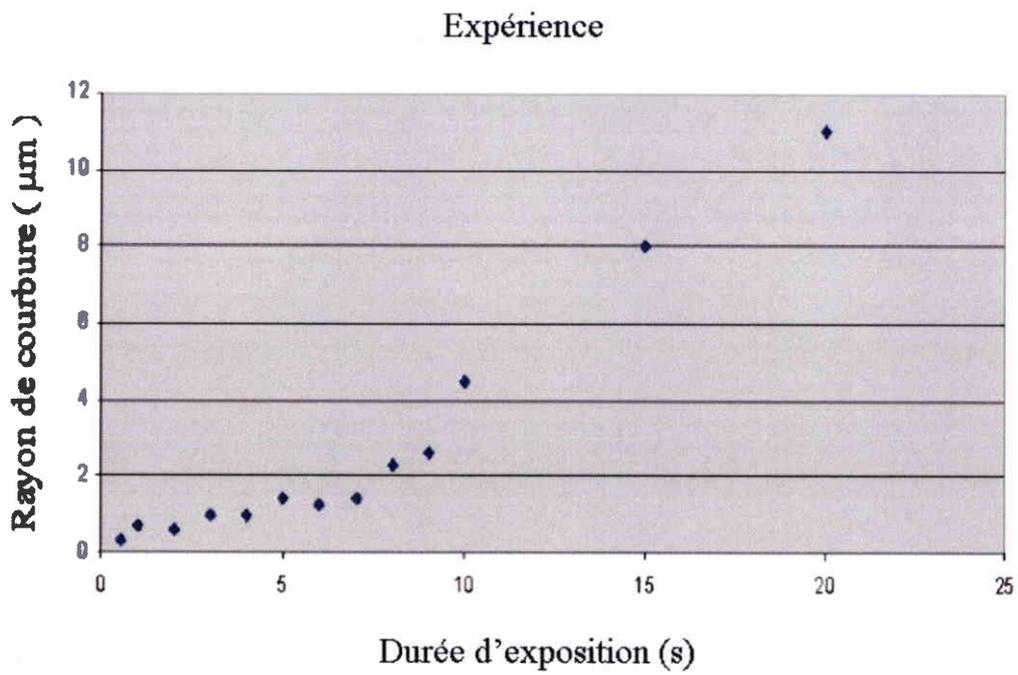


FIG. 2.7 – Influence de la durée d'exposition à la lumière sur le rayon de courbure de la micropointe optique

Puissance en bout de fibre (μW)	Rayon de courbure (μm)
0,8	$0,8\pm 0,1$
0,9	$0,8\pm 0,1$
1	$0,7\pm 0,1$
2,5	$2,0\pm 0,2$
5	$2,3\pm 0,2$
7	$11,6\pm 0,2$
10	$10,0\pm 0,2$
15	$10,3\pm 0,2$
20	$11,6\pm 0,4$
25	$11,6\pm 0,4$
30	$11,0\pm 0,4$
35	$15,0\pm 0,1$

TAB. 2.2 – Résultats de mesure du rayon de courbure en fonction de la puissance du faisceau laser à une durée d'exposition de 1 s et une longueur d'onde λ égale à 543,5nm, le taux d'éosine est de 4%.

Nous reprendrons l'analyse des résultats de l'influence de la durée d'exposition sur le rayon de courbure, notamment dans l'optique des études de simulation.

2.3.2 Influence de la puissance optique à durée d'exposition constante sur le rayon de courbure de la micropointe

Dans cette section, nous allons étudier l'influence de la puissance lumineuse en sortie de fibre optique à durée d'exposition constante (1s). Le taux d'éosine est égal à 4%.

Les résultats sont regroupés dans le tableau 2.2 et reportés sur le graphe 2.8 page suivante. Trois zones peuvent être identifiées :

- entre 0 et $7\mu\text{W}$: nous remarquons une légère augmentation quasi linéaire du rayon de courbure entre 0 et $2\mu\text{m}$. Nous sommes en présence d'une puissance minimale pour laquelle on atteint l'extrémité de la goutte (voir l'image de droite de la figure 2.9 page 47),
- entre 5 et $10\mu\text{W}$: augmentation ou saut brusque du rayon de courbure d'un taux de $4,65\mu\text{m/s}$,
- supérieur à $10\mu\text{W}$, le rayon de courbure atteint des valeurs importantes entre 10 et $15\mu\text{m}$. La micropointe colle avec l'extrémité de la goutte (voir l'image de gauche de la figure 2.9 page 47).

Expérience

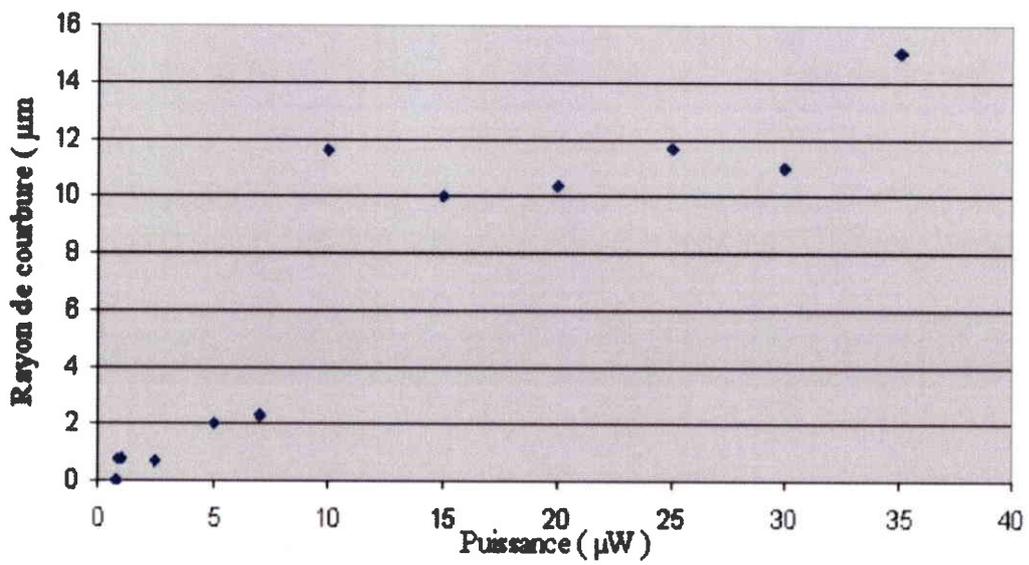


FIG. 2.8 – Influence de la puissance de sortie de la fibre sur le rayon de courbure de la micropointe.

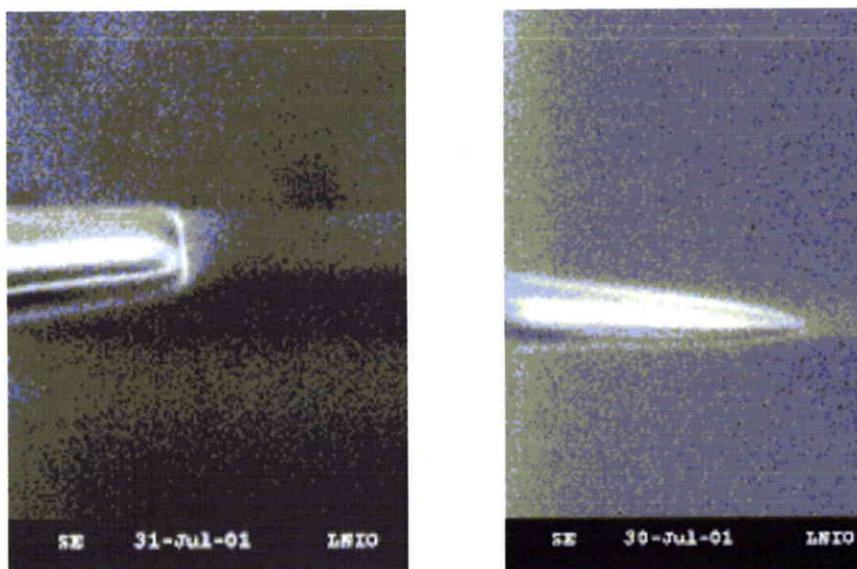


FIG. 2.9 – Comparaison entre deux micropointes : à droite = rayon de courbure $0,8\mu\text{m}$ obtenue avec une puissance de $1\mu\text{W}$ et à gauche = rayon de courbure $11,6\mu\text{m}$ obtenue avec une puissance de $10\mu\text{W}$. Le taux d'éosine est de 4% .

Taux d'éosine (%)	Rayon de courbure (μm)
0,5	$4,55 \pm 0,1$
1	$6,5 \pm 0,1$
2	$2,0 \pm 0,1$
3	$0,55 \pm 0,1$
4	$0,35 \pm 0,1$

TAB. 2.3 – Résultats de mesure du rayon de courbure en fonction du taux d'éosine présent dans la formulation pour une durée d'irradiation de 1/2 s à $2,5\mu\text{W}$.

2.3.3 Influence du taux d'éosine sur le rayon de courbure des micropointes

Dans ce paragraphe, nous nous intéressons à l'influence du taux d'éosine sur le rayon de courbure des micropointes. Pour cela, nous allons réaliser plusieurs micropointes à partir de plusieurs formulations en gardant la puissance optique fixe à $P = 2,5\mu\text{W}$ et 1s de durée d'exposition. Les résultats de mesure du rayon de courbure en fonction du taux d'éosine sont présentés sur le tableau 2.3 et reportés sur la figure 2.10 page suivante.

Nous remarquons une diminution progressive du rayon de courbure lorsque le taux d'éosine augmente. Notons cependant que le point correspondant à 0,5% d'éosine suggère une diminution du rayon de courbure pour les faibles taux d'éosine. Cependant, nous émettons un doute sur la véracité expérimentale de ce point et pensons qu'il serait nécessaire de procéder à d'autres expérimentations pour confirmer ce fait.

2.3.4 Conclusion et bilan

Durant le chapitre 2, nous avons abordé l'approche expérimentale de la micropointe, en l'occurrence sa fabrication en passant par la description photochimique de la polymérisation et de la formulation photopolymérisable.

Nous avons identifié les paramètres physicochimiques importants agissant sur le rayon de courbure :

- la durée d'exposition,
- la puissance du faisceau lumineux,
- le taux d'éosine de la formulation.

Nous pouvons conclure que ce rayon croît pour un taux d'éosine décroissant, une durée d'exposition croissante et une puissance croissante. Toutefois, la sortie de la goutte⁷ n'est-

⁷Nous sous-entendons par sortie de la goutte, lorsque z égal la longueur totale de la goutte, à cette

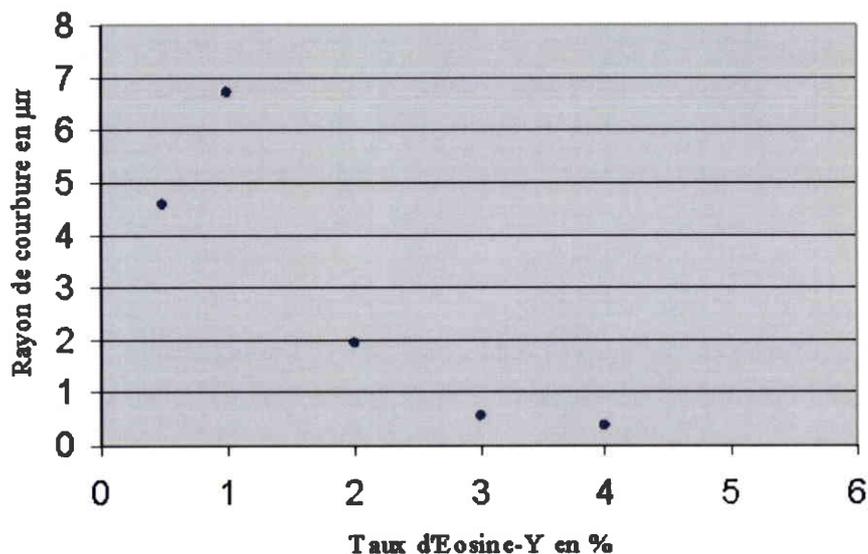


FIG. 2.10 – Influence du taux d'éosine sur le rayon de courbure de la micropointe. Puissance du faisceau : $2,5\mu\text{W}$, durée d'exposition : $1/2\text{s}$.

elle pas une limite imposée à la forme finale de la micropointe ?

2.4 Evolution de l'absorbance de la formulation lors de l'irradiation

Cette partie est dévolue à l'étude quantitative d'un paramètre indispensable à la modélisation : l'absorption du milieu photopolymérisable. Ce coefficient a été mesuré en fonction de l'énergie optique incidente. La diminution de l'absorption est généralement baptisé "photoblanchiment du colorant dans le polymère" (57).

2.4.1 Description

Lors du photoamorçage de la réaction de polymérisation, l'éosine prend d'abord une couleur orange, puis devient incolore. Cette décoloration de la résine lors d'une exposition à la lumière modifie ses propriétés optiques : son absorption diminue. L'absorbance du film polymère est régie par la loi de Beer-Lambert⁸, le photoblanchiment du colorant augmentant la profondeur de pénétration de la lumière dans le milieu. La réaction n'est alors plus limitée à un film proche de la surface, mais se propage de plus en plus profondément au fur et à mesure du photoblanchiment ou disparition de l'éosine (57).

2.4.2 Principe de la mesure

Un échantillon de la formulation est déposé sur une lamelle de verre à travers laquelle se propage un faisceau laser. L'intensité transmise est mesurée en fonction du temps. Le schéma de principe de cette expérience est donnée sur la figure 2.11 page ci-contre.

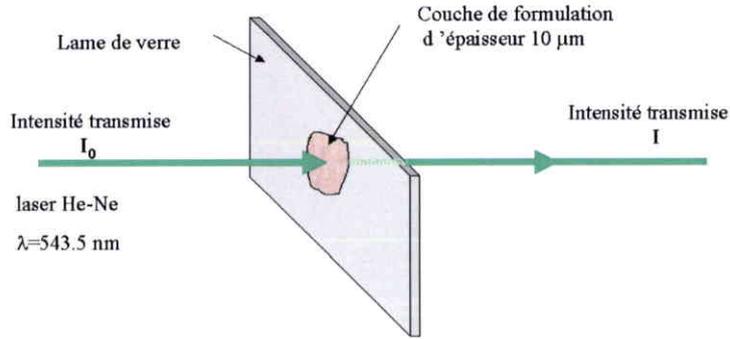
Le champ électrique d'onde qui se propage dans le photopolymère est donné par :

$$A = A_0 \exp[j(\omega t + n^* k_0 z)] \quad (2.2)$$

- A_0 : Amplitude de l'onde ;
- $k_0 = 2\pi/\lambda$;
- $n^* = n_1 + jn_2$ est l'indice de réfraction complexe, n_2 rendant de l'absorption ;

distance nous sommes à l'interface ar-polymère.

⁸La loi de Beer-Lambert dit que, à la traversée d'un milieu matériel transparent, l'énergie lumineuse est d'une part absorbée par le milieu (sous forme d'agitation thermique, d'excitation de niveaux atomiques, etc) et d'autre part diffusée (Par effet Compton, etc) si l'absorption n'est pas trop élevée.



$$\text{Abs} = (-\lambda \ln(I/I_0)) / (4\pi I z)$$

z est l'épaisseur de la couche

FIG. 2.11 – Mesure de l'absorption en fonction du temps de la résine photopolymérisable

- ω : pulsation ;
- z : axe de propagation longitudinal ;
- t : temps ;

ce qui nous donne :

$$A = A_0 \exp[j(\omega t + (n_1 + j n_2)k_0 z)] \tag{2.3}$$

L'intensité lumineuse I est égale à $A \cdot A^*$

A partir du rapport

$$I/I_0 = \exp[-n_2 k_0 z] \tag{2.4}$$

On peut calculer

$$n_2 = -\frac{\lambda}{4\pi z} \ln\left[\frac{I}{I_0}\right] \tag{2.5}$$

En supposant donc l'absorption constante dans l'espace à l'intérieur de l'échantillon, nous pouvons déterminer son évolution en fonction du temps pour une intensité donnée.

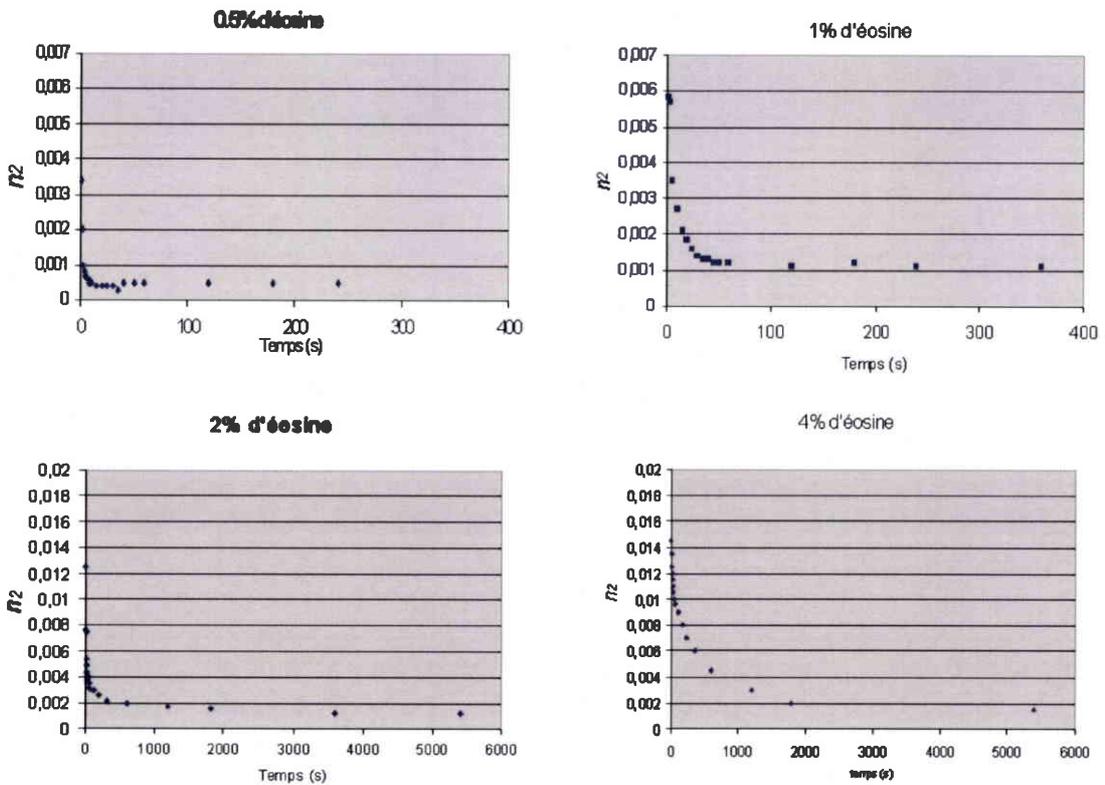


FIG. 2.12 – Variation de la partie imaginaire de l'indice de réfraction en fonction du temps

2.4.3 Résultats de la mesure

Nous avons effectué des mesures pour différents échantillons correspondant chacun à une concentration donnée en éosine-Y qui sont : 0,5%, 1%, 2%, 4%. Ces mesures sont reportées par les courbes de la figure 2.12 page précédente. Nous obtenons une quantification du photoblanchiment de la solution photopolymérisable. Nous remarquons sur ces courbes qu'il y a une diminution exponentielle de l'absorption pour atteindre des paliers qui sont fonction du taux d'éosine. L'absorption à l'origine croît en fonction de l'augmentation de l'éosine, la décroissance est plus lente toujours lorsque l'on passe au taux d'éosine élevé atteignant des paliers de valeurs, ces derniers augmentant de 5/1000 pour chaque taux. Nous supposons que la valeur finale atteinte sera identique pour un temps suffisamment grand, ceci pour une consommation totale de l'éosine que nous interprétons comme étant l'absorbance du film polymère. Une autre éventualité qui découle de la diffusion des constituants de la formulation, c'est la diffusion de l'éosine des zones plus riches vers les endroits où il est consommé. Ceci laissera place à une concentration résiduelle qui est due à cette migration.

2.5 Quelques exemples d'utilisation de la micropointe

Dans cette partie de l'étude, nous allons donner quelques applications de la micropointe optique polymère dans les domaines de l'imagerie et du couplage diode-fibre. Il ne s'agit pas d'étudier toutes les applications possibles de la micropointe, mais d'en donner simplement deux exemples significatifs qui ont pu être réalisés.

2.5.1 Utilisation de la micropointe pour la caractérisation du profil du faisceau émis par une diode laser

2.5.1.1 Dispositif expérimental mis en œuvre

Pour quantifier la résolution du système fibre/micropointe optique, celle-ci est testée en tant que profilomètre optique. En effet, la micropointe est considérée dans ce cas comme une sonde pour un microscope optique à balayage haute résolution. Le dispositif expérimental de la figure 2.13 page 55 est réalisé dans le but d'obtenir le profil d'intensité d'un faisceau lumineux émis par une diode laser ;

La fibre utilisée est une fibre optique monomode de $3\mu\text{m}$ de diamètre de cœur et de $125\mu\text{m}$ de diamètre de gaine, munie d'une micropointe dont les caractéristiques de fabrication sont :

- formulation photopolymérisable correspondant à un taux initial de 0,5% d'éosine,
- durée d'exposition de 2s,
- puissance en sortie de fibre égal à $2,5\mu\text{W}$.

Une micropointe de $25\mu\text{m}$ de longueur et d'un rayon de courbure de $5\mu\text{m}$ est ainsi obtenue. L'ensemble est collé sur une plaquette en céramique qui est introduite dans le porte-échantillon d'une tête de microscope à force atomique (AFM). Une commande piézo-électrique dirige, selon les 3 axes x, y et z le porte-échantillon. Afin d'obtenir un bon alignement et un bon rapprochement entre la micropointe et la diode laser, une autre piézo-électrique, pour commander cette fois-ci la diode à caractériser, est utilisée.

La puissance de couplage mesurée par le système est utilisée par le logiciel de contrôle pour former l'image du profil d'intensité émise par la diode laser. Cette dernière est de type : TOSHIBA 9442M fabriquée en InGaAIP émettant à 650 nm en émission stimulée et spontanée. Les principales caractéristiques de cette diode sont :

- Courant de seuil⁹ : $I_{th}=34.4\text{ mA}$
- Puissance optique : $P=5\text{ mW}$

2.5.1.2 Caractérisation et analyse

Dans un premier temps, sont obtenues plusieurs images de la distribution spatiale de l'intensité du faisceau émis par la diode en émission spontanée (courant d'injection = 25,6 mA). Dans la suite, nous montrons trois profils mesurés avec différentes distances entre la micropointe et la diode.

La figure 2.14 représente la distribution d'intensité du faisceau émis par la diode à une distance de $3\mu\text{m}$. Nous constatons une légère *structure* elliptique d'émission de la diode. Cette remarque est confirmée par la représentation en 3D du profil d'intensité (figure 2.14(droite)). La largeur du profil caractéristique de la direction transverse de l'ellipse (T) à (V_{max}/e^2) est d'environ $4,2\mu\text{m}$, selon la direction longitudinale (L) cette largeur est de $6,4\mu\text{m}$.

Lorsque l'on s'approche à une distance de $1\mu\text{m}$ (figure 2.15 page 57) la forme elliptique du profil du faisceau, caractéristique de l'émission d'une diode laser est plus prononcée. Cette constatation est validée par la représentation en 3D de l'ellipse (figure 2.15 page 57

⁹Le courant de seuil correspond au courant pour lequel la diode change de mode d'émission. Pour des intensités inférieures à I_{th} , la diode fonctionne en émission spontanée et, pour des intensités supérieures ou égale à I_{th} , la diode fonctionne en émission stimulée. En émission spontanée, le rayonnement optique est confiné dans la couche active de la diode et dans les régions adjacentes à celles-ci. En émission stimulée, la zone émettrice est très localisée au niveau de la zone active.

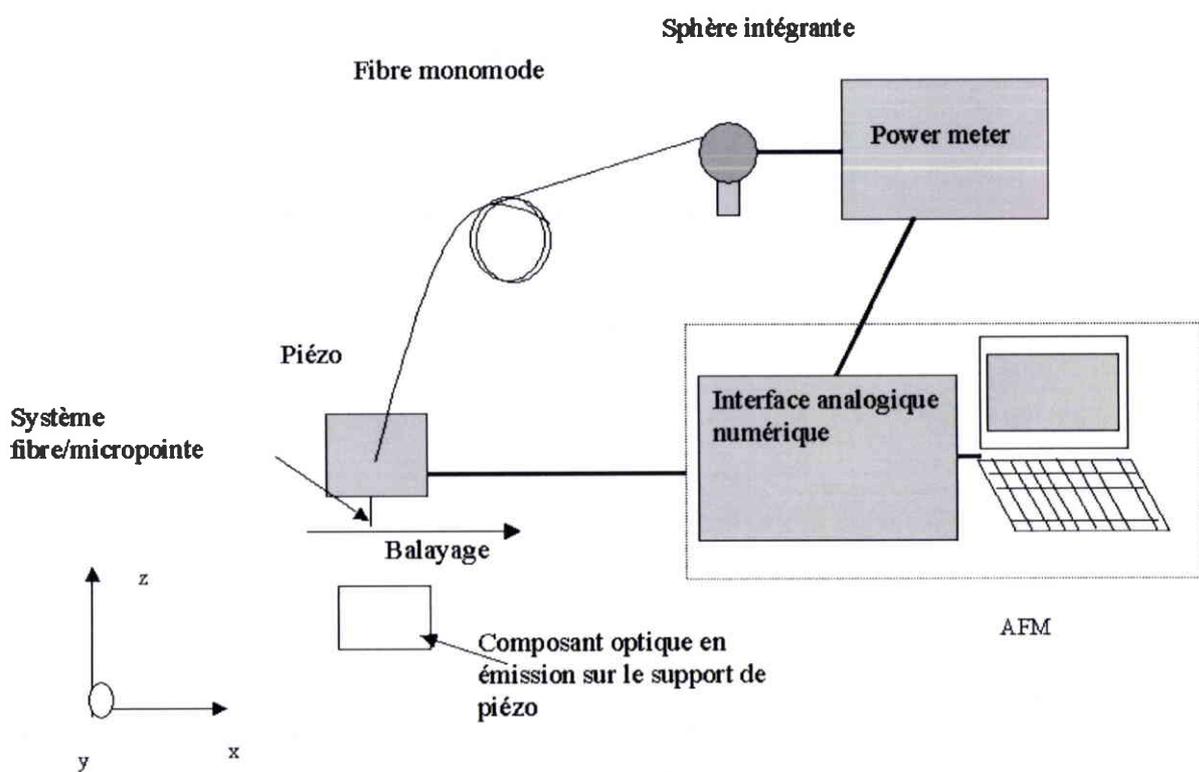


FIG. 2.13 – Principe du montage expérimental pour la caractérisation d'une diode laser .

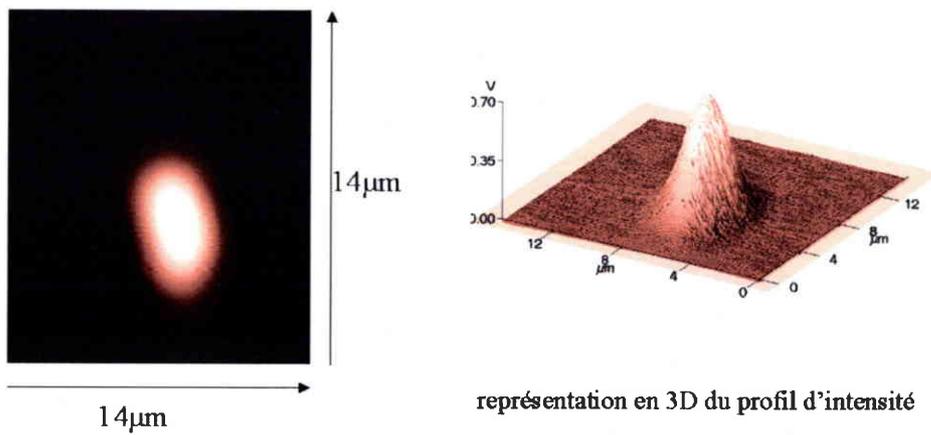


FIG. 2.14 – Profil d'intensité de la diode laser à une distance de $3\mu\text{m}$ de la fibre.

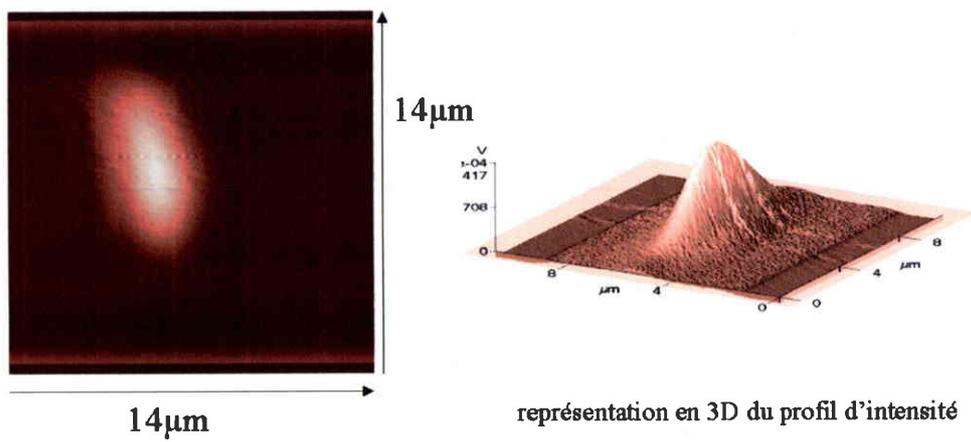


FIG. 2.15 – Profil d'intensité de la diode laser à une distance de $1\mu\text{m}$ de la fibre.

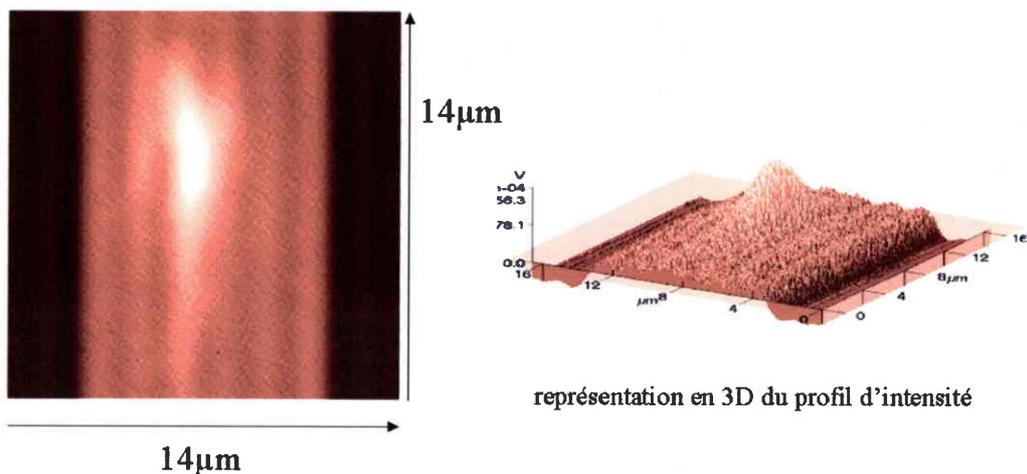


FIG. 2.16 – Profil d'intensité de la diode laser à une distance $< 1\mu\text{m}$ de la fibre.

de droite). Selon la direction transverse, la largeur à (V_{max}/e^2) est de $2,27\mu\text{m}$ alors que pour la direction longitudinale elle est de $6,4\mu\text{m}$. Ces valeurs, sensiblement plus marquées que pour l'image précédente, montrent que le système fibre/micropointe commence à bien résoudre la forme elliptique de l'émission de la diode laser. Cette différence dans les dimensions de l'ellipse entre les deux images, provient de la distance entre la diode et le micropointe ainsi que de la diffraction naturelle de la source (diode).

La figure 2.16 correspondant à une distance d bien inférieure à $1\mu\text{m}$ nous permet de constater l'apparition de stries, l'origine est encore à déterminer.

2.5.2 Utilisation de la micropointe pour le couplage de diode laser-fibre optique

Une des applications les plus intéressantes de la micropointe est le couplage entre une source laser et une fibre. C'est un enjeu économique important, touchant ainsi à la connec-

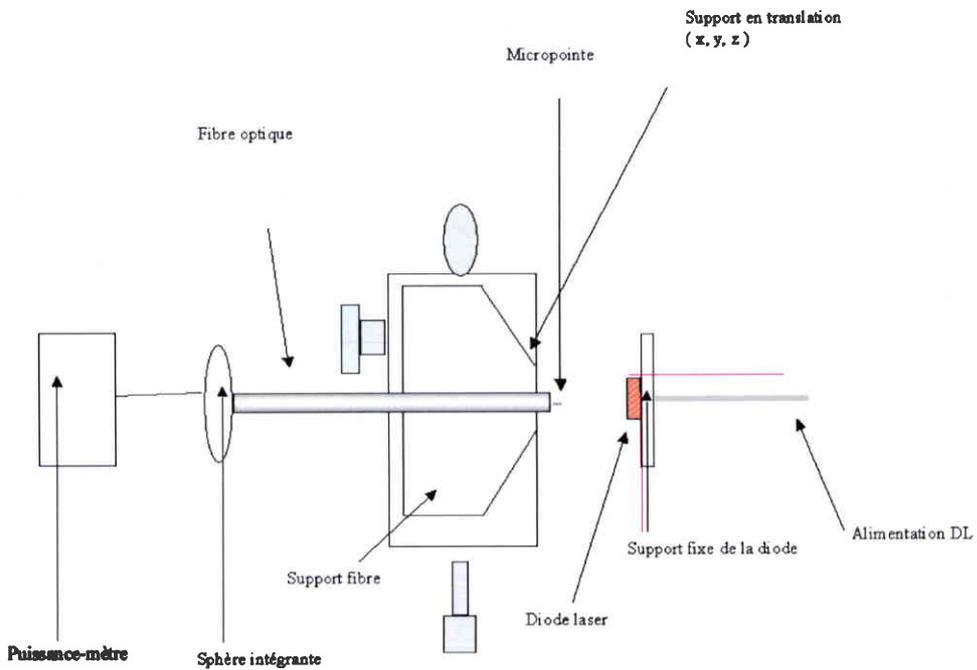


FIG. 2.17 – Banc expérimental permettant la mesure du taux de couplage diode-fibre, Diamètre du cœur/fibre = 9/125, ouverture numérique = 0,15, multimode à 544nm et monomode à 1550nm, diode infrarouge (MITSUBISHI, ML701B8R) émettant à 1310 nm, $I_{TH}=15$ mA, $\theta_{\parallel} = 25^{\circ}$, θ_{\perp}

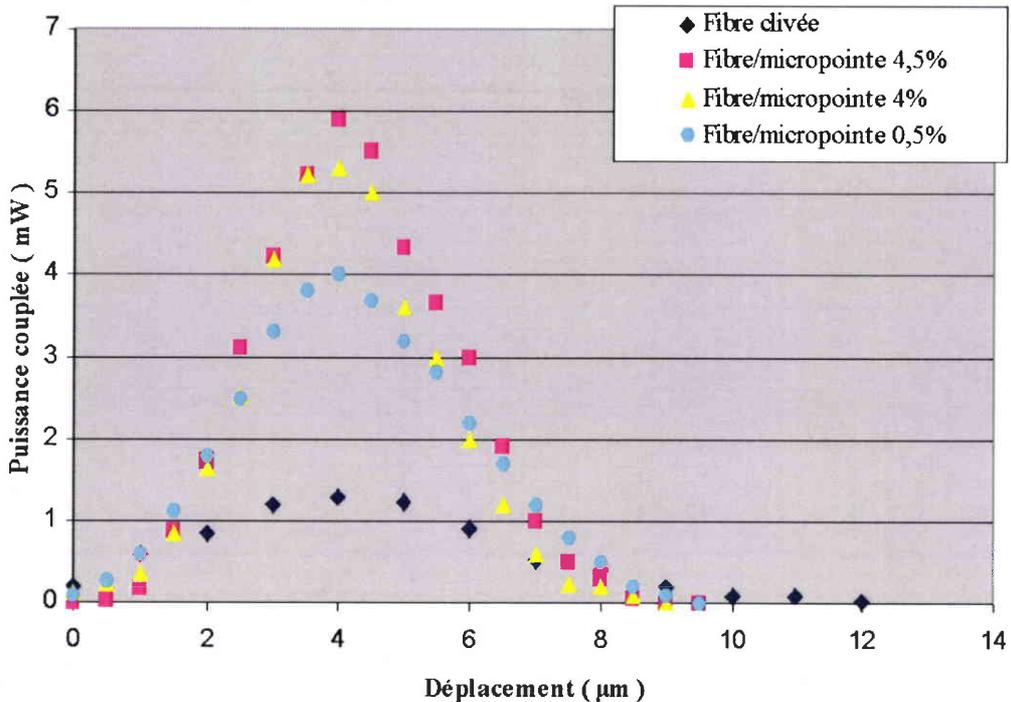


FIG. 2.18 – Comparaison du couplage avec et sans micropointe pour différents taux d'éosine. Ce déplacement est selon l'axe longitudinal (z) .

tique optique.

Le principe du montage est représenté sur la figure 2.17 page précédente. Le banc expérimental est composé de deux parties. Une partie fixe sur laquelle est fixée la diode laser et une partie en translation munie de vis micrométriques (qui permettent un déplacement dans les trois directions de l'espace) sur laquelle est montée le système fibre optique/micropointe.

Afin de comparer les résultats, nous avons mesuré le taux de couplage obtenu avec des fibres clivées ou équipées de micropointes réalisées avec des solutions comportant différents taux d'éosine.

Les graphes représentés sur la figure 2.18 donnent l'efficacité de couplage obtenue avec différentes micropointes comparée à une fibre nue en fonction de la distance fibre-source.

Les courbes de la figure 2.18 sont en forme de cloche, le maximum se situe autour de 4 µm ce qui correspond à la focale de la micropointe. Le taux d'éosine quant à lui nous donne des meilleurs taux de couplage pour les valeurs élevées (4,5%). La raison est que

lorsque le taux d'éosine augmente le rayon de courbure de la micropointe diminue (résultats de la partie de l'influence des paramètres 2.3.3 page 48). Ces résultats montrent clairement que la micropointe améliore l'efficacité de couplage d'un facteur allant de 4 à 6.

2.6 Conclusion

Les expériences décrites dans ce chapitre ont été réalisées au Laboratoire LNIO de l'UTT. Elles ont permis de mettre en évidence la possibilité de réaliser une pointe polymère micrométrique en bout de fibre optique, d'étudier l'influence des principaux paramètres expérimentaux sur les caractéristiques géométriques de la micropointe, et de valider quelques applications de cette technique. Ces études ont permis de caractériser la formation de cette micropointe en fonction de son taux d'éosine. Elles ont montré que le rayon de courbure de la pointe en dépendait fortement. De manière générale, sa géométrie dépend de la composition de la solution, mais aussi des conditions expérimentales permettant la réalisation de la micropointe : l'intensité du laser utilisé, la durée d'exposition et le type de fibre utilisé sont des facteurs déterminants pour la géométrie de la pointe. L'ensemble de ces facteurs doit être considéré si l'on veut pouvoir prévoir une fonction optique pour la micropointe.

Le chapitre suivant est consacré à la modélisation de la formation de la micropointe optique. Pour la mise au point du modèle et les calculs numériques en résultant, nous nous baserons sur les mesures présentées au cours de ce chapitre, ainsi que sur des interprétations phénoménologiques du processus de photopolymérisation.

Chapitre 3

Modélisation de la formation de la micropointe optique

Le présent chapitre aborde la modélisation de la formation de la micropointe optique : l'objectif est de comprendre, sur la base du modèle, les mécanismes qui régissent cette formation et de prévoir ainsi les formes, mais aussi les fonctions optiques réalisables par la micropointe.

Cette modélisation est fondée sur une double approche :

- électromagnétique d'une part via la modélisation de la propagation de la lumière dans la goutte de monomère déposée sur l'extrémité de la fibre.
- photochimique d'autre part à travers la modélisation phénoménologique de la photopolymérisation locale de la formulation.

Le calcul électromagnétique sera effectué à l'aide d'une méthode numérique connue sous le nom de Beam Propagation Method (BPM) dont les grandes lignes seront données ci-dessous. Le phénomène de photopolymérisation est en revanche plus complexe. Nous devons donc procéder à une approche phénoménologique à partir de résultats expérimentaux.

3.1 Méthode globale de modélisation utilisée

La méthode que nous allons utiliser pour modéliser le phénomène de photopolymérisation utilise la méthode BPM pour résoudre l'équation de propagation du champ électrique dans le milieu photopolymérisable. Les étapes peuvent être résumées comme suit :

- calculer le profil spatial du faisceau dans la goutte de monomère,

- utiliser la distribution de l'intensité pour calculer le degré de polymérisation de la solution, ceci en considérant le faisceau comme invariant pendant un temps élémentaire δt . Une fois la solution considérée comme partiellement polymérisée, celle-ci est supposée invariante pendant le temps que le faisceau se propage à travers elle - c'est une approximation extrêmement peu restrictive -
- le profil spatial du faisceau est alors de nouveau calculé via la BPM,
- effectuer une boucle N fois pour que $N\delta t$ soit égal à la durée d'exposition.

Dans la suite, nous détaillerons les différentes étapes.

3.1.1 Principe général de la BPM

Le principe de la BPM est décrit de la façon suivante :

Nous écrivons l'équation de propagation du champ électrique sous la forme :

$$\frac{\partial A}{\partial z} = (\hat{D} + \hat{N}A) \quad (3.1)$$

où :

- \hat{D} est un opérateur qui tient compte de la dispersion et de l'absorption dans un milieu linéaire.
- \hat{N} est un opérateur non linéaire qui gouverne les effets non linéaire dans les fibres.

Les phénomènes de dispersion, d'absorption et de non linéarité agissent ensemble le long de la fibre. La méthode BPM appelée aussi *Split Step Fourier method* donne une solution approximative en supposant sur une tranche Δz que la dispersion et la non linéarité agissent indépendamment. La propagation est alors présentée en deux étapes :

- la première étape, la non linéarité agit seule et $\hat{D}=0$ dans l'équation 3.1.
- la seconde étape, la dispersion agit seule, dans ce cas $\hat{N}=0$ dans l'équation 3.1

Le champ électromagnétique solution de l'équation 3.1 peut ainsi s'écrire :

$$A(z + \Delta z, T) = \exp(\Delta z \hat{D}) \exp(\Delta z \hat{N}) A(z, T) \quad (3.2)$$

L'opérateur $\exp(\Delta z \hat{D})$ est effectué dans le domaine de Fourier en utilisant :

$$\exp(\Delta z \hat{D}) A(z, T) = F^{-1} \exp[\delta z \hat{D}(i\omega)] F A(z, T) \quad (3.3)$$

- F : Opérateur transformé de Fourier.
- $i\omega$ est obtenue en remplaçant l'opérateur différentiel $\frac{\partial}{\partial T}$ par $i\omega$.

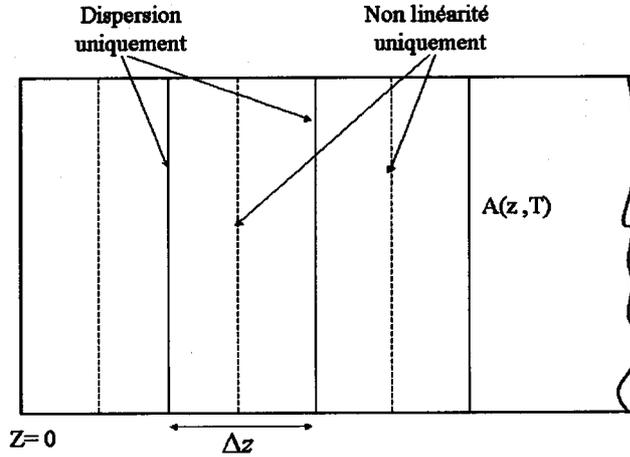


FIG. 3.1 – Représentation schématique de la Split Step Fourier Transform

- ω est la fréquence dans le domaine de Fourier.
- $\hat{D}(i\omega)$ est dans l'espace de Fourier.

L'utilisation de l'algorithme FFT¹ nous donne une évaluation numérique de l'équation 3.3 page ci-contre relativement rapide. C'est pour cette raison que la méthode BPM est préférable à la méthode des différences finies (58).

A partir de la formule de Baker-Hausdorff², la précision de la SSFM peut être améliorée en remplaçant l'équation 3.2 page précédente par l'équation 3.4 suivante :

$$A(z + \Delta z, T) = \exp\left(\frac{\Delta z}{2} \hat{D}\right) \exp\left(\int_z^{z+\Delta z} \hat{N}(z') dz'\right) \exp\left(\frac{\Delta z}{2} \hat{D}\right) A(z, T) \quad (3.4)$$

La principale différence est l'effet de la non linéarité qui est incluse dans le milieu du segment considéré. Cette méthode est connue sous l'appellation de Split Step Fourier Method Symétrique (59). Si Δz est suffisamment petit, on approxime l'intégrale de l'équation 3.4 par $\Delta z \hat{N}$, car dans ce cas :

$$\int_z^{z+\Delta z} \hat{N}(z') dz' \simeq \frac{\Delta z}{2} [\hat{N}(z) + \hat{N}(z + \Delta z)] \quad (3.5)$$

La SSFM a été appliquée pour de larges variétés de problèmes optiques incluant la propa-

¹Fast Fourier Transform

²La formule de Baker-Hausdorff donne pour deux paramètres \hat{a} et \hat{b} : $\exp(\hat{a}) \exp(\hat{b}) = \exp[\hat{a} + \hat{b} + 1/2[\hat{a}, \hat{b}] + 1/12\dots]$

gation des ondes dans l'atmosphère (59), les fibres à gradient d'indice (60; 61), les lasers à semiconducteur (62–64), les résonateurs optiques instables (65; 66) et les coupleurs de guides d'onde (67; 68).

3.1.1.1 Propagation de la lumière dans un milieu non linéaire

Nous commençons par l'équation de propagation d'Helmholtz suivante :

$$\frac{\partial^2 E}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 E}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 E}{\partial z^2} + \frac{\omega^2}{c^2 n^2(\omega, x, y, z)} E = 0. \quad (3.6)$$

ce qui peut aussi s'exprimer :

$$\frac{\partial^2 E}{\partial z^2} = -\nabla_{\perp}^2 E - \frac{\omega^2}{c^2} n^2(x, y) \quad (3.7)$$

où $\nabla_{\perp}^2 = \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2}$ est le laplacien transversal

et :

- E : champ électrique de l'onde qui se propage, avec

$$E(x, y, z) = \varepsilon(x, y, z) \exp(-ikz) \exp(-i\omega t). \quad (3.8)$$

- ω pulsation,

- c : vitesse de la lumière dans le vide,

- $n(\omega, x, y, z)$: indice de réfraction du milieu dépendant de ω , x et y et z ,

- $k = (n_0 \omega)/c$,

- x, y, z sont les coordonnées cartésiennes.

Nous souhaitons avoir une solution de l'équation 3.7 sous la forme :

$$E(x, y, \Delta z) = \exp(-i\Delta z) E(x, y, 0) \quad (3.9)$$

où Δz est une distance élémentaire du milieu de propagation.

ou encore

$$E(x, y, \Delta z) = \exp[-i\Delta z (\nabla_{\perp}^2 + \frac{\omega^2 \cdot n^2}{c^2})^{1/2}] E(x, y, 0) \quad (3.10)$$

où

$$(\nabla_{\perp}^2 + \frac{\omega^2 \cdot n^2}{c^2})^{1/2} = \frac{\nabla_{\perp}^2}{(\nabla_{\perp}^2 + \frac{\omega^2 \cdot n^2}{c^2})^{1/2} + \frac{\omega}{c} n} + \frac{\omega}{c} n \quad (3.11)$$

Sous la condition que $n(x, y)$ est peu variable (transversalement) nous pouvons réécrire l'équation 3.11 page ci-contre sous la forme suivante :

$$(\nabla_{\perp}^2 + \frac{\omega^2 \cdot n^2}{c^2})^{1/2} \cong \frac{\nabla_{\perp}^2}{(\nabla_{\perp}^2 + k^2)^{1/2} + k} + k + k[\frac{n}{n_0} - 1] \quad (3.12)$$

$n = n_1 + \delta n(x, y)$ On substituant l'équation 3.8 page précédente dans l'équation 3.10 page ci-contre nous allons avoir :

$$\varepsilon(x, y, \Delta z) = \exp \left[-i\Delta z \left[\frac{\nabla_{\perp}^2}{(\nabla_{\perp}^2 + k^2)^{1/2} + k} + \chi(x, y) \right] \right] \varepsilon(x, y, 0) \quad (3.13)$$

où :

$$\chi = k[(n/n_0) - 1] \quad (3.14)$$

désigne la variation d'indice dans la matériau. Dans le cas d'une photopolymérisation, cette variation est liée à la fonction réponse du matériau à la lumière incidente³. Aussi nous pouvons réécrire :

$$\begin{aligned} \varepsilon(x, y, \Delta z) = & \exp \left[\frac{-i\Delta z}{2} \left[\frac{\nabla_{\perp}^2}{(\nabla_{\perp}^2 + k^2)^{1/2} + k} \right] \right] \times \exp(-i\Delta z \chi) \\ & \times \exp \left[\frac{-i\Delta z}{2} \left[\frac{\nabla_{\perp}^2}{(\nabla_{\perp}^2 + k^2)^{1/2} + k} \right] \right] \varepsilon(x, y, 0) \end{aligned} \quad (3.15)$$

où nous avons utilisé la formule de Baker-Hausdorff (donnée précédemment).

3.1.2 Algorithme BPM

Nous pouvons schématiser l'équation 3.15 par un système de lentilles séparées par une distance Δz . La propagation est linéaire entre deux lentilles et chaque lentille impose la phase $\phi(x, y) = \Delta z \chi(x, y)$ (voir la figure 3.2 page suivante, tout comme dans la figure 3.1 page 65).

La première lentille est située à $z = \frac{\Delta z}{2}$. En cas de faible divergence du faisceau, ∇_{\perp}^2 est négligée devant k^2 et nous nous retrouvons dans l'approximation de Fresnel (2; 59; 69) qui est souvent utilisée dans de nombreuses études de propagation.

Pour comprendre l'action des différents opérateurs, il est mieux de se placer dans le domaine spectral. Nous avons deux actions :

³Il s'agit ici d'une augmentation de l'indice de réfraction du milieu photopolymérisable, lorsqu'on fait propager la lumière à l'intérieur. Cette réaction sera décrite plus loin.

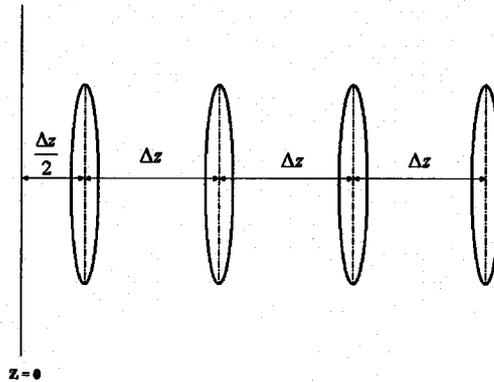


FIG. 3.2 – Système de lentilles séparée par Δz schématisant la propagation du faisceau lumineux dans la fibre optique

- la diffraction entre le plan z et le plan $z+\Delta z$, la propagation est facilement décrite par une fonction de transfert.
- la seconde action décrit l'effet de propagation en l'absence de diffraction et en présence d'inhomogénéités moyennes qu'elles soient intrinsèques ou induites.

La Figure 3.3 page suivante représente le schéma synoptique de l'algorithme de la BPM. Cet organigramme répond au schéma de la figure 3.2.

3.1.3 Solution dans le domaine numérique

La représentation numérique de l'équation 3.15 page précédente, donnant le champ électrique en un endroit en fonction du champ électrique à une distance Δz avant, peut être obtenue en exprimant $\varepsilon(x, y, z)$ en série de Fourier à 2 dimensions :

$$\varepsilon(x, y, z) = \sum_{m=-\frac{N}{2}+1}^{\frac{N}{2}} \sum_{n=-\frac{N}{2}+1}^{\frac{N}{2}} \varepsilon_{mn}(z) \exp\left[\frac{2\pi i}{L}(mx + ny)\right] \quad (3.16)$$

- L : largeur de calcul ;
- N : nombre d'échantillon selon x et y ;
- m et n : variables numériques selon x et y ;

La propagation du faisceau à travers une distance Δz dans un milieu homogène d'indice de réfraction n_0 transforme $\varepsilon_{mn}(0)$ sous forme :

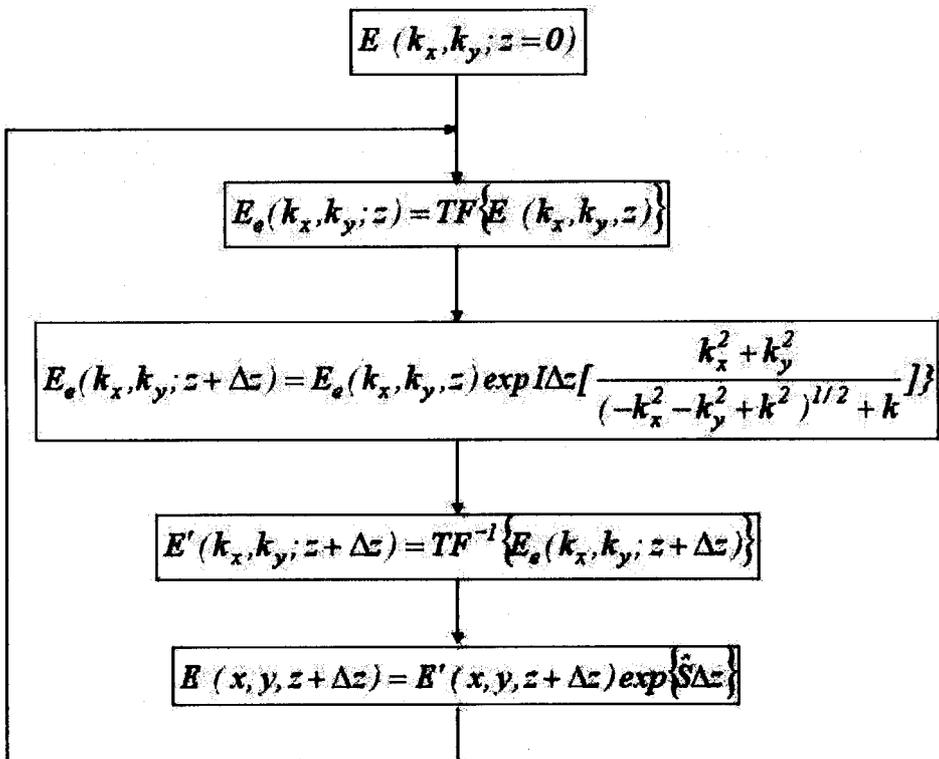


FIG. 3.3 – Organigramme de la BPM.

$$\varepsilon_{mn}(\Delta z) = \varepsilon_{mn}(0) \exp i\Delta z \left[\frac{\kappa_x^2 + \kappa_y^2}{(-\kappa_x^2 - \kappa_y^2 + k^2)^{1/2} + k} \right] \quad (3.17)$$

ou κ_x et κ_y sont les nombres d'onde transversaux.

$$\kappa_x = \frac{2\pi m}{L}; \kappa_y = \frac{2\pi n}{L} \quad (3.18)$$

A partir de l'équation 3.17, il est impératif de multiplier ε par le facteur $\exp(-i\Delta z\chi)$ ou $\varepsilon(x, y, \Delta z)$:

$$\varepsilon'(x, y) = \exp(-i\Delta z\chi)\varepsilon(x, y, \Delta z) \quad (3.19)$$

La valeur du nombre d'échantillon N va être déterminé par L et θ_{max} qui est l'ouverture numérique d'une fibre à saut d'indice

$$\theta_{max} = (n_{max}^2 - n_0^2)^{1/2} \quad (3.20)$$

La largeur de bande spatiale minimum est définie par :

$$\frac{N\pi}{L} = |\kappa_x^{max}| = |\Delta\kappa_y^{max}| > k \sin \theta_{max} \quad (3.21)$$

3.1.4 Modélisation de la cinétique de polymérisation

Grâce à la méthode BPM précédemment décrite, nous disposons d'un outil nous permettant de calculer la propagation d'un faisceau dans un milieu présentant une variation d'indice a priori quelconque.

Dans le cas qui nous intéresse de la photopolymérisation, cette variation d'indice est générée par la polymérisation du monomère dans lequel le faisceau se propage initialement. Par conséquent, si nous voulons simuler la formation de la micropointe optique, il nous faut proposer un modèle simple pour modéliser la réaction de photopolymérisation, c'est-à-dire mettre en équation l'influence de la puissance lumineuse sur le degré de polymérisation de la solution.

3.1.4.1 Travaux de Kewitsch et Yariv

Avant d'introduire nos modélisations, citons les travaux de Kewitsch et Yariv (47) en 1996. Ces auteurs ont mis au point des modèles de propagation de la lumière dans les

matériaux photosensibles pour décrire le phénomène de photopolymérisation. La photopolymérisation entraîne un changement d'indice de réfraction du matériau, fonction de l'énergie optique absorbée.

Les résultats expérimentaux obtenus par les auteurs pour une large variété d'acrylates photopolymères montrent que la variation d'indice de réfraction ($\Delta n'$) induite à l'instant t , au point de coordonnées (x,y,z) est donnée par l'équation 3.22 :

$$\Delta n'(x, y, z, t) = \Delta n'_0 \left\{ 1 - \exp\left[-\frac{1}{U_0} \int_0^{t-\tau} |E(t')|^2 dt'\right] \right\} \quad (3.22)$$

où :

- τ est la durée de vie des radicaux générés par photopolymérisation du monomère ;
- U_0 est l'exposition critique nécessaire pour induire la polymérisation ;
- $\Delta n'_0$ est le changement d'indice maximal, sa valeur dépend de la nature du polymère.

Pour un diacrylate et un triacrylate, $\Delta n'_0$ est respectivement égal à 0,043 et 0,028.

Le photoblanchiment (voir la définition dans la partie 2.4.1 page 50) est approximé par le modèle donné par l'équation 3.23, où $\Delta n''$ est la partie imaginaire de l'indice de réfraction, proportionnelle à l'absorption.

$$\Delta n''(x, y, z, t) = \Delta n''_0 \exp\left[-\frac{1}{U_0} \int_0^t |E(t')|^2 dt'\right] \quad (3.23)$$

Dans ce modèle (équation 3.22 et 3.23), le phénomène de photopolymérisation est traité en détail. Cependant des points importants, tels que la diffusion de la lumière et la diffusion des réactifs (monomères et colorants) entre les zones éclairées et non éclairées, ne sont pas pris en compte. Une bonne corrélation apparaît cependant entre la simulation et l'expérience.

3.1.4.2 Photopolymérisation : un modèle simple

Tout d'abord, il nous faut souligner que la variation d'indice dans la goutte n'est pas homogène. En effet, la variation d'indice locale en un point donné est directement liée au degré de polymérisation en ce point. Étant donné que la polymérisation est localement amorcée par un photon incident, nous pouvons considérer au premier ordre, que l'état de polymérisation local est fonction de l'intégrale temporelle de l'intensité incidente en ce point. Nous nommerons cette dernière grandeur *énergie accumulée* notée E_{acc} . Remarquons que ceci n'est valable qu'après une certaine période appelée temps d'inhibition. Il est alors possible de définir une *Énergie de seuil* E_s en deçà de laquelle aucune polymérisation n'a

lieu et au delà de laquelle le degré de polymérisation est fonction de l'énergie accumulée.

A la fin du processus, le matériau est partiellement polymérisé aux endroits suffisamment illuminés. Nous modéliserons la variation locale d'indice sous la forme d'une fonction empirique en *tangente hyperbolique*, qui est fidèle à la polymérisation observée expérimentalement (70; 71); nous baptiserons l'expression 3.24 *fonction réponse du matériau*.

$$\Delta n = dn \times \tanh\left[\frac{(E_{acc} - E_s)}{\alpha E_s}\right] \times h [E_{acc} - E_s] \quad (3.24)$$

Dans ce modèle :

- dn représente la variation maximale de l'indice de réfraction ;
- E_{acc} est l'énergie locale accumulée, comme défini ci dessus ;
- α correspond à l'inverse de la vitesse initiale de la réaction de polymérisation ;
- $h[E_{acc} - E_s]$ est un échelon unitaire décalé de E_s introduit pour éliminer la partie négative de la tangente hyperbolique.
- E_s est l'énergie de seuil de polymérisation ;

Voyons maintenant du point de vue physique ce que représente ce modèle. Notons au passage que l'équation 3.24 est une équation purement locale qui lie l'énergie accumulée locale à la variation d'indice locale. Le terme local peut également être interprété de manière temporel en ce sens que E_{acc} et Δ varient dans le temps.

3.1.4.3 L'oxygène, inhibiteur de la réaction

Le processus de photopolymérisation débute par la compétition entre deux réactions (57) :

- la première est la réaction du radical excité \dot{R} avec l'oxygène, qui forme une espèce qui ne permet pas la polymérisation.
- la deuxième est la réaction de ce même radical avec le monomère pour former une chaîne polymère.

La première réaction, avec l'oxygène, est la plus efficace. Il en résulte une période d'inhibition pendant laquelle les radicaux amorceurs sont désactivés par l'oxygène. Durant ce temps d'inhibition, la concentration en oxygène dans la formulation est supérieure à une valeur limite; le processus de désactivation par l'oxygène est alors dominant et la polymérisation ne peut débuter. Après cette inhibition permettant de consommer l'oxygène dissout dans la formulation, le nombre de radicaux formés devient supérieur au nombre de molécules d'oxygène et la réaction est amorcée. Il s'impose, à partir de cette analyse autour de la désactivation de la polymérisation par l'oxygène, l'existence d'un seuil ou plutôt d'une densité d'énergie seuil qu'il faut dépasser pour amorcer la polymérisation

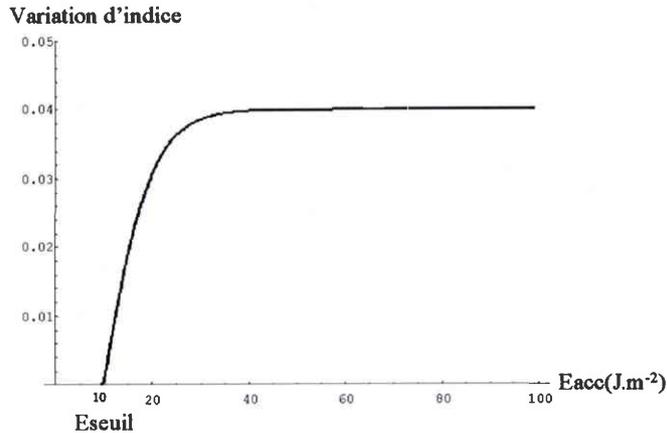


FIG. 3.4 – Exemple de cinétique de photopolymérisation. $dn=0,04$, $E_s=10$, $\alpha=1$.

et que nous noterons E_s . Ce phénomène est encore une fois purement local et doit être considéré point par point.

3.1.4.4 Modélisation de l'énergie de seuil

L'énergie de seuil n'est pas constante dans le matériau : elle est en effet intimement liée à la présence d'oxygène dissout dans la solution. Or, cet oxygène a deux origines principales distinctes :

- la présence dans la solution lors de sa préparation,
- la diffusion à partir de la surface de la goutte.

La première composante résulte en une concentration uniforme en oxygène dans toute la formulation. La deuxième nous donne une concentration en oxygène qui décroît à partir de la surface de la goutte et en entrant dans la formulation.

A l'interface air-polymère, on considère le système ouvert, c'est-à-dire en contact direct avec l'atmosphère ; l'approvisionnement en oxygène est alors permanent (Figure 3.5 page suivante).

L'effet inhibiteur de l'oxygène est accru du fait de la diffusion importante des molécules de l'oxygène de l'air dans la solution. Cette augmentation de l'énergie de seuil devient de plus en plus importante lorsque l'on se rapproche de l'air. Inversement lorsqu'on est loin de cette interface, c'est-à-dire à l'intérieur même de la goutte, on considère le système comme fermé. L'énergie de seuil aura alors plutôt une allure constante. On traduira ces

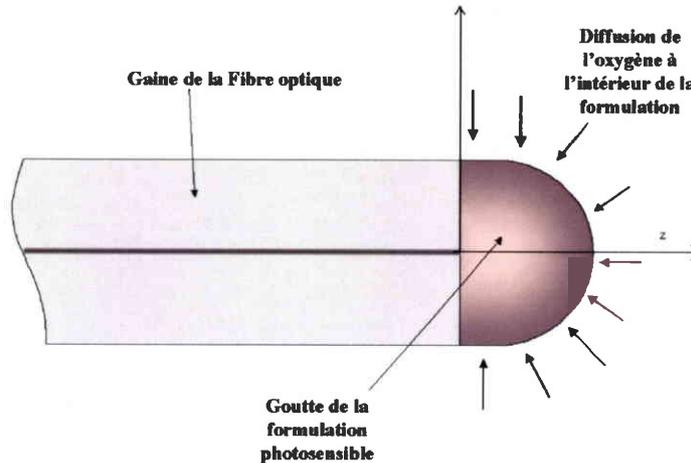


FIG. 3.5 – Diffusion de l'oxygène de l'atmosphère.

idées par un modèle exponentiel croissant de l'énergie de seuil dépendant de la distance z de l'interface air-polymère.

Nous proposons une modélisation phénoménologique de ce comportement selon l'expression suivante 3.25 :

$$E_s = C_s + C_{smax} \times \exp\left[\frac{(z - d)}{D_{diff}}\right]. \quad (3.25)$$

Les définitions des variables sont les suivantes :

- C_s est l'énergie de seuil qui est fonction de l'oxygène dissout,
- Le terme $(C_{smax} \times \exp[\frac{(z-d)}{D_{diff}}])$ correspond à l'influence de l'oxygène extérieur : l'énergie de seuil décroît exponentiellement sur une distance D_{diff} correspondant à la profondeur de diffusion de l'oxygène qui est typiquement de quelques microns,
- d est l'épaisseur de la goutte de formulation photopolymérisable,
- C_{smax} est l'énergie de seuil maximale à l'endroit de l'interface air-polymère,
- z est la distance par rapport à l'interface monomère-verre,

3.1.4.5 Ordre de grandeur des paramètres du modèle

Les paramètres qui interviennent dans le modèle décrivant la cinétique de polymérisation dépendent naturellement de la composition de la solution elle-même. Nous en donnerons donc des valeurs typiques pour les formulations que nous avons utilisées.

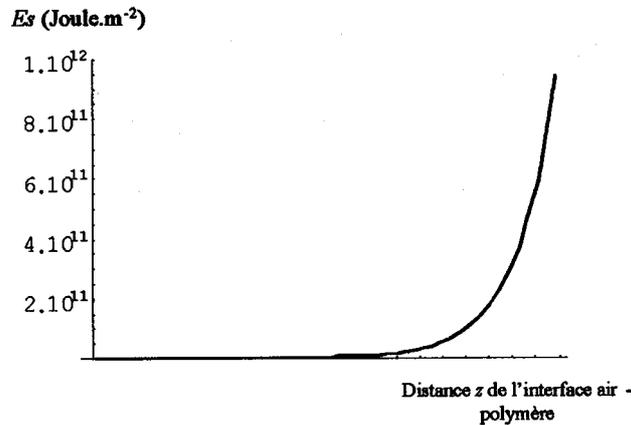


FIG. 3.6 – Variation de l'énergie de seuil en fonction de la distance par rapport à l'interface air-polymère

- $dn=0,04$: ce terme définit la différence entre l'indice du monomère liquide (1,48) et celui du polymère solide (1,52) (57) ;
- $C_s=100\text{mJ/cm}$ pour des formulations ayant 0,5% de taux d'éosine.
- D_{diff} peut varier de $0,5\mu\text{m}$ à $3\mu\text{m}$. Sa détermination précise est l'un des objets de notre simulation ;
- d est pris dans le domaine [$30\mu\text{m}$, $35\mu\text{m}$] la valeur prise dépend, comme pour les dimensions de la micropointe, de la manière de déposer la goutte.
- α est de l'ordre de 10 et dépend de la formulation ;
- C_{smax} est inscrit dans une plage de variation donnée par les considérations suivantes ainsi que par l'équation 3.26 page suivante.

Attardons nous un instant sur les relations nécessaires entre ces constantes de manière à conserver une signification physique à notre modèle de diffusion de l'oxygène :

- nous avons à $z=d$ à la surface de la goutte : $E_s = C_{smax} + C_s$. Ceci correspond au seuil de polymérisation maximum. A cet endroit $C_{smax} > C_s^4$.
- A $z=0$, c'est-à-dire à la surface de la fibre, l'oxygène de l'air n'a plus d'influence. Ce qui nous amène à la condition suivante : $C_s \gg C_{smax} \exp[-d/D_{diff}]$.

⁴Cette condition sur C_{smax} est motivée par l'approvisionnement en oxygène du fait de sa présence importante à l'endroit de l'interface air-monomère

Nous obtenons finalement

$$C_s < C_{smax} < C_s \exp[d/D_{diff}] \quad (3.26)$$

Dans notre cas pour $d = 35\mu\text{m}$ et $D_{diff} = 3\mu\text{m}$ environ, nous aurons $C_s > C_{smax} \times 10^{-5}$ et ainsi : $10^3 \text{J/m}^2 < C_{smax} < 10^8 \text{J/m}^2$.

Voyons maintenant la corrélation entre ces limites et la distance de diffusion D_{diff} lorsque D_{diff} varie. A titre d'exemple, pour $0,5\mu\text{m}$ de diffusion, nous aurons $C_s > C_{smax} \times 10^{-30}$, ce qui nous amène la plage de variation à $10^3 \text{J/m}^2 < C_{smax} < 10^{33} \text{J/m}^2$. De la même façon si on a $1\mu\text{m}$ de diffusion, alors $10^3 \text{J/m}^2 < C_{smax} < 10^{18} \text{J/m}^2$

3.1.5 Introduction du modèle de la cinétique de photopolymérisation dans l'algorithme BPM

Nous adapterons l'algorithme BPM à notre cas en y introduisant nos équations et nos paramètres physiques. On a vu précédemment que dans la méthode BPM le terme χ est fonction de Δn , qui représente la variation d'indice du matériau en fonction de l'état de polymérisation.

On a :

$$\chi = k \left(\frac{\Delta n}{n_0} \right) \quad (3.27)$$

Ce qui donne :

$$\chi = k \left(\frac{dn \times \tanh\left[\frac{(E_{acc} - E_s)}{\alpha E_s}\right] \times h[E_{acc} - E_s]}{n_0} \right) \quad (3.28)$$

3.1.6 Introduction du modèle de l'énergie de seuil dans l'algorithme BPM

De la même manière que précédemment, nous substituons dans l'équation 3.28 l'énergie de seuil E_s par son expression qui est donnée dans la section 3.1.4.4 page 73. Ceci nous

amène à :

$$\chi = k \left(\frac{dn \times \tanh \left[\frac{(E_{acc} - \{C_s + C_{smax} \times \exp[\frac{(z-d)}{D_{diff}}\}])}{\alpha \{C_s + C_{smax} \times \exp[\frac{(z-d)}{D_{diff}}\}]} \right] \times h [E_{acc} - \{C_s + C_{smax} \times \exp[\frac{(z-d)}{D_{diff}}\}]]}{n_0} \right) \quad (3.29)$$

La fonction variation d'indice χ est donc liée à plusieurs paramètres dont notamment :

- D_{diff} distance de diffusion de l'oxygène ;
- C_s constante de seuil de polymérisation ;
- C_{smax} constante de seuil de polymérisation maximale ;
- α correspond à l'inverse de la vitesse initiale de la réaction de polymérisation ;

3.1.7 Synoptique et algorithme de la simulation

Après l'analyse faite autour de la BPM, de la modélisation de la photopolymérisation et l'interprétation des constantes y intervenant, nous synthétisons l'ensemble de toutes ces données en un seul bloc (figure 3.7). Ce schéma représente l'algorithme de calcul qui nous permettra d'obtenir l'état de polymérisation du matériau en fonction des données d'entrée à savoir :

- l'illumination : intensité, forme du faisceau,...etc
- les caractéristiques du milieu : énergie de seuil de polymérisation, distance de diffusion de l'oxygène... etc

nous voyons sur ce schéma trois principales étapes :

- nous calculons d'abord la distribution en 3 dimensions du champ électrique émergeant de la fibre optique et qui se propage dans la goutte de formulation photopolymérisable.
- l'étape suivante consiste à mettre à jour l'énergie lumineuse qui s'accumule au cours du temps à partir de l'intensité du champs calculé avant.
- la dernière étape utilise le modèle fixé en 3.1.4.2 page 71 pour calculer en 3 dimensions l'indice de réfraction du milieu.

Le nombre de fois que ces 3 étapes devront être effectuées dépend de la durée d'exposition t_s et du pas Δt représentant la résolution temporelle. L'état de polymérisation du matériau, sera son indice de réfraction final.

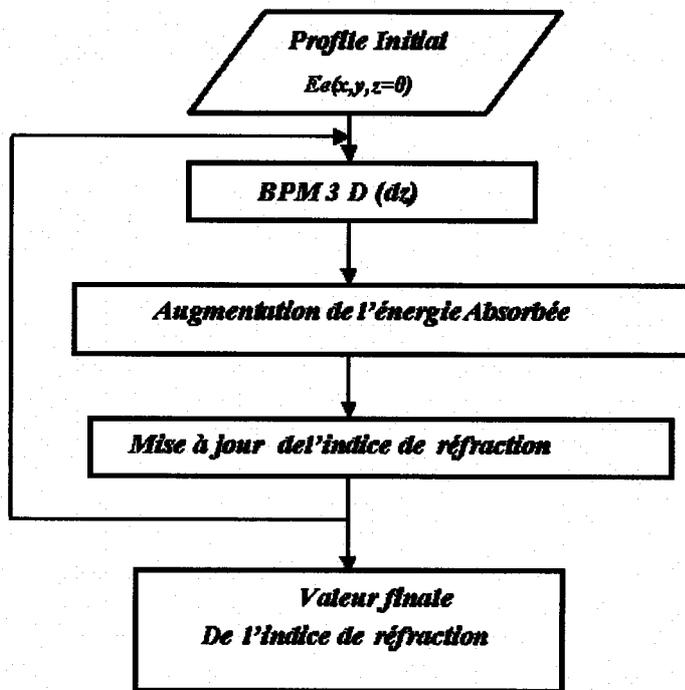


FIG. 3.7 – Organigramme du code de calcul

3.2 Résultats de simulation

3.2.1 Introduction

Après avoir vu la méthode globale utilisée pour la modélisation de la propagation du faisceau dans le milieu photopolymérisable et la présentation du modèle de base mis au point pour la photopolymérisation, nous présenterons maintenant des résultats de notre simulation. Ces derniers vont nous permettre de comprendre comment les paramètres intervenant dans notre modèle influencent la formation de la micropointe et plus spécifiquement ses caractéristiques opto-géométriques tel que le rayon de courbure.

Nous commencerons par étudier l'influence des paramètres physiques tels que :

- les constantes de seuil de polymérisation C_s et C_{smax} ,
- la distance de diffusion de l'oxygène extérieur D_{diff} ,
- la constante α qui est l'inverse de la vitesse de polymérisation,

Nous verrons par la suite, l'effet que peuvent apporter les caractéristiques du faisceau lumineux tel que le waist, la puissance et la durée d'exposition sur la forme de la micropointe.

Toutes ces simulations sont réalisées sous approximation gaussienne du faisceau lumineux émergeant de la fibre optique : par ailleurs nous allons voir quel est l'effet que peut avoir la prise en compte d'un vrai mode de propagation fondamental LP_{01} sur les résultats. Nous finirons par présenter deux séries de simulations, montrant la croissance de la micropointe et la propagation du faisceau dans le milieu photopolymérisable. Deux fibres optiques différentes respectivement de 3 et $9\mu\text{m}$ de diamètre de coeur seront étudiées.

3.2.2 Influence des paramètres physicochimiques intervenant dans la simulation

Nous consacrerons donc cette partie à l'étude de l'influence des paramètres physicochimiques caractérisant la formulation photopolymérisable. En d'autres termes, si nous nous reportons, au modèle phénoménologique de la photopolymérisation décrit par l'équation 3.24 page 72, c'est l'influence de C_s , C_{smax} , D_{diff} et α que nous allons tenter de caractériser.

3.2.2.1 Influence de la constante de seuil C_s et C_{smax}

La constante C_s caractérise le seuil de polymérisation due à la l'oxygène dissout dans la formulation lors de sa préparation. L'oxygène qui diffuse de l'extérieur vers la formu-

tion, fait augmenter l'énergie de seuil en profondeur, pour atteindre C_{smax} qui justement décrit l'influence de cet oxygène présent dans l'atmosphère de croissance. Celle-ci décroît exponentiellement sur une distance caractérisée par D_{diff} .

D'après la partie 3.1.4.5 page 74, nous rappelons que C_{smax} doit se trouver dans l'intervalle $[C_s, C_s \exp(d/D_{diff})]$.

Pour étudier l'influence de C_{smax} , nous prendrons plusieurs valeurs dans cet intervalle. Or celui-ci est fonction de D_{diff} et de C_s , nous avons ainsi réalisé 3 séries de simulations. D'une série à une autre, D_{diff} change de valeur et pour chaque série nous avons 3 sous-ensembles de simulations montrant l'influence de C_s et C_{smax}

Première analyse Les données sont regroupées dans le tableau 3.1 page ci-contre, et les résultats de simulations sont reportés sur la figure 3.8 page 82. Nous avons fixé D_{diff} à $3\mu m$, ce qui nous donne l'intervalle autorisé pour C_{smax} $[C_s, C_s \times 10^5]$

Les autres paramètres sont pris comme suit : durée d'exposition $t_s=1s$, puissance d'exposition = $2,5\mu W$.

Les résultats de nos simulations reportés sur la figure 3.8 page 82 nous permettent d'analyser la micropointe et notamment ses extrémités, come suit :

Le diamètre de la micropointe diminue en fonction de l'augmentation C_{smax} à C_s constant, le début restant pratiquement constant (balayage de haut en bas). Avec l'augmentation de C_s le diamètre du début diminue tout en gardant l'extrémité constante (balayage de gauche à droite). Les ombres que nous observons sur ces mêmes figures ne sont qu'un effet introduit par le logiciel.

Deuxième analyse La deuxième série de simulation que nous avons fait consiste à prendre une valeur plus petite de la distante de diffusion $D_{diff}=2\mu m$. Pour cette valeur, la limite supérieure de C_{smax} est plus importante (voir condition sur C_{smax}) ; elle est multipliée par 10^2 par rapport aux valeurs précédentes. Toutes les autres données restent inchangées, à savoir la durée d'exposition, la puissance. . . Les limites de C_{smax} sont alors : $[C_s, C_s \times 10^7]$

Les observations faites lors de la première analyse autour des diamètres initiaux et finaux de la micropointe restent valables pour la seconde analyse. La seule différence réside dans le fait que la diminution de ces mêmes diamètres est plus importante que dans le cas précédent.

Troisième analyse La troisième analyse est faite pour $D_{diff}=1\mu m$. Cette fois nous avons de larges valeurs de C_{smax} avec un maximum de $10^{20} J/m^2$. Le tableau 3.3 page 84 présente

Figure	C_s	C_{smax}	$D_{diff}(\mu\text{m})$	α	Puissance(μw)
a	10^3	10^4	3	10	2,5
b	10^3	10^5	3	10	2,5
c	10^3	10^6	3	10	2,5
d	10^3	10^7	3	10	2,5
e	10^3	10^8	3	10	2,5
f	10^4	10^5	3	10	2,5
g	10^4	10^6	3	10	2,5
h	10^4	10^7	3	10	2,5
i	10^4	10^8	3	10	2,5
j	10^4	10^9	3	10	2,5
k	10^5	10^6	3	10	2,5
l	10^5	10^7	3	10	2,5
m	10^5	10^8	3	10	2,5
n	10^5	10^9	3	10	2,5
o	10^5	10^{10}	3	10	2,5

TAB. 3.1 – Première analyse de l'influence des constantes C_s et C_{smax} correspondant à la Figure 3.8 page suivante. Durée d'exposition = 1 s, puissance = $2,5\mu\text{W}$, mode de propagation fondamental approché par une gaussienne, dimension de la fibre optique : 9/125

Figure	C_s	C_{smax}	$D_{diff}(\mu\text{m})$	α	Puissance(μw)
a	10^3	10^4	2	10	2,5
b	10^3	10^6	2	10	2,5
c	10^3	10^8	2	10	2,5
d	10^3	10^9	2	10	2,5
e	10^3	10^{10}	2	10	2,5
f	10^4	10^5	2	10	2,5
g	10^4	10^7	2	10	2,5
h	10^4	10^9	2	10	2,5
i	10^4	10^{10}	2	10	2,5
j	10^4	10^{11}	2	10	2,5
k	10^5	10^6	2	10	2,5
l	10^5	10^8	2	10	2,5
m	10^5	10^{10}	2	10	2,5
n	10^5	10^{11}	2	10	2,5
o	10^5	10^{12}	2	10	2,5

TAB. 3.2 – Deuxième analyse de l'influence des constantes C_s et C_{smax} correspondant à la Figure 3.9 page 83, Durée d'exposition = 1 s, Puissance = $2,5\mu\text{W}$, mode de propagation fondamental approché par une gaussienne, Dimension de la fibre optique : 9/125

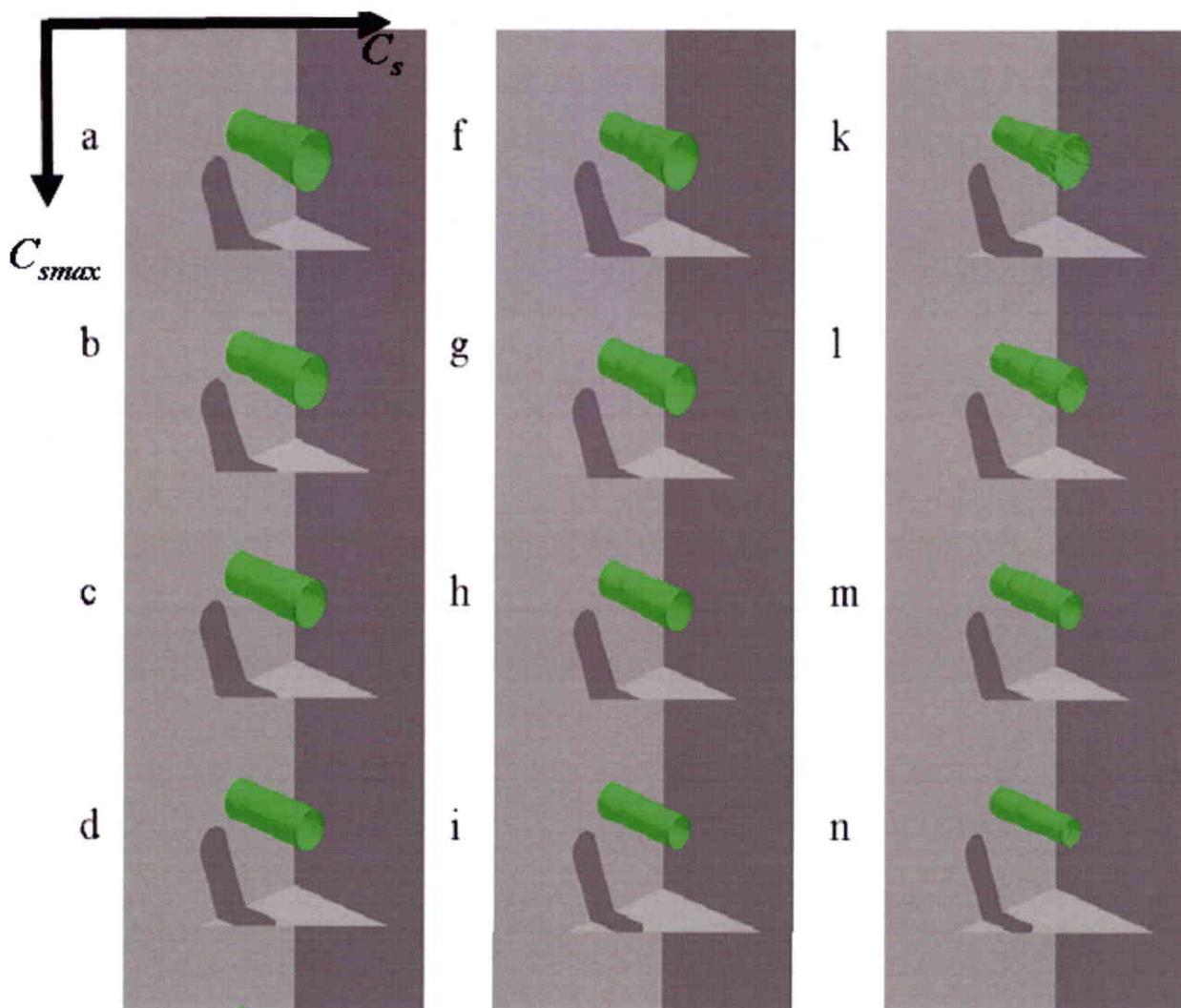


FIG. 3.8 – Influence des constantes de seuil C_s et C_{smax} correspondant au tableau 3.1 page précédente. Pour une distance de diffusion $D_{diff} = 3\mu\text{m}$ a)→ e) $C_s = 10^3$, C_{smax} est variable. f)→ j) $C_s = 10^4$, C_{smax} est variable. k)→ o) $C_s = 10^5$, C_{smax} est variable, la valeur de l'isoindice choisi pour ces résultats est de 1,50 .

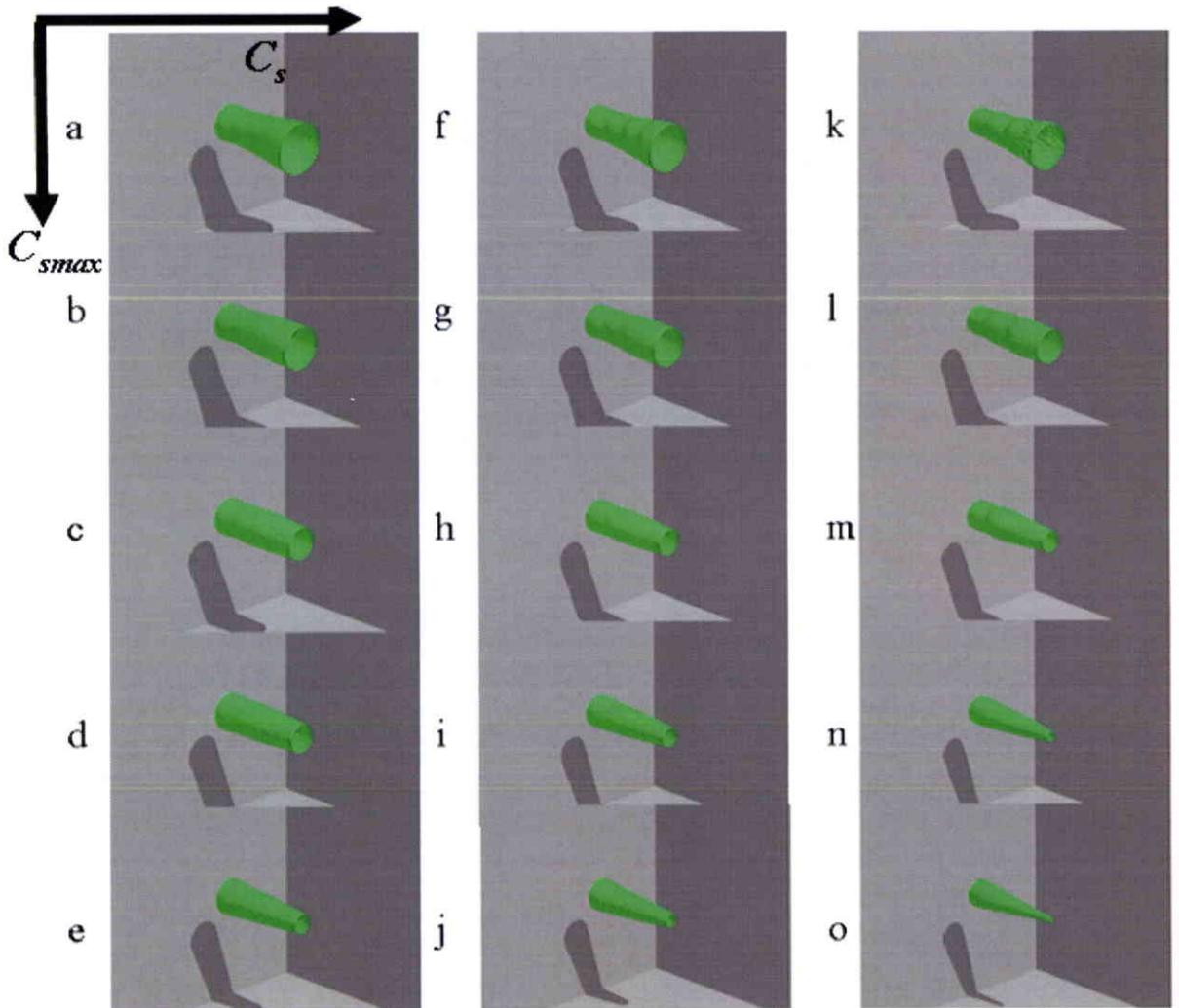


FIG. 3.9 - Influence des constantes de seuil C_s et C_{smax} correspondant au tableau 3.2 page 81. Pour une distance de diffusion $D_{diff} = 2\mu\text{m}$ a)→ e) $C_s = 10^3$, C_{smax} est variable. f)→ j) $C_s = 10^4$, C_{smax} est variable. k)→ o) $C_s = 10^5$, C_{smax} est variable, la valeur de l'isoindice choisi pour ces résultats est de 1,50.

Figure	C_s	C_{smax}	$D_{diff}(\mu\text{m})$	α	Puissance(μW)
a	10^3	10^4	1	10	2,5
b	10^3	10^8	1	10	2,5
c	10^3	10^{12}	1	10	2,5
d	10^3	10^{16}	1	10	2,5
e	10^3	10^{18}	1	10	2,5
f	10^4	10^5	1	10	2,5
g	10^4	10^9	1	10	2,5
h	10^4	10^{13}	1	10	2,5
i	10^4	10^{17}	1	10	2,5
j	10^4	10^{19}	1	10	2,5
k	10^5	10^6	1	10	2,5
l	10^5	10^{10}	1	10	2,5
m	10^5	10^{14}	1	10	2,5
n	10^5	10^{18}	1	10	2,5
o	10^5	10^{20}	1	10	2,5

TAB. 3.3 – Troisième analyse de l'influence des constantes C_s et C_{smax} correspondant à la Figure 3.10 page ci-contre, Durée d'exposition = 1 s, Puissance = $2,5\mu\text{W}$, mode de propagation fondamental approché par une gaussienne, Dimension de la fibre optique : 9/125.

l'ensemble des valeurs de chaque constante, toujours en prenant une durée d'exposition d'une seconde et une puissance de $2,5\mu\text{W}$. Nous reportons les résultats de simulation sur la figure 3.10 page ci-contre.

Dans ces simulations également nous rencontrons la même évolution des diamètres de la micropointe en fonction de la variation des constantes C_s et C_{smax} , que lors des deux premières analyses. Par contre, nous pouvons voir que la micropointe prend des aspects arrondis de plus en plus lorsque C_{smax} augmente et ceci à partir de 10^{12} J/m^2 .

Les limites permises pour C_{smax} sont $[C_s, C_s \times 10^{15}]$

3.2.2.2 Influence de la constante de diffusion de l'oxygène D_{diff}

La distance de diffusion de l'oxygène extérieur est lié d'une part à l'énergie de seuil de polymérisation E_s puisqu'il fait varier la pente de celle-ci, d'autre part, aux constantes de seuil de polymérisation C_s et C_{smax} , puisqu'il conditionne les limites permises à la constante de seuil de polymérisation maximale.

Si nous souhaitons voir comment la constante D_{diff} agit sur la formation de la micropointe, nous devons dresser une liste de valeurs que peut prendre cette constante, pour des

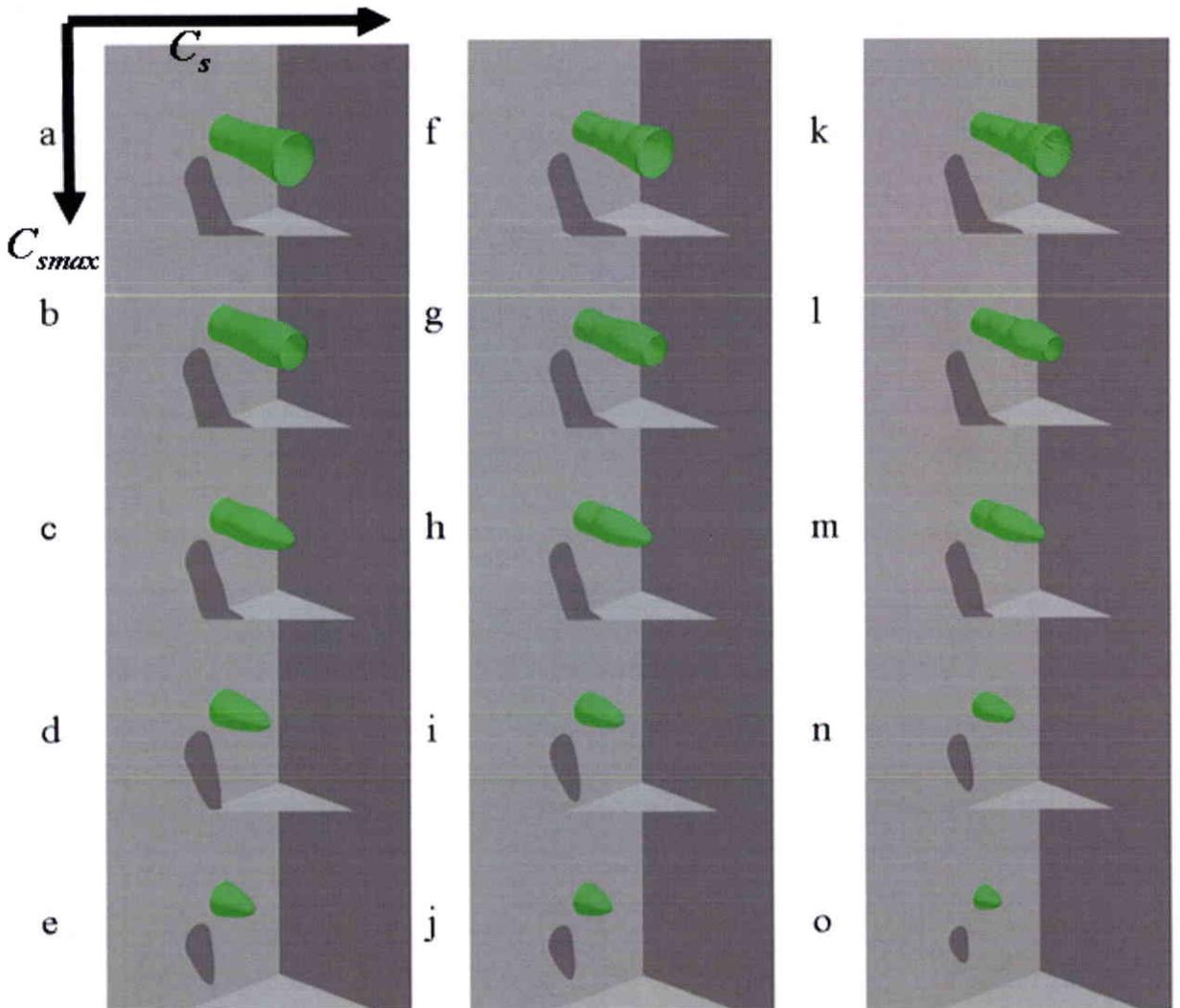


FIG. 3.10 – Influence des constantes de seuil C_s et C_{smax} . Pour une distance de diffusion $D_{diff} = 1\mu\text{m}$ a)→ e) $C_s = 10^3$, C_{smax} est variable. f)→ j) $C_s = 10^4$, C_{smax} est variable. k)→ o) $C_s = 10^5$, C_{smax} est variable correspondant au tableau 3.3 page ci-contre, la valeur de l'isoindice choisi pour ces résultats est de 1,50.

$D_{diff}(\mu\text{m})$	Intervalle de $C_{smax}(\text{J}/\text{m}^2)$
1,75	$[10^4, 4,85 \times 10^{13}]$
1,5	$[10^4, 1,36 \times 10^{14}]$
1,25	$[10^4, 1,44 \times 10^{16}]$
1	$[10^4, 1,6 \times 10^{19}]$
0,75	$[10^4, 1,85 \times 10^{24}]$
0,5	$[10^4, 2,51 \times 10^{34}]$
0,25	$[10^4, 6.32 \times 10^{64}]$

TAB. 3.4 – Variation des limites de C_{smax} en fonction de D_{diff} . Ces limites sont données pour exprimer le fait que le plus petit intervalle est effectivement celui de $D_{diff}=1,75\mu\text{m}$.

Figure	α	C_s	C_{smax}	$D_{diff}(\mu\text{m})$	Puissance(μW)
a	10	10^4	4.8×10^{13}	0,25	2,5
b	10	10^4	4.8×10^{13}	0,5	2,5
c	10	10^4	4.8×10^{13}	0.75	2,5
d	10	10^4	4.8×10^{13}	1	2,5
e	10	10^4	4.8×10^{13}	1,25	2,5
f	10	10^4	4.8×10^{13}	1,5	2,5
g	10	10^4	4.8×10^{13}	1,75	2,5

TAB. 3.5 – Analyse vis-à-vis de la constante de diffusion de l’oxygène D_{diff} avec un waist de $1,44\mu\text{m}$. Durée d’exposition = 1 s, Puissance = $2,5\mu\text{W}$, mode de propagation fondamental approché par une gaussienne. Les résultats de simulation sont reportés sur la figure 3.11 page 88

valeurs fixes de C_s et de C_{smax} . D’après la section 3.1.4.5 page 74, nous rappellerons que C_{smax} doit se trouver dans l’intervalle $[C_s, C_s \exp(d/D_{diff})]$. Ceci nous permet de créer le tableau 3.4, qui nous donne la valeur que peut prendre C_{smax} pour chaque valeur de D_{diff} . Nous remarquons dans ce tableau que pour la plus grande valeur de D_{diff} , nous avons un plus petit intervalle de C_{smax} , si nous fixons la valeur de cette dernière dans cet intervalle nous serons sûr qu’elle sera incluse dans tous les autres intervalles correspondant chacun à une valeur de D_{diff} . Nous présentons sur le tableau 3.5 les valeurs des différentes constante du modèle pour chaque simulation. L’ensemble des résultats est reporté sur la figure 3.5.

On observe que :

- Pour les faibles D_{diff} ($0,25\mu\text{m}$ à $0,75\mu\text{m}$), les micropointes augmentent de diamètre en allant vers l’extrémité répondant ainsi au profil de la diffraction du faisceau optique. Le diamètre moyen diminue avec D_{diff} .
- le rayon de courbure diminue de façon importante à partir d’une valeur maximum de

Figure	α	C_s	C_{acc}	$D_{diff}(\mu W)$	Puissance(μW)
a	10^{-2}	10^3	10^{13}	1	2,5
b	10^{-1}	10^3	10^{13}	1	2,5
c	1	10^3	10^3	1	2,5
d	10	10^3	10^3	1	2,5
e	20	10^3	10^3	1	2,5
f	30	10^3	10^3	1	2,5
g	50	10^3	10^3	1	2,5
h	10^2	10^3	10^3	1	2,5
i	2×10^2	10^3	10^3	1	2,5
j	5×10^2	10^3	10^3	1	2,5
k	10^3	10^3	10^3	1	2,5

TAB. 3.6 – Influence de la vitesse de polymérisation α correspondant à la Figure 3.13 page 90.

$9\mu m$ pour $0,25\mu m$ de D_{diff} pour atteindre un minimum de $1\mu m$ pour $1,25\mu m$ (voir figure 3.5 page précédente).

Nous reportons l'évolution du rayon de courbure en fonction de D_{diff} sur la figure 3.12 page 89, où nous notons la décroissance en exponentielle de ce même rayon.

3.2.2.3 Influence de l'inverse de la vitesse de polymérisation

Le paramètre α est lié à la pente de la courbe de *réponse du matériau* (voir équation 3.24 page 72), il correspond ainsi à l'inverse de la vitesse de polymérisation du milieu photopolymérisable. Nous avons présenté sur le tableau 3.6 les paramètres de calcul utilisés dans les simulations effectuées pour tester l'influence de α à qui nous donnons des valeurs allant de 10^{-2} à 10^3 .

Ces résultats de calcul sont reportés sur la figure 3.13 page 90. On observe que pour les petites valeurs de α , c'est-à-dire α compris entre 0,01 et 20 les images a, b, c, d, e présentent une forme plus arrondie et sont plus volumineuse. En revanche, pour les grandes valeurs de α , les micropointes optiques obtenues sont plus étroites avec des rayons de courbure plus petits. L'interprétation sera faite à la fin de ce chapitre.

3.2.3 Etude de la micropointe en fonction des caractéristiques du faisceau

Nous allons voir l'influence des paramètres du faisceau tels que le waist, la puissance. Nous testerons aussi l'effet du *vrai* mode de propagation fondamental LP_{01} . Car jusqu'à

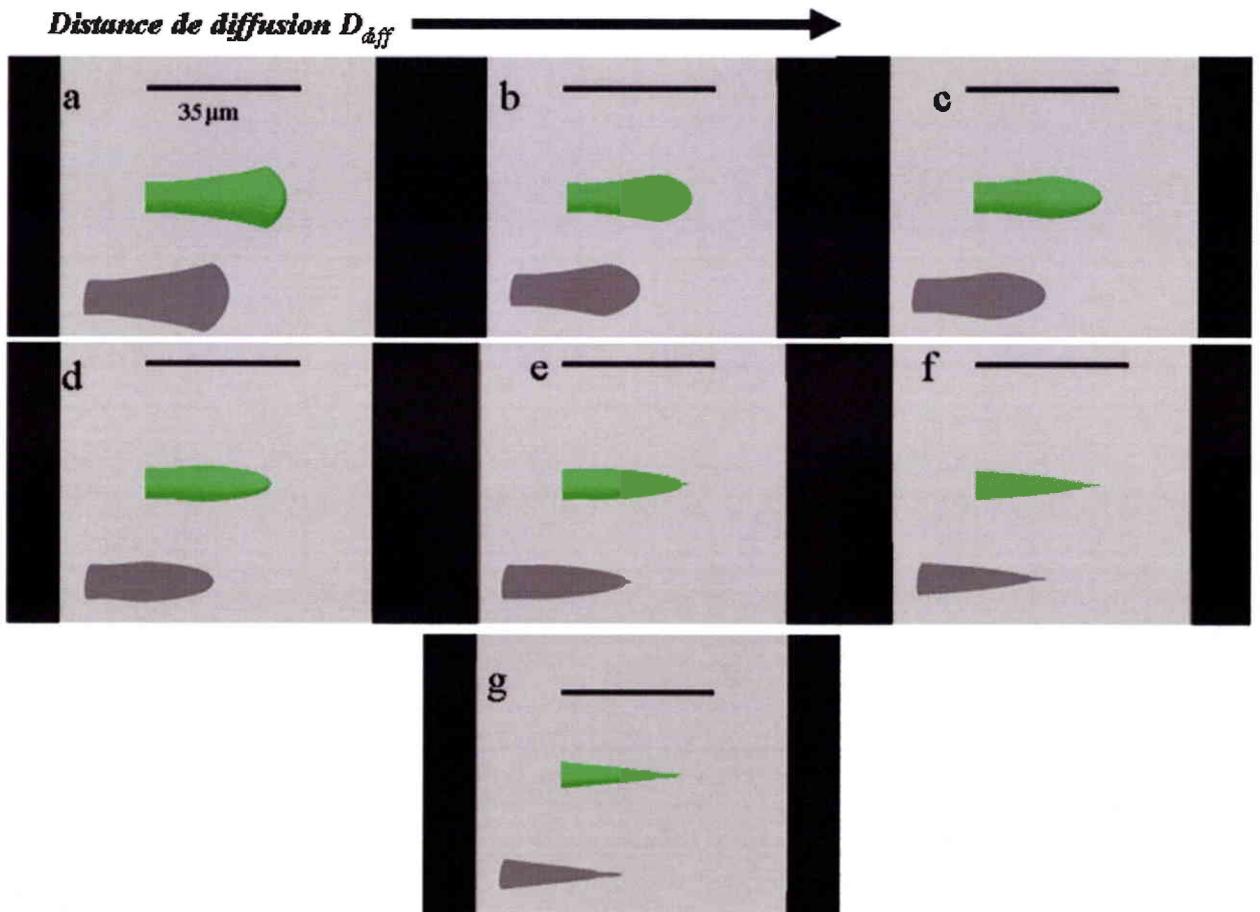


FIG. 3.11 - Influence de la constante de diffusion D_{diff} correspondant au tableau 3.5 page 86. a) $D_{diff}=0,25\mu\text{m}$; b) $D_{diff}=0,5\mu\text{m}$; c) $D_{diff}=0,75\mu\text{m}$; d) $D_{diff}=1\mu\text{m}$; e) $D_{diff}=1,25\mu\text{m}$; f) $D_{diff}=1,5\mu\text{m}$; g) $D_{diff}=1,75\mu\text{m}$. Durée d'exposition = 1 s, Puissance = $2,5\mu\text{W}$, mode de propagation fondamental approché par une gaussienne.

Rayon de
courbure (μm)

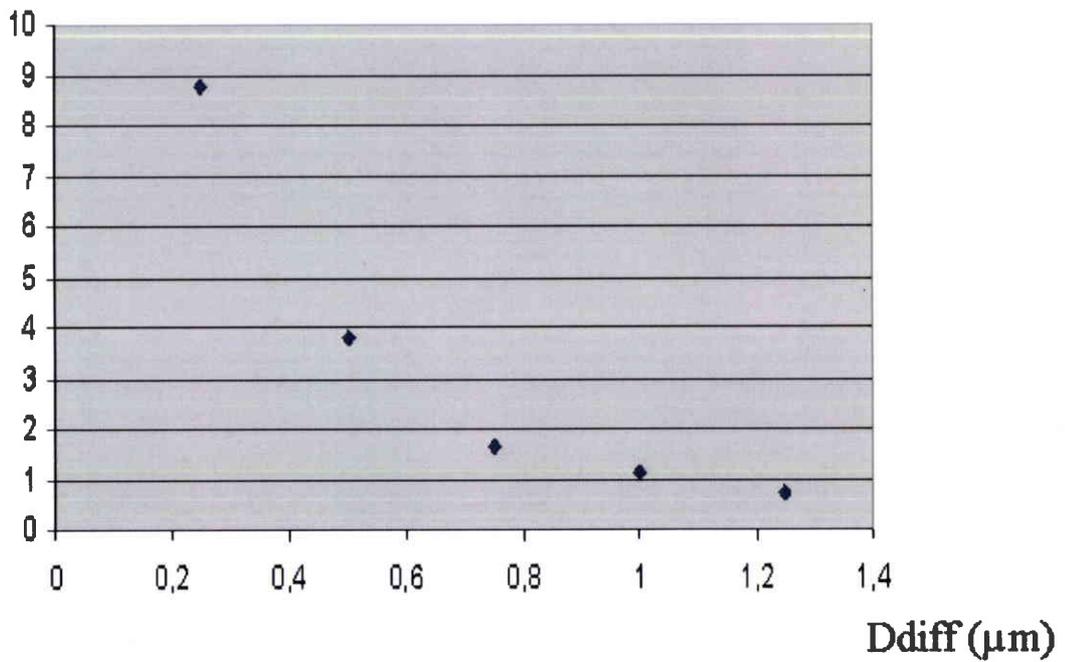


FIG. 3.12 – Variation du rayon de courbure en fonction de D_{diff} . Durée d'exposition = 1 s, Puissance = $2,5\mu\text{W}$

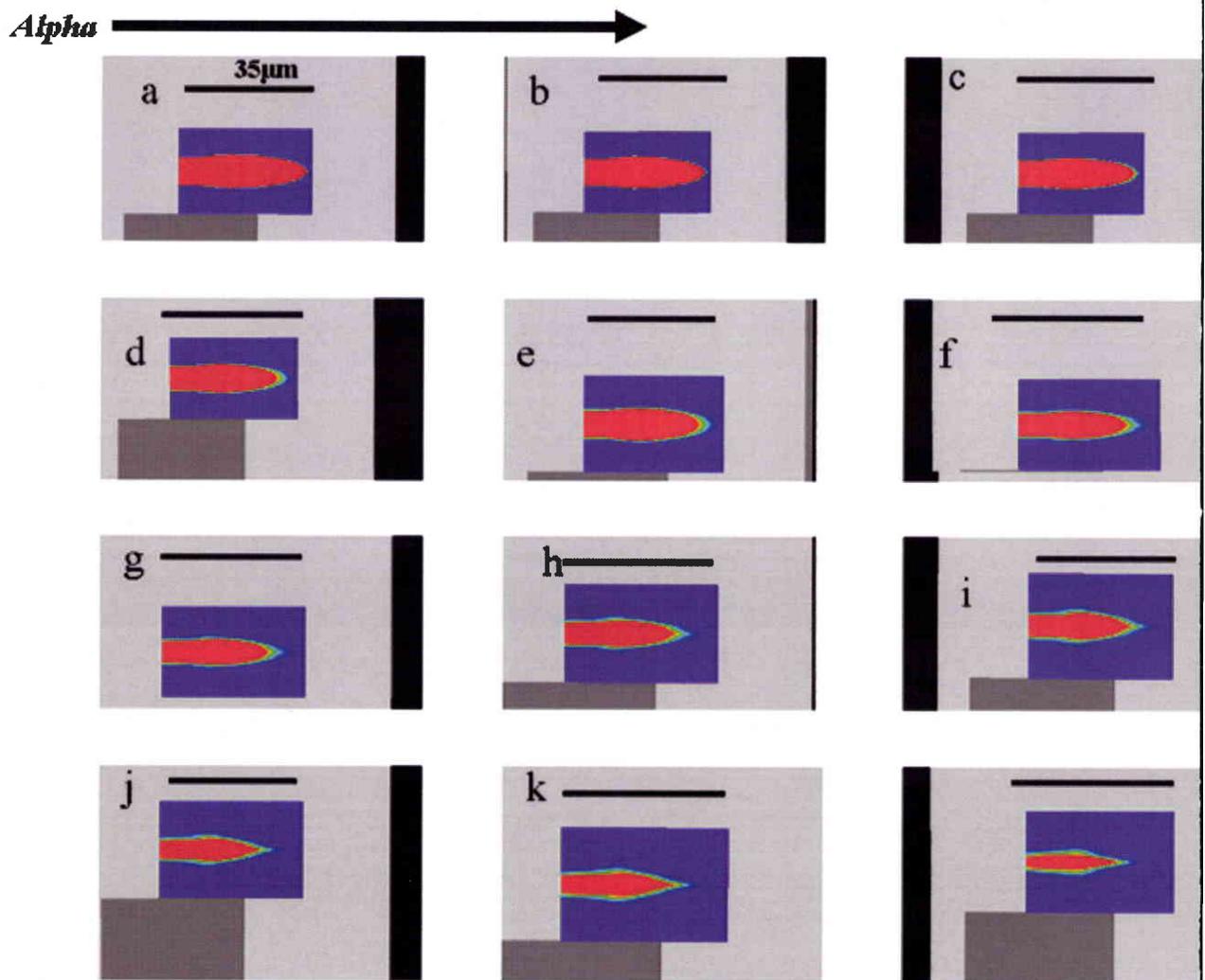


FIG. 3.13 – Influence du paramètre α sur la forme de la micropointe. Les valeurs de α sont données dans le tableau 3.6 page 87. .

présent, nous avons utilisé une approximation gaussienne du mode de propagation fondamental. Nous présenterons deux ensembles de simulation destinés aussi à montrer l'influence de la durée d'exposition et l'effet du diamètre du cœur de la fibre.

3.2.3.1 Influence du Waist

L'évaluation de l'influence du waist peut être expérimentalement intéressante si l'on souhaite utiliser plusieurs fibres optiques. Le diamètre du cœur de la fibre est en effet lié directement au waist du faisceau.

Définitions préliminaires : La relation qui existe entre le waist du faisceau lumineux et les caractéristiques de la fibre, à savoir son ouverture numérique, est la suivante dans le cas de l'approximation gaussienne :

$$\theta = \frac{\lambda}{\pi W} \quad (3.30)$$

avec :

- θ ouverture numérique de la fibre utilisée dans l'expérience ;
- λ longueur d'onde du faisceau laser ;
- W est le waist ;

Il est aussi à noter que si on garde toujours la même puissance P , l'augmentation du waist entraînera la diminution de l'amplitude E_0 du faisceau issu de la fibre. Cette dernière est une conséquence directe de la relation qui existe entre le waist et E_0 (relation de proportionnalité inverse), à puissance constante.

Résultats de simulation en fonction du waist

Sur la figure 3.14 page 93 sont reportés les résultats de simulation de la micropointe en fonction du waist du faisceau pour une durée d'exposition $t=1s$, les autres constantes sont données par le tableau 3.7 page suivante.

On remarque :

- une plus grande diffraction lorsque le waist diminue,
- une surface balayée par le faisceau qui a créé le guide d'onde. Cette surface est à priori identique partout,
- le diamètre de l'extrémité de la micropointe se resserre au fur et à mesure que le waist augmente,
- le rayon est lui aussi décroissant,
- le diamètre du début de la micropointe augmente car il est directement lié au waist,

Figure	waist(μm)	C_s	C_{smax}	$D_{diff}(\mu\text{m})$	Puissance(μW)
a	0,5	10^4	4.85×10^{13}	1	2,5
b	0,75	10^4	4.85×10^{13}	1	2,5
c	1	10^4	4.85×10^{13}	1	2,5
d	1,5	10^4	4.85×10^{13}	1	2,5
e	1,8	10^4	4.85×10^{13}	1	2,5
f	2	10^4	4.85×10^{13}	1	2,5

TAB. 3.7 – Caractéristiques des paramètres du modèle permettant de décrire l'influence du waist du faisceau lumineux correspondant à la Figure 3.14 page suivante

L'évolution du rayon de courbure en fonction du waist a la même allure que dans le cas de l'influence de la distance de diffusion de l'oxygène extérieur (D_{diff}).

3.2.3.2 Influence de la puissance

Définitions préliminaires Le mode de propagation fondamental issu de la fibre optique a été, comme cité auparavant, approché par une fonction gaussienne. Cette dernière a une amplitude E_0 liée à la puissance du faisceau :

$$E_0 = \frac{\sqrt{(2/\pi)P_0\eta_0}}{W} \quad (3.31)$$

- W : Waist du faisceau ;
- η_0 Impedance du vide ;
- P_0 : puissance du faisceau ;

Les valeurs de la puissance qui sont données pour nos simulations sont directement liées à celles fixées pour les expériences (présenté lors du chapitre deux). Sur le tableau 3.8 page 95, nous présentons les paramètres de simulation dont nous reportons les résultats sur la figure 3.15 page 94.

Résultats de simulation en fonction de la puissance

Pour une durée d'exposition $t=1\text{s}$, les micropointes réalisées ont presque toutes la même longueur et le même diamètre lorsque la puissance augmente. Cette constatation est tout à fait surprenante et dans tous les cas en désaccord avec l'expérience. Nous approfondirons cette question dans le prochain chapitre.

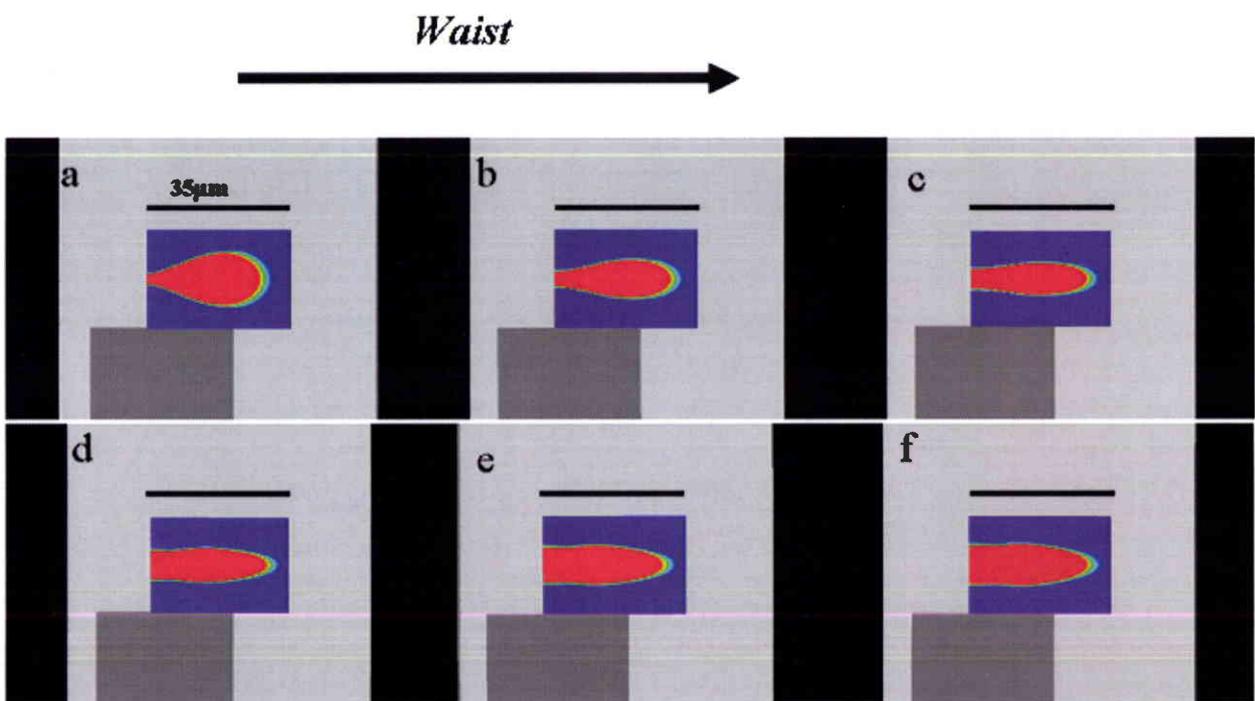


FIG. 3.14 - Influence du waist (W) du faisceau lumineux (a) $W=0,5\mu\text{m}$, (b) $W=0,75\mu\text{m}$ (c) $W=1\mu\text{m}$ (d) $W=1,5\mu\text{m}$ (e) $W=1,8\mu\text{m}$ (f) $W=2\mu\text{m}$.

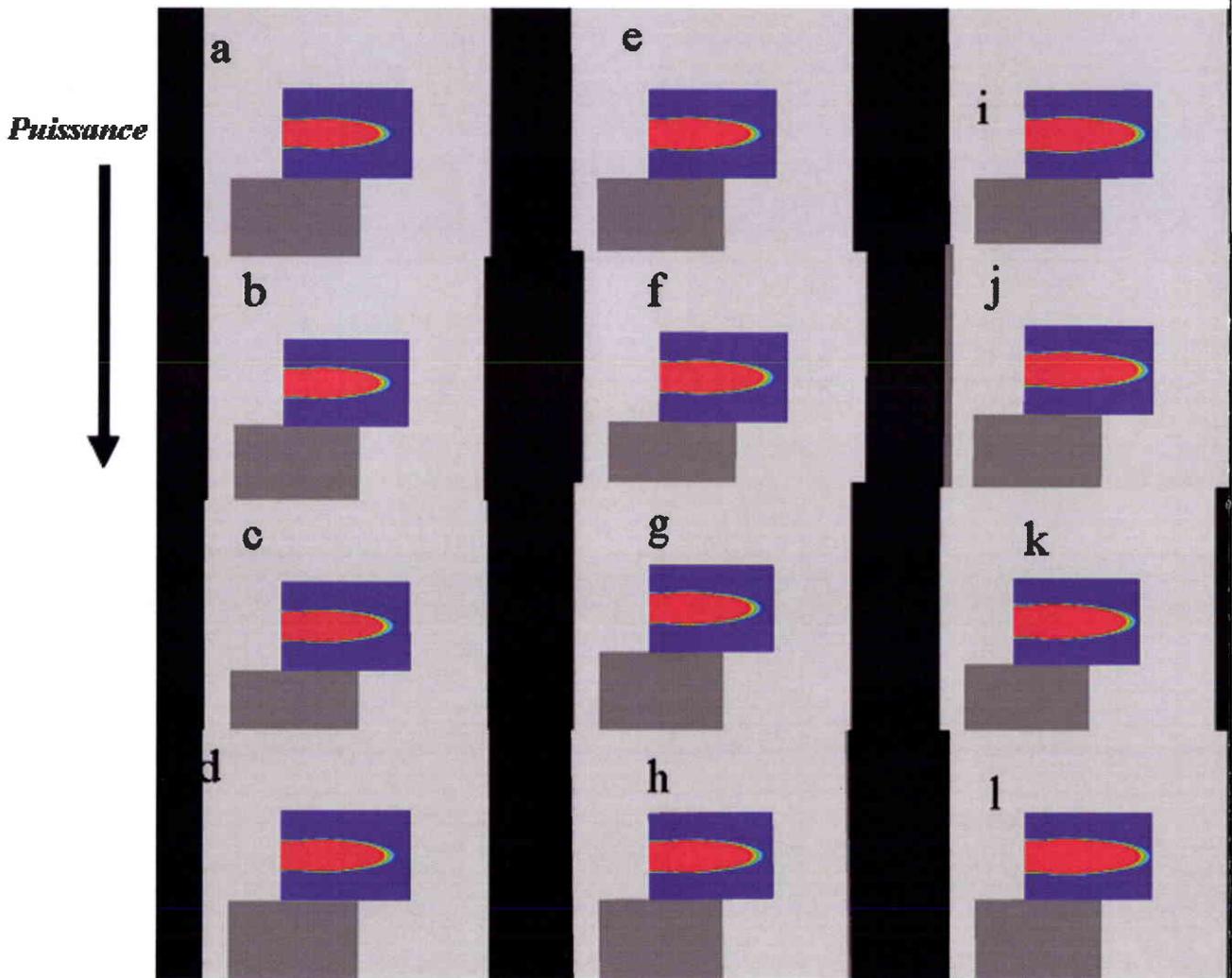


FIG. 3.15 – Influence de la puissance sur la forme de la micropointe pour une durée d'exposition d'une seconde, correspondant au tableau 3.8 page suivante .

Figure	α	C_s	C_{smax}	$D_{diff}(\mu\text{m})$	Puissance(μW)
a	10	10^3	10^{14}	1	0,5
b	10	10^3	10^{14}	1	1
c	10	10^3	10^{14}	1	1,5
d	10	10^3	10^{14}	1	1,8
e	10	10^3	10^{14}	1	2
f	10	10^3	10^{14}	1	2,5
g	10	10^3	10^{14}	1	3
h	10	10^3	10^{14}	1	5
i	10	10^3	10^{14}	1	10
j	10	10^3	10^{14}	1	15
k	10	10^3	10^{14}	1	20

TAB. 3.8 – Analyse de la forme de la micropointe vis-à-vis de la puissance de sortie de la fibre optique correspondant à la Figure 3.15 page précédente

3.2.4 Croissance de la micropointe sous l'approximation gaussienne

Les simulations de micropointes données jusqu'à présent ont été faites avec des faisceaux à profil gaussien. La réalité est que le vrai mode de propagation fondamental répond à une fonction plus complexe : c'est une combinaison des fonctions de Bessel

Pour voir l'influence de ces notions, nous avons simulé une micropointe à partir de la propagation du mode fondamental LP_{01} programmé avec les fonctions de Bessel. Les caractéristiques des paramètres intervenant dans la simulation de la micropointe de la figure 3.16 page suivante sont :

- diamètre du coeur $a = 3\mu\text{m}$;
- waist du faisceau $w = 1,8\mu\text{m}$,
- $C_s = 10^7 J/m^2$,
- $C_{smax} = 10^{19} J/m^2$,
- $D_{diff} = 1\mu\text{m}$,
- $\alpha = 10$,
- $u = 1,5911$ (constante de propagation transversale dans le coeur),
- $V = 2,2$ (fréquence normalisée),
- $v = 1,5194$ (constante de propagation transversale dans la gaine),
- Puissance $P = 1\mu\text{W}$,
- Temps d'exposition $t = 1$ seconde,

Les résultats qui suivront sont obtenus en utilisant le mode propagation LP_{01} calculé comme

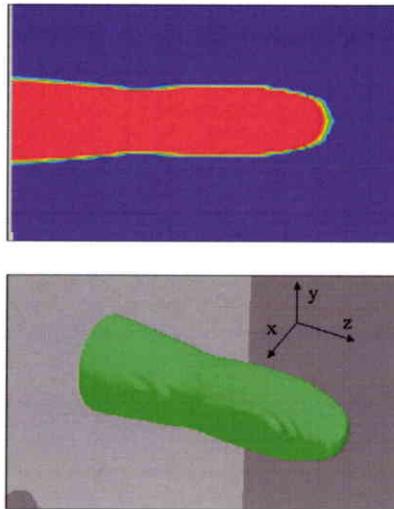


FIG. 3.16 – Une micropointe issue du mode de propagation fondamental LP_{01} .

expliqué dans cette section.

3.2.5 Croissance d'une micropointe au cours du temps

Après avoir vu comment obtenir une micropointe issue d'un mode réel LP_{01} se propageant dans une fibre, nous verrons comment se forme cette micropointe au cours du temps ainsi que l'influence du choix du diamètre du cœur de la fibre optique, en prenant deux exemples de fibre : à 9 et 3 μm de cœur.

Sur une fibre de 9 μm de cœur.

La colonne de gauche de la figure 3.17 page 98 donne la croissance de la micropointe à un pas d'une seconde. Nous pouvons constater qu'il s'est rien passé sur la première image, car le temps n'est pas suffisant pour provoquer la polymérisation. Ceci se fait au bout de la deuxième seconde approximativement. Le niveau de couleur révèle le degré de polymérisation et, comme dans l'interprétation donnée par Kewitsch et Yariv (47), le faisceau lumineux qui traverse le milieu est plus intense au centre ce qui permet une plus importante polymérisation à cet endroit qu'à l'extérieur.

Sur les images de droite, on voit la forme du faisceau qui se propage à chaque instant dans les milieux de gauche. Cependant, le faisceau reste parallèle (première figure de droite) car le waist du faisceau nous donne une longueur de Rayleigh plus grande que celle de la

goutte ($117\mu\text{m}$). La tache qu'il y a en bas de chaque figure est une coupe transversale du faisceau à l'endroit de l'extrémité de la goutte. Nous remarquerons que son diamètre diminue au cours de la formation de la micropointe, ce qui prouve l'autofocalisation du faisceau à cet endroit, qui s'opère au cours du temps.

Sur une fibre de $3\mu\text{m}$ de cœur

Nous illustrons dans cette partie, la croissance d'une micropointe à un pas de temps d'une seconde, pour une fibre à $3\mu\text{m}$ de diamètre de cœur. A gauche, on voit la formation de la micropointe et à droite la forme du faisceau qui se propage à l'intérieur du milieu. Ce qui est frappant dans ces figures, ce sont les noeuds qui se forment (à droite). Nous voyons d'abord une plus importante diffraction sur la première image, avec un diamètre du faisceau presque le double du waist. Ceci est dû à la longueur de Rayleigh qui a diminué (comparé au cas à $9\mu\text{m}$ de cœur).

Au cours de la formation du pic (à partir de la deuxième seconde), le faisceau tend à s'autofocaliser progressivement en formant un premier noeud à $1/3$ de la longueur par rapport au début de la goutte. Par la suite, un deuxième noeud se forme à la limite de la goutte. Ces constatations, ont déjà été faites par Tanya Monro (48).

Il est intéressant de voir la différence avec les images obtenues sur une fibre de $9\mu\text{m}$; on constate ici (voir Figure 3.18 page 99) que la diffraction au début est plus importante. Ceci est dû à la valeur de la longueur de Rayleigh. Une autre remarque sur ces images qui montrent une meilleure autofocalisation du faisceau dans le milieu. Le type de propagation observée ici n'est pas sans rappeler la propagation de type "soliton spatial" (46)

3.3 Analyses et interprétations

3.3.1 Influence de C_s et C_{smax}

La constante C_s est, comme défini dans la section 3.1.4.4 page 73, liée à la présence de l'oxygène dissout lors de la préparation de la formulation photopolymérisable. Les résultats présentés dans la partie 3.2.2.1 page 79 montre d'elle modifie la forme de la micropointe : le diamètre diminuant lorsque C_s augmente. L'interprétation est la suivante : lorsque la constante C_s augmente, E_s augmente ; le milieu doit accumuler plus d'énergie pour contrer l'augmentation de cette énergie de seuil, d'où la réduction des endroits polymérisés aux seuls points où le faisceau est plus intense, c'est-à-dire à proximité de l'axe de propagation, à cause de la forme gaussienne du faisceau.

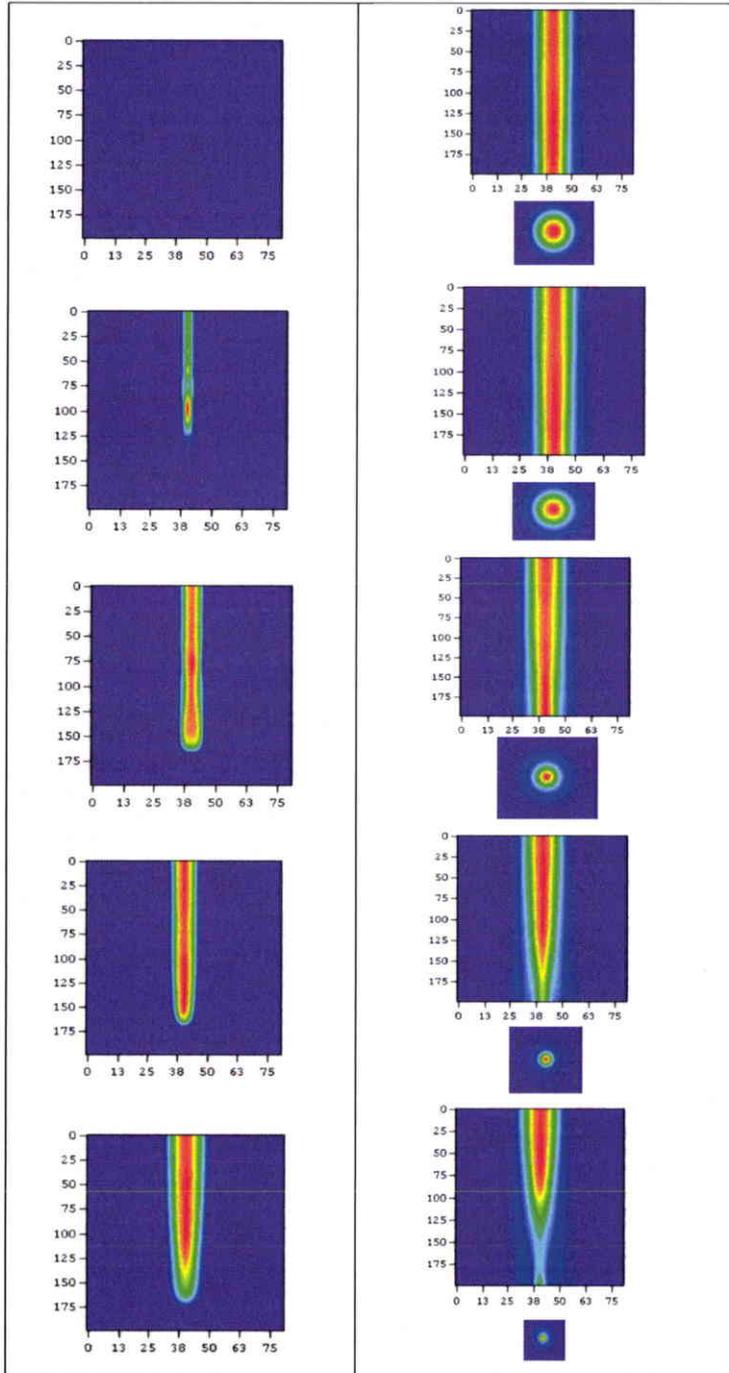


FIG. 3.17 – A gauche : la croissance de la micropointe sur une fibre 9/125, à droite : la propagation du champ. $C_{smax}=10^7$, $C_s=10^5$, Fréquence normalisée $V=9.11$, $u=2,16$, $v=8.85$, $D_{diff}=1\mu m$, durée d'exposition : 5s, ces résultats sont sans absorption, ni diffusion de l'oxygène interne.

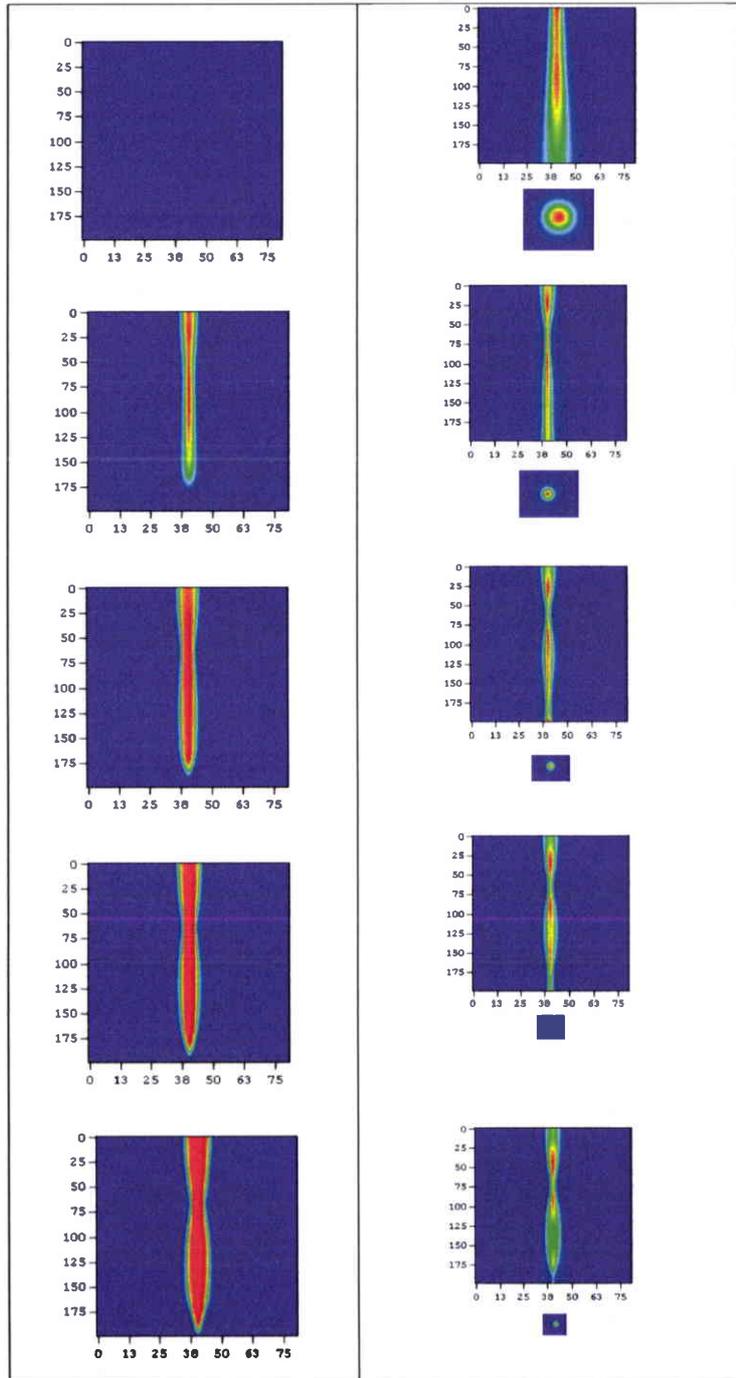


FIG. 3.18 – A gauche : la croissance de la micropointe sur une fibre 3 μm de cœur, à droite : la propagation du champ. $C_{smax}=10^7$; $C_s=10^5$; Fréquence normalisée $V=2,93$; $u=1,76$; $v=2,35$; $D_{diff}=1\mu\text{m}$; durée d'exposition : 5s; ces résultats sont sans absorption, ni diffusion de l'oxygène interne.

C_{smax} quant à elle, vient s'ajouter à C_s suivant z . Elle a donc tendance à augmenter l'énergie de seuil d'avantage lorsqu'on se rapproche de l'interface air-polymère. Comme évoqué précédemment, l'énergie demandée pour qu'il se provoque une polymérisation est plus importante. Donc, la diminution du diamètre de la micropointe se fait progressivement suivant z .

3.3.2 Influence de la distance de diffusion de l'oxygène extérieur

D_{diff}

L'oxygène qui diffuse de l'extérieur dans la formulation photopolymérisable provoque l'augmentation de l'énergie de seuil aux endroits atteints par cette diffusion. Nous allons analyser deux cas de figure : lorsque la diffusion agit à la surface de la goutte et lorsqu'elle est plus profonde.

- lorsque la diffusion de l'oxygène s'effectue juste en surface de la goutte (D_{diff} faible), l'énergie de seuil est quasiment constante suivant z , sauf à l'interface air-polymère. Par conséquent, la polymérisation étant uniforme, nous obtiendrons des micropointes cylindriques, épousant en extrémité la forme de la goutte, laquelle possède un rayon de courbure très important vis à vis des dimensions de la micropointe,
- si nous avons une diffusion plus profonde (D_{diff} augmente) alors l'énergie de seuil sera plus importante (voir figure 3.19 page suivante). Seuls les points qui sont suffisamment illuminés pourront être polymérisés, ils sont situés autour de l'axe de propagation z . Le profil gaussien est en effet reproduit par le milieu, ce qui nous donne des rayons de courbure faibles.

Nous pouvons lier le rayon de courbure de la micropointe directement à la courbure de l'énergie de seuil E_s (selon la figure 3.19 page ci-contre). Pour les grandes valeurs de D_{diff} , la courbure de E_s est plus importante et le rayon de courbure de la micropointe est petit (relation de proportionnalité inverse).

3.3.3 Influence du waist

Il est intéressant de voir ce que nous pouvons obtenir en présence de différentes fibres optiques en faisant plusieurs simulations à différents waists d'entrée.

La diffraction du faisceau lumineux, émergeant de la fibre optique, est à l'origine de la forme de la micropointe obtenue. En effet, pour les petits waists, la diffraction est importante, par conséquent, il peut y avoir une polymérisation même jusqu'aux endroits

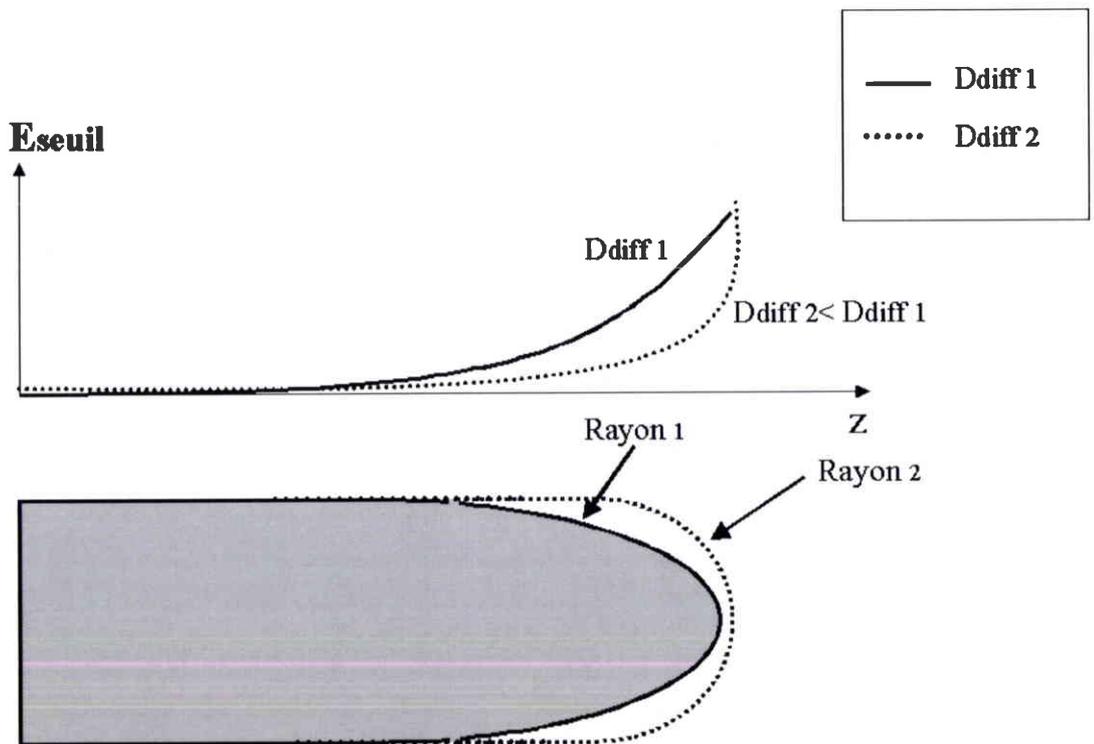


FIG. 3.19 – La constante de diffusion D_{diff1} donne un rayon de courbure R_1 de la micro-pointe plus petit que R_2 .

éloignés de l'axe de propagation z . Pour un waist $=1,5\mu\text{m}$, nous avons une longueur de Rayleigh de $13\mu\text{m}$, d'où une plus importante diffraction. En revanche, si le waist est grand, la diffraction sera limitée en laissant place à un faisceau presque parallèle c'est le cas lorsque nous avons une valeur du waist de $4,5\mu\text{m}$, nous obtenons dans ce cas une longueur de Rayleigh de $117\mu\text{m}$ supérieure à l'épaisseur de la goutte de formulation. La conséquence est que la micropointe suivra la forme du faisceau et aura un faible rayon de courbure .

3.3.4 Influence de la constante α

Le paramètre α est lié à la pente de la courbe *réponse du milieu* (voir équation 3.24 page 72). Sur la figure 3.20 page ci-contre est représenté deux exemples de variation d'indice pour deux valeurs de α différentes. Nous déduisons deux choses à partir de cette figure :

- la première est que pour une même quantité d'énergie accumulée E_{acc} , nous avons deux variations d'indice différentes, donc deux micropointes de volumes différents.
- la seconde est que sur la courbe liée à α_2 , plusieurs valeurs de variation d'indice peuvent être obtenues par la micropointe, c'est ici la notion de gradient d'indice que nous mettons en évidence. Alors que pour α_1 , deux niveaux seulement existent soit il n'y a pas de variation d'indice (0) ou alors, variation d'indice maximale (0,04).

α étant lié à la vitesse de polymérisation, c'est elle qui décrira le "contraste d'indice" dans la micropointe : pour α petit (polymérisation rapide), l'indice passe rapidement de la valeur du monomère à celle du polymère, alors que des contrastes moins forts sont obtenus pour des vitesses plus petites.

3.3.5 Influence de la puissance et de la durée d'exposition

La puissance du faisceau laser et la durée d'exposition du monomère à ce même faisceau ne semblent pas avoir beaucoup d'influence sur la forme de la micropointe et en particulier sur son rayon de courbure. Ces résultats sont surprenants et ne correspondent pas à l'expérience. Le prochain chapitre sera consacré à l'analyse et la correction de ces insuffisances du modèle que nous avons présenté jusque là.

3.4 Conclusion

Durant ce chapitre, nous avons simulé et interprété un procédé de la photopolymérisation. Le modèle est basé sur des expériences autour du comportement des milieux photopo-

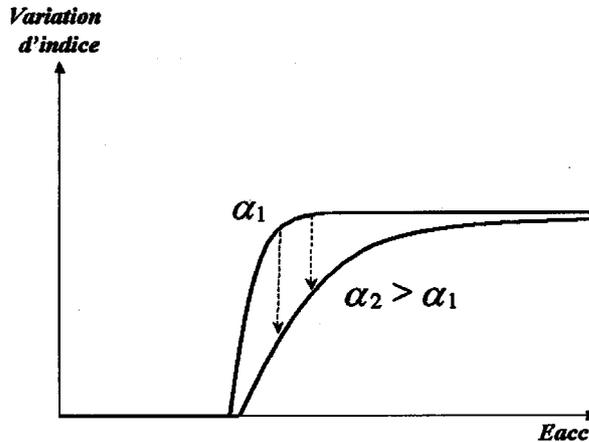


FIG. 3.20 – Influence de la constante α sur la courbe *réponse du matériau*

lymétrisables. Nous l'avons testé et validé à travers des simulations numériques. Ces dernières utilisent une méthode de résolution de l'équation de propagation du champ électrique dans les milieux non linéaires, connue sous le nom de *Beam Propagation Method*.

Les résultats montrent qualitativement qu'il y a autoguidage et autofocalisation du faisceau dans le guide qu'il a lui-même créé. Ainsi, la micropointe résultant de la photopolymérisation est gouvernée par les constantes physiques tels que le seuil de polymérisation dû à l'oxygène dissout (C_s) et à l'oxygène extérieur (C_{smax}) ou la distance de diffusion de l'oxygène extérieur (D_{diff}). Ces deux dernières constantes agissent directement sur l'une des caractéristiques intéressantes à mettre en premier plan, qui est le rayon de courbure. La constante α liée à la vitesse de polymérisation joue également un rôle sur l'aspect géométrique de la micropointe. Le diamètre de celle-ci est inversement proportionnel à la valeur α . D'autres paramètres sont liés plus à la fibre elle-même, il s'agit du waist du faisceau qui est corrélé avec le diamètre du cœur de la fibre optique. La puissance ainsi que la durée d'exposition au faisceau lumineux, influencent peu les caractéristiques de la micropointe réalisée à savoir le rayon de courbure. Ces prévisions, contrairement aux résultats expérimentaux présentés au chapitre deux, nous ont amené à pousser plus loin la modélisation. Les améliorations qui restent à apporter à notre modèle seront donc évoquées durant le prochain chapitre.

Chapitre 4

Comparaison expérience-simulation et amélioration de la modélisation

Dans le chapitre 3, nous avons présenté des résultats de simulation de la formation de la micropointe obtenus à partir d'une modélisation simple de la photopolymérisation. Nous allons montrer ici, que les résultats auxquels nous sommes parvenus, bien qu'ils soient qualitativement valables, ne sont pas cohérents avec ceux obtenus expérimentalement notamment du point de vue quantitatif.

Pour voir quelles sont les raisons à l'origine de cette différence, nous évoquerons un ensemble de nouvelles hypothèses, étudiées de manière théorique pour certaines, expérimentales pour d'autres. Nous présentons ainsi de nouveaux résultats de simulation basés sur les modifications visant à compléter et améliorer notre modèle. Nous dresserons un récapitulatif de la nouvelle comparaison entre l'expérience et la simulation, en passant par une analyse quantitative du rayon de courbure en fonction des paramètres physiques de l'expérience.

4.1 Comparaison entre les résultats expérimentaux et les résultats de simulation

Nous allons voir ici comment évolue le rayon de courbure obtenu théoriquement en fonction de la durée d'exposition, de la puissance d'illumination et de la distance de diffusion D_{diff} . Les courbes qui sont associées à ces mesures ont été comparées à l'expérience et discutées pour déceler leurs points forts mais aussi et surtout leurs insuffisances.

Durée d'exposition (s)	Rayon de courbure (μm)
1	5,3
5	6,6
10	7,0
15	7,2
20	7,3
25	7,4
30	7,7

TAB. 4.1 – Simulation : évolution du rayon de courbure en fonction de la durée d'exposition (s) pour une puissance de $2,5\mu\text{W}$, dans un milieu non absorbant ni diffusion de l'oxygène interne, $C_s : 5 \times 10^2 \text{J/m}^2$, $C_{smax} : 10^8 \text{J/m}^2$, $Ddiff : 1\mu\text{m}$

4.1.1 Evolution du rayon de courbure en fonction de la durée d'exposition

La méthode utilisé pour mesurer le rayon de courbure est décrite sur la figure 2.6 page 42. Les résultats sont présentés dans le tableaux 4.1 et reportés sur la figure 4.1 page suivante où nous observons les courbes théorique et expérimentale.

Sur la courbe expérimentale, nous pouvons diviser la progression du rayon de courbure en deux étapes :

- entre 0 à 10 secondes, nous observons une augmentation linéaire du rayon de faible pente ($0,2\mu\text{/s}$), correspondant à la croissance longitudinale de la micropointe. Cet allongement s'effectue progressivement en fonction du temps, avec un rayon de courbure petit et n'augmentant que très légèrement.
- à partir de 10 secondes, nous avons une augmentation importante du rayon de courbure (droite à forte pente $0,7\mu\text{m/s}$). L'hypothèse avancée pour expliquer cette transition est la suivante : lors de la phase de croissance de la micropointe, son rayon de courbure reste approximativement constant. Lorsque l'extrémité de la partie polymérisée entre dans la zone d'influence de l'oxygène extérieur, proche de la surface, elle épouse progressivement la forme de la goutte de solution photopolymérisable. Cette hypothèse est susceptible d'être vérifiée plus loin si le modèle que nous proposons permet de décrire quantitativement l'évolution de rayon de courbure. Ce sera l'objet des pages qui vont suivre.

Du point de vue théorique, nous avons un palier pratiquement constant avec une légère croissance à partir de $5\mu\text{m}$ pour atteindre $7\mu\text{m}$ (pente $0,06\mu\text{m/s}$). Tout d'abord, nous pouvons remarquer que nous ne retrouvons pas la rupture de pente observée expérimentalement,

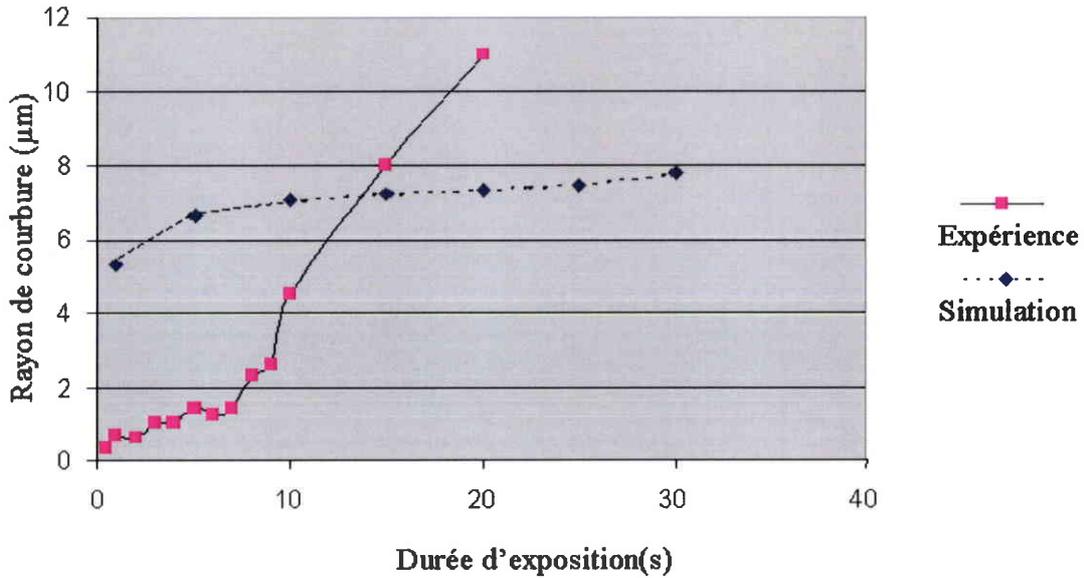


FIG. 4.1 – Désaccord entre l’expérience et la simulation : influence de la durée d’exposition sur le rayon de courbure de la micropointe . *Données expérimentales* : Puissance : $2,5\mu W$, Taux d’éosine : 4%, *Données de simulation* : $C_s : 5 \times 10^2 J/m^2$, $C_{smax} : 10^8 J/m^2$, distance de diffusion de l’oxygène extérieur $Ddiff : 1\mu m$ dans un milieu non absorbant ni diffusion de l’oxygène interne.

même si les pentes correspondant à la courbe théorique et à la première partie de la courbe expérimentale sont voisines ; en revanche les micropointes en question n’ont pas les mêmes valeurs du rayon de courbure. Dans la suite du chapitre nous donnerons les raisons de cette différence ainsi que l’apport qui la résoudra.

4.1.2 Evolution du rayon de courbure en fonction de la puissance

Le tableau 4.2 page suivante présente les résultats de calcul reportés sur la figure 4.2 page 109, pour une puissance allant de 0,8 à $25\mu W$. Les autres paramètres étant constants (voir légende). Nous avons mesuré le rayon de courbure de la micropointe avec la même méthode

Puissance d'exposition (μW)	Rayon de courbure (μm)
0,8	4,2
0,9	4,1
1	4,6
2,5	5,3
5	5,7
7	6,2
10	6,4
15	6,5
20	6,9
25	7,3
30	7,2

TAB. 4.2 – Simulation : évolution du rayon de courbure en fonction de la puissance d'exposition pour une durée d'exposition de 1 s, $C_s : 5 \times 10^2 \text{J/m}^2$, $C_{smax} : 10^8 \text{J/m}^2$, distance de diffusion de l'oxygène extérieur $D_{diff} : 1 \mu\text{m}$ dans un milieu non absorbant ni diffusion de l'oxygène interne

que celle évoquée précédemment (voir figure 2.6 page 42).

En comparaison avec les courbes expérimentales, deux comportements sont à noter :

- Le premier est une droite avec une légère pente ($0,3 \mu\text{W}/\mu\text{m}$) : tout comme dans le cas précédent, il s'agit probablement de la croissance longitudinale donc de l'allongement de la micropointe jusqu'au bout de la goutte. Cette période s'étale de 0 jusqu'à $7 \mu\text{W}$, donnant ainsi un rayon aux environs de $2 \mu\text{m}$.
- Le second palier (pente nulle) se produit après un saut important de $9 \mu\text{m}$ pour passer à $11 \mu\text{m}$. A ce stade la micropointe est proche de l'interface air-polymère ce qui lui donne une forte courbure.

Selon la courbe théorique, nous observons une croissance linéaire de pente de $0,3 \mu\text{m}/\mu\text{W}$ jusqu'à $7 \mu\text{W}$, suivi par une région de croissance plus faible de l'ordre de $0,1 \mu\text{m}/\mu\text{W}$. Aucune discontinuité n'est observée contrairement au cas expérimental.

4.1.3 Evolution du rayon de courbure de la micropointe en fonction du taux d'éosine et de la distance de diffusion D_{diff}

Sur la figure 4.3 page 110, nous avons regroupé deux résultats, donnés séparément par la figure 2.10 page 49 et 3.11 page 88. Nous remarquons la diminution du rayon de courbure en fonction de l'augmentation du taux d'éosine dans la formulation photopolymérisable, cette constatation est la même que celle liée à la distance de diffusion D_{diff} . Nous évoquons

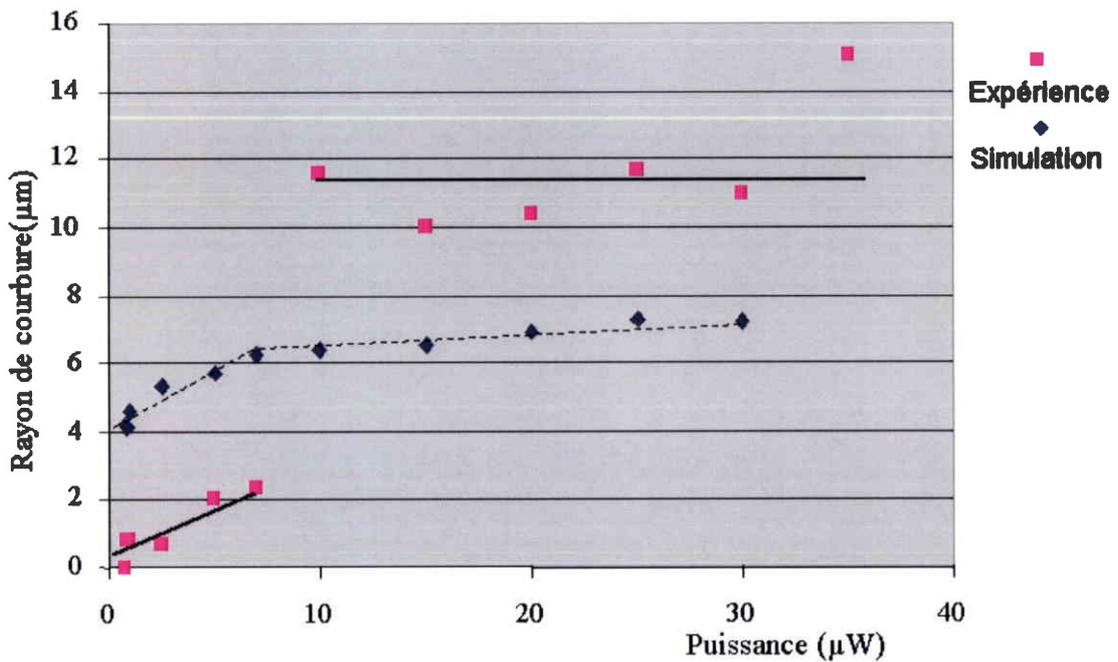


FIG. 4.2 – Comparaison expérience-simulation du rayon de courbure de la micropointe en fonction de la puissance du champ émergent de la fibre optique. *Données expérimentales* : Durée d'exposition : 1s, Taux d'éosine : 4%, *Données de simulation* : C_e : $5 \times 10^2 \text{ J/m}^2$, C_{smaz} : 10^8 J/m^2 , distance de diffusion de l'oxygène $Ddiff$: $1 \mu\text{m}$ dans un milieu non absorbant ni diffusion de l'oxygène interne

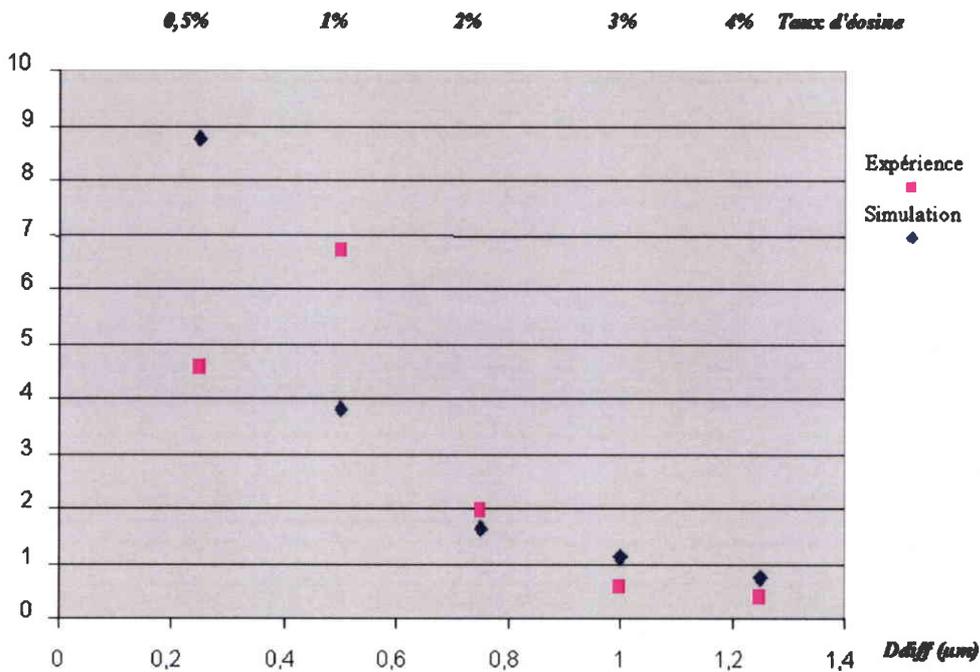


FIG. 4.3 – Comparaison du rayon de courbure en fonction du taux d'éosine et de la distance de diffusion de l'oxygène extérieur D_{diff}

ces remarques ici car nous voulons mettre en évidence le rapprochement entre ces résultats et lien qui semble exister entre le taux d'éosine et D_{diff} . Celui-ci sera étudié dans la partie 4.2.4 page 126 où nous proposons un modèle qui représentera l'évolution de D_{diff} au cours du temps.

4.2 Affinement du modèle

4.2.1 Des phénomènes physicochimiques non encore modélisés

Le modèle de la photopolymérisation, que nous avons décrit jusqu'ici, est une approche simplifiée de la réalité du phénomène physicochimique ayant lieu. Cette trop grande simplicité explique les différences existant entre les comportements expérimentaux et théoriques précédemment mis en évidence.

Dans les lignes qui suivent, nous présentons de nouveaux aspects physiques et chimiques

qui peuvent répondre aux insuffisances des courbes théoriques observées. Les différentes nouvelles considérations concernent les points suivant :

- *la diffusion de l'oxygène,*
- *Le photoblanchiment*
- *La distance de diffusion D_{diff} varie au cours du temps*

- *la diffusion de l'oxygène.*

Dans le modèle présenté au chapitre 3, nous avons considéré la diffusion de l'oxygène atmosphérique provoquant l'inhibition partielle de la réaction de photopolymérisation. Il existe toutefois d'autres phénomènes de diffusion que nous n'avons pas pris en compte tels que la diffusion de l'oxygène dissout dans la goutte vers les zones où l'oxygène a été consommé durant la réaction d'amorçage. En effet, lorsqu'il y a irradiation lumineuse il s'en suit une réaction chimique inhomogène dans la goutte, nous obtenons par conséquent un gradient de concentration de l'oxygène.

- *Le photoblanchiment*

Au cours du chapitre 3, l'absorption de la solution photopolymérisable a été négligée. Cette négligence conduit notamment à une augmentation très rapide de l'énergie accumulée E_{acc} dans le modèle théorique, y compris aux points voisins de l'interface air-polymère, ce qui est contraire à l'expérience. Dans les prochaines simulations, nous allons exploiter un nouveau modèle d'absorption. Celui-ci est proposé par le Docteur Daniel Joseph Lougnot¹ et qui est issu de mesures expérimentales. Il permet de décrire quantitativement le phénomène de photoblanchiment, c'est-à-dire d'obtenir en chaque point la diminution de l'absorption avec le temps.

- *La distance de diffusion D_{diff} varie au cours du temps*

Cette conclusion émerge de la comparaison de la courbe expérimentale d'évolution du rayon de courbure en fonction de l'éosine et de la courbe théorique de D_{diff} . Ici, nous avons mis au point un modèle d'évolution en fonction du temps, permettant de décrire cette dynamique de diffusion.

Nous allons développer chacune de ces hypothèses et proposer ainsi une nouvelle modélisation. Nous testerons grâce à ces nouvelles simulations, les constantes qui entrent en jeu et nous verrons leur influence sur les résultats présentés jusqu'à présent.

¹Directeur du Département de Photochimie Générale

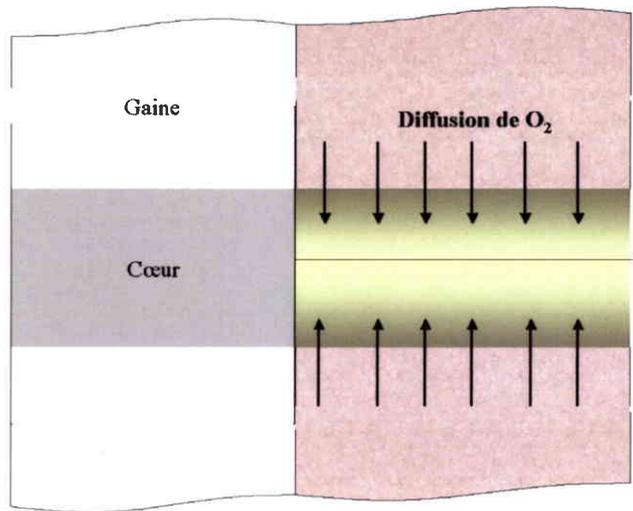


FIG. 4.4 – Diffusion de l’oxygène interne des zones non éclairées vers les zones éclairées.

4.2.2 Diffusion de l’oxygène dissout

Pendant la polymérisation inhomogène du milieu, les différentes espèces chimiques diffusent des endroits où elles sont majoritaires vers les zones où elles sont consommées. John T.Sheridan (72) a pris en compte ces mouvements à travers différents modèles. Toutes les molécules peuvent diffuser au cours de la réaction : les réactifs (colorant, monomère), les inhibiteurs tels que l’oxygène qui est le composé sur lequel nous allons nous attarder (56).

4.2.2.1 Phénomène de diffusion de l’oxygène

Reprenons l’interprétation de la consommation de l’oxygène local à l’intérieur de la goutte (voir page 73). A l’amorçage, il y a tout d’abord consommation de l’oxygène puis la polymérisation débute. Ceci se produit aux endroits illuminés, c’est-à-dire autour de l’axe z de propagation. Comme il reste de l’oxygène dans les zones qui ne sont pas éclairées, ces molécules diffusent (lois de Fick²) des points non éclairés vers les endroits éclairés (73). Cette dynamique approvisionne la zone qui polymérise et ralentit le processus d’amorçage. Dans notre modélisation précédente, ce phénomène a été négligé.

Un autre point à évoquer qui est similaire au précédent est le mouvement des réactifs.

²La première loi de Fick donne le flux de matière proportionnellement au gradient de la concentration : $J = -D \cdot \text{grad}C$ ou D est le coefficient de diffusion et C la concentration de l’espèce diffusante. La seconde loi de Fick exprime la variation de la concentration d’une espèce en fonction du temps et de l’espace : $\frac{dc}{dt} = D \cdot \frac{d^2C}{dx^2}$

Ces particules ont, jusqu'à présent, été supposées fixes. Dans la réalité, ces molécules peuvent diffuser en obéissant également aux lois de Fick. Il serait donc intéressant de résoudre cette loi de diffusion, en construisant par exemple un algorithme de résolution pour extraire une fonction de l'énergie de seuil dépendant cette fois-ci de l'espace (x, y, z) et du temps (t) . Ce type de modélisation s'inspire des travaux qui ont été effectués au laboratoire LMOPS³. L'expérience nous montre que les calculs numériques à réaliser sont extrêmement lourds. Dans les pages qui suivent nous allons mettre au point, un modèle plus simple permet également de décrire quantitativement les résultats expérimentaux. La diffusion de l'oxygène extérieur analysé en page 73, est donnée sous la forme d'un modèle empirique en exponentielle croissante. Nous nous inspirerons de celui-ci pour décrire la diffusion de l'oxygène dissout dans la goutte et nous l'introduirons dans le modèle initial.

4.2.2.2 Modèle et interprétation

Pour tenir compte de la diffusion de l'oxygène dissout, nous avons modélisé l'évolution de l'énergie de seuil E_s selon l'axe radial r (formule 4.1). Ce modèle est représenté par la courbe de figure 4.5 page suivante. Au centre ($r=0$) du faisceau, il est quasiment impossible d'avoir un approvisionnement continu en oxygène venant des autres endroits du milieu de propagation. En revanche, les processus de diffusion sont favorisés aux endroits de l'interface zone éclairée-zone non éclairée.

$$E_{seuil} = C_s + C_{smax2} \times \exp\left(\frac{r - \frac{D_f}{2}}{D_{diff2}}\right) + C_{smax} \exp\left(\frac{(z - d)}{D_{diff}}\right) \quad (4.1)$$

En remplaçant r par $\sqrt{x^2 + y^2}$ nous obtiendrons :

$$E_{seuil} = C_s + C_{smax2} \times \exp\left(\frac{\sqrt{x^2 + y^2} - \frac{D_f}{2}}{D_{diff2}}\right) + C_{smax} \exp\left(\frac{(z - d)}{D_{diff}}\right) \quad (4.2)$$

La signification de chaque constante est donnée comme suit :

- C_s et $C_{smax} \exp\left(\frac{(z-d)}{D_{diff}}\right)$ représentent respectivement l'oxygène dissout et la diffusion de l'oxygène extérieur (voir page page 73).
- $C_{smax2} \times \exp\left(\frac{\sqrt{x^2+y^2} - \frac{D_f}{2}}{D_{diff2}}\right)$ vient de la diffusion de l'oxygène des endroits non éclairés vers les endroits éclairés.

³La propagation dans les matériaux photoréfractifs (74) a été simulé au laboratoire (75). Dans ces matériaux, l'indice de réfraction varie en fonction du temps et de la puissance lumineuse incidente, comme dans le problème auquel s'intéresse ce manuscrit. Les méthodes numériques à mettre en œuvre peuvent être similaires.

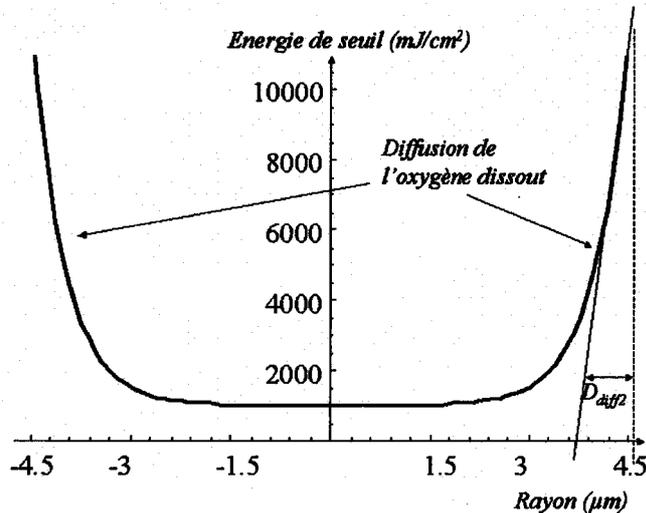


FIG. 4.5 – Exemple de l'énergie de seuil, illustrant l'influence de la diffusion de l'oxygène dissout des zones non éclairées vers les zones éclairées dans le milieu photopolymérisable. Diamètre de la fibre : $9\mu\text{m}$, à $1/20$ du début de la goutte.

- D_f est le diamètre du faisceau.
- D_{diff2} est la distance de diffusion de l'oxygène dissout des zones sombres vers les zones éclairées.
- C_{smax2} constante de seuil de polymérisation à l'endroit de l'interface zones non éclairées-zones éclairées.

4.2.2.3 Ordre de grandeur des paramètres du nouveau modèle

Nous partons de l'hypothèse que la diffusion de l'oxygène extérieur est plus importante que la diffusion de l'oxygène dissout. Ceci vient simplement du fait que la concentration en oxygène atmosphérique est infiniment plus grande que celle de l'oxygène dissout dans la solution $C_{smax} \gg C_{smax2}$. En revanche, il n'y a aucune raison pour que les longueurs de diffusion correspondantes aux deux phénomènes soient différentes. Donc :

- C_s, C_{smax}, D_{diff} ont la même valeur que dans la partie 3.1.4.5 page 74.
- D_f est le diamètre du faisceau, et dépend des dimensions de la fibre (dans notre cas $9\mu\text{m}$).
- D_{diff2} a la même valeur que D_{diff} .

Pour $r=0$ nous avons :

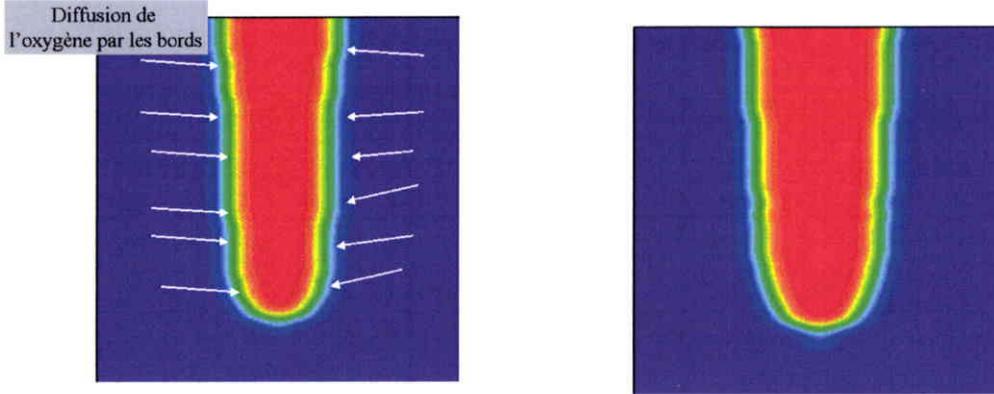


FIG. 4.6 – Comparaison d’une micropointe avec et sans diffusion de l’oxygène interne, pour une durée d’exposition d’une seconde, $C_s : 5 \times 10^2 \text{ J/m}^2$, $C_{smax} = 10^8 \text{ J/m}^2$, $D_{diff} = 0,1 \mu\text{m}$, $C_{smax2} = 10^4 \text{ J/m}^2$

$$E_{seuil} = C_s + C_{smax2} \times \exp\left(\frac{D_f}{2D_{diff2}}\right) + C_{smax} \exp\left(\frac{(z-d)}{D_{diff}}\right) \quad (4.3)$$

Étant loin de l’influence de l’oxygène dissout, nous avons ainsi :

$$C_s > C_{smax2} \times \exp\left(\frac{D_f}{2D_{diff2}}\right) \quad (4.4)$$

Pour $r = D_f/2$ nous avons :

$$E_{seuil} = C_s + C_{smax} \exp\left(\frac{(z-d)}{D_{diff}}\right) \quad (4.5)$$

L’approvisionnement en oxygène dissout est plus important à cet endroit. Donc, nous avons

$$C_{smax2} \gg C_s \quad (4.6)$$

En résumé, nous avons :

$$C_s < C_{smax2} < C_s \times \exp\left(\frac{D_f}{2D_{diff2}}\right) \quad (4.7)$$

qui représente la condition générale sur C_{smax2} .

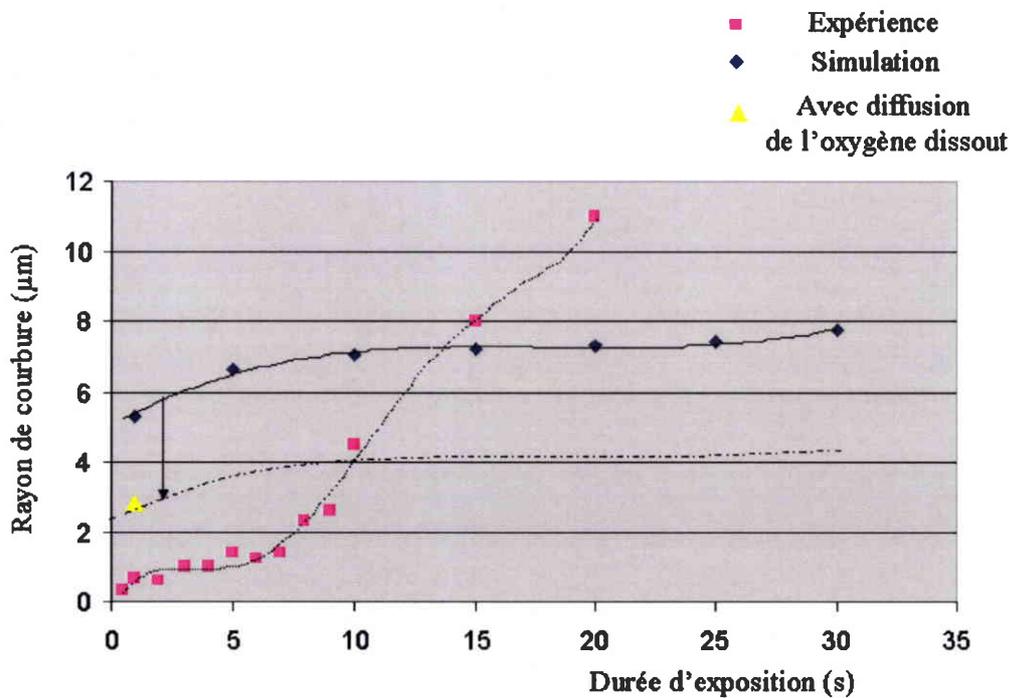


FIG. 4.7 – Diminution du rayon de courbure avec la diffusion de l'oxygène dissout en fonction de la durée d'exposition. L'ensemble des micropointes simulées présentent la même évolution relative que celle qui passe par le point "triangle jaune".

4.2.2.4 Résultats

4.2.2.5 Résultats de modélisation prenant en compte l'influence de l'oxygène dissout

Les images de la figure 4.6 page 115 montrent deux micropointes issues l'une de l'ancien modèle de l'énergie de seuil (à droite) et l'autre du nouveau modèle (à gauche). Plusieurs choses sont à relever :

- le diamètre de la micropointe diminue avec l'introduction de la diffusion de l'oxygène dissout. En effet, celle-ci a tendance à "écraser" la micropointe sur toute sa longueur.
- le rayon de courbure diminue de moitié par rapport à son rayon initial : une diminution d'environ $3\mu\text{m}$, indépendante de la durée d'exposition ou de la puissance injectée, est obtenue.

4.2.2.6 Conclusion

Dans cette partie, nous avons essayé d'introduire dans le modèle la diffusion de l'oxygène dissout dans le milieu photopolymérisable et plus exactement sa diffusion des endroits non éclairés vers les endroits éclairés.

Les résultats de simulation montrent une diminution du diamètre de la micropointe ainsi que du rayon de courbure et ceci de manière indépendante de la durée d'exposition et de la puissance injectée. On donc montré que le paramètre C_{smax2} permet donc d'ajuster théoriquement le niveau de la courbe représente le rayon de courbure.

4.2.3 Nouveau modèle d'absorption et influence

4.2.3.1 Modélisation du photoblanchiment

Introduction Lors de sa propagation dans la solution photopolymérisable, le faisceau laser est partiellement absorbé, phénomène conduisant bien sûr à la polymérisation locale du monomère, mais aussi à une diminution locale de l'intensité optique de ce même faisceau laser. Par ailleurs, ce coefficient d'absorption est lié à la présence du colorant et à sa concentration dans la solution. Au fur et à mesure que celui-ci est consommé, le coefficient d'absorption aura donc tendance à diminuer localement (et donc la transmittance à augmenter) : c'est le phénomène appelé photoblanchiment.

Il est probable que à la fois l'absorption, non négligeable, et le photoblanchiment jouent un rôle significatif dans la formation de la micropointe ; c'est pourquoi, dans les pages qui

suivent, nous allons exploiter les résultats d'une expérience qui a été menée au DPG. Cette expérience consiste en la caractérisation de la formulation photopolymérisable par la mesure de son absorption au cours du temps, un modèle du photoblanchiment a été proposé à la suite de ces mesures.

Nous en déduisons un modèle d'évolution locale et temporelle (en fonction de x,y,z et t) de l'absorption dans la formulation au cours de la formation de la micropointe.

Expérience Elle consiste à éclairer par un faisceau laser, d'une longueur d'onde de 514nm et de puissance 200mW, un échantillon de la formulation photopolymérisable. Cette dernière contient 2% d'éosine, l'épaisseur est de 35 μ m.

Quelques hypothèses sont faites :

- la concentration du colorant est initialement uniforme.
- le coefficient d'absorption est homogène dans la solution à tout instant.

Le profil d'intensité du faisceau transmis, est mesuré en fonction du temps à différents endroits du faisceau, par la suite la transmittance du milieu photopolymérisable est extraite et reportée suivant les lignes qui vont suivre.

Courbes de transmittance Sur la figure 4.8 page suivante est reportée l'évolution de la transmittance en fonction du rayon à différents instants. Le faisceau au départ, est fortement atténué ($t=1s$) et à $t=5s$ atteint 60% de l'intensité du faisceau incident. On arrive à 100% de transmission au bout d'une dizaine de seconde, ce qui peut être interprété comme un photoblanchiment complet. La figure 4.9 page 120 nous montre mieux l'évolution de la transmittance au cours du temps, à différents endroits suivant l'axe radial. Il est à noter que la principale grandeur locale à varier entre les différentes courbes représentées sur la figure 4.9 page 120 est l'intensité locale du faisceau. Ceci est d'ailleurs confirmé par le fait que toutes ces courbes peuvent être déduites l'une de l'autre par le changement de l'échelle de temps.

Modèle de l'absorption déduit des courbes de transmittance l'absorption, partie imaginaire de l'indice de réfraction, est supposée constante sur l'épaisseur d de l'échantillon dans lequel on a mesuré la transmittance. En revanche, comme montré précédemment elle fonction du temps. Les mesures précédentes, suggèrent le modèle suivant :

$$T(d, t) = \frac{1}{1 + \left(\frac{1}{T_0(d)} - 1\right) \times \text{Exp}(-kt)} \quad (4.8)$$

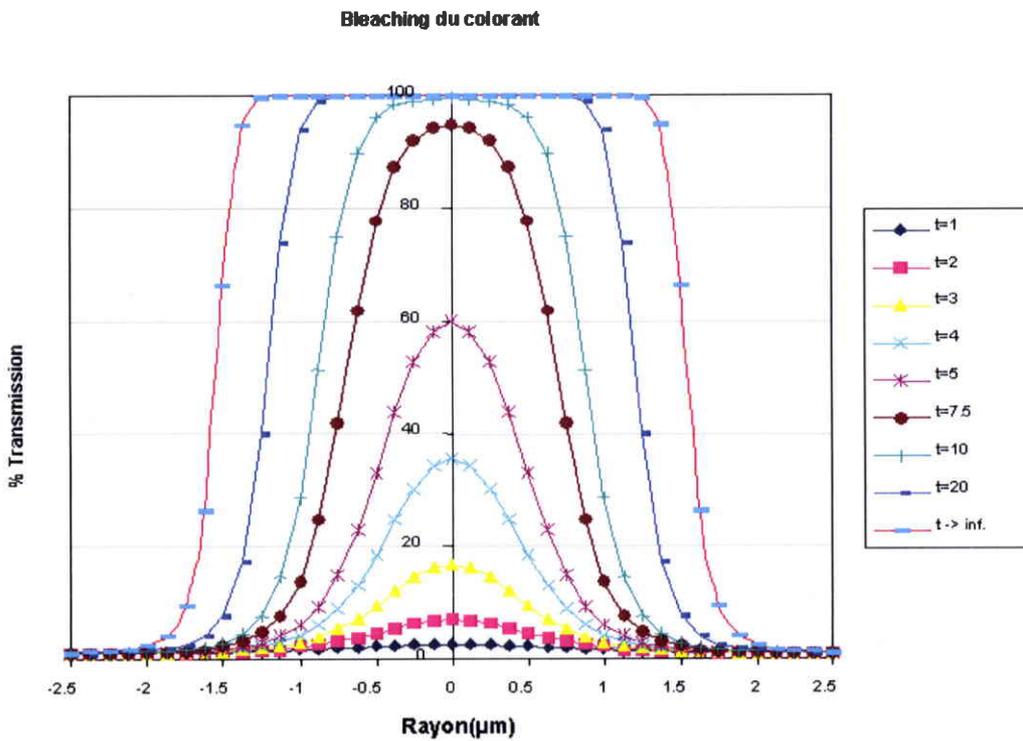


FIG. 4.8 – Transmittance du faisceau gaussien en fonction du rayon pour différents temps sur une longueur de $35\mu\text{m}$. (Taux d'éosine : 2%, longueur d'onde : 514nm , puissance : 200mW)

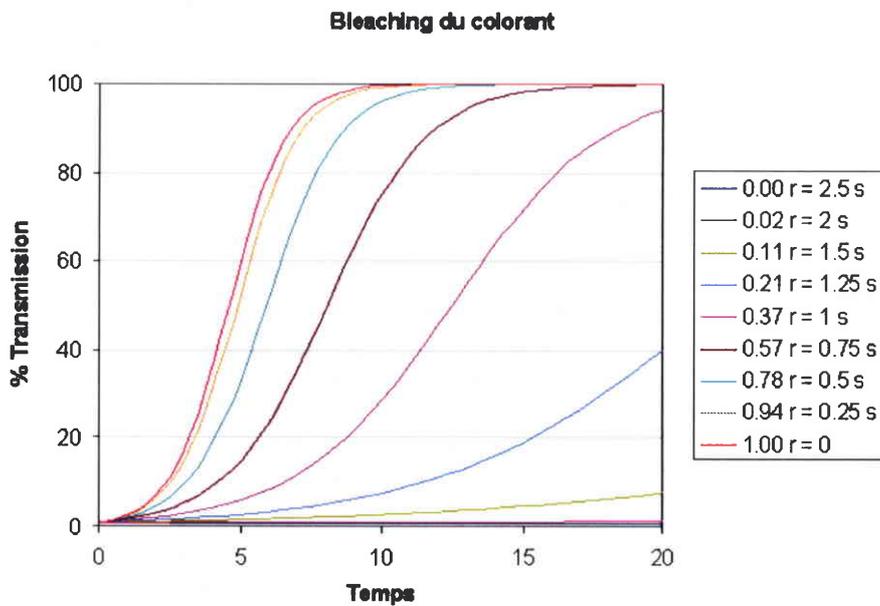


FIG. 4.9 – Transmittance du faisceau gaussien au cours du temps pour différent rayons

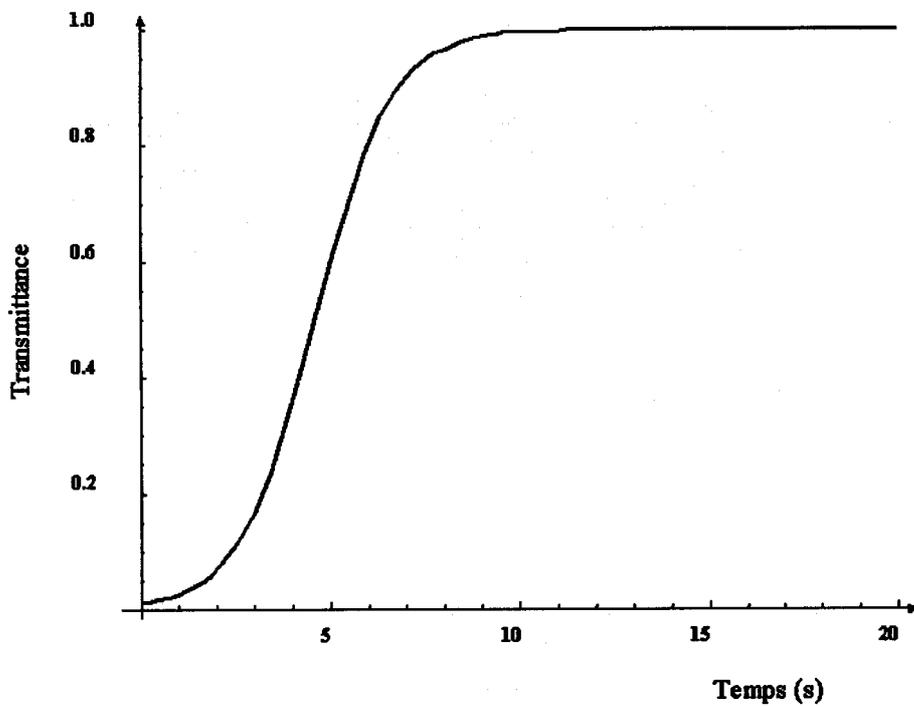


FIG. 4.10 - Exemple théorique de la transmittance pour une durée d'exposition de 20 secondes, $k=1$, $T_0=0,01$, $r=0$.

- $T_0 = 0,01$ est la transmittance initiale ;
- d épaisseur de l'échantillon ;
- t temps d'illumination ;
- k est une constante temporelle, contient l'intensité du faisceau incident I_0 , la vitesse de réaction et le rendement quantique de formation de l'espèce active ;

La figure 4.10 page précédente montre un exemple de la transmittance à partir du modèle présentée par la formule 4.8 page 118. Ce modèle a été proposé par le Département de Photochimie Générale (DPG) et sa justification théorique peut être trouvée dans la référence (76). En effet :

$$\alpha = -\frac{\lambda}{4\pi z} \ln\left[\frac{I}{I_0}\right] \quad (4.9)$$

- α : l'absorption du milieu
- I : intensité du faisceau transmis.
- λ : longueur d'onde du faisceau laser.
- d : épaisseur de l'échantillon.

$$\alpha(t, k, T_0, \lambda, d) = -\frac{\lambda \ln\left[\frac{1}{1+\exp(-kt)\left(-1+\frac{1}{T_0}\right)}\right]}{4d\pi} \quad (4.10)$$

Dans l'expression 4.10, le paramètre k est proportionnel notamment à l'intensité optique locale I . L'expression kt peut donc s'écrire sous la forme $k'It$, soit, avec notre définition, $k'E_{acc}$. Nous présentons sur la figure 4.11 page ci-contre un exemple du modèle de l'absorption, à partir de formule 4.10.

Notons au passage que le résultat global obtenu ici sur une couche d'épaisseur non négligeable et déterminée peut être appliqué dans notre simulation de façon tout à fait locale en considérant que l'énergie accumulée E_{acc} est fonction du temps et de l'espace. Dans ce cas, le paramètre d qui intervient dans 4.10 est l'épaisseur de la couche qui a permis la mesure de la transmission.

$$\alpha(E_{acc}, k, T_0, \lambda, d) = -\frac{\lambda \ln\left[\frac{1}{1+\exp(-E_{acc}k')\left(-1+\frac{1}{T_0}\right)}\right]}{4d\pi} \quad (4.11)$$

4.2.3.2 Détermination des paramètres numériques du modèle

Nous ne connaissons pas les valeurs numérique des paramètres de la modélisation, tel que k' , donc nous allons procéder à leur déterminations. Nous avons d'abord à partir de la courbe 4.11 page ci-contre et de la formule 4.10 la variation de l'absorption au cours du temps et ceci au centre du faisceau que nous avons obtenu par fit sur les données

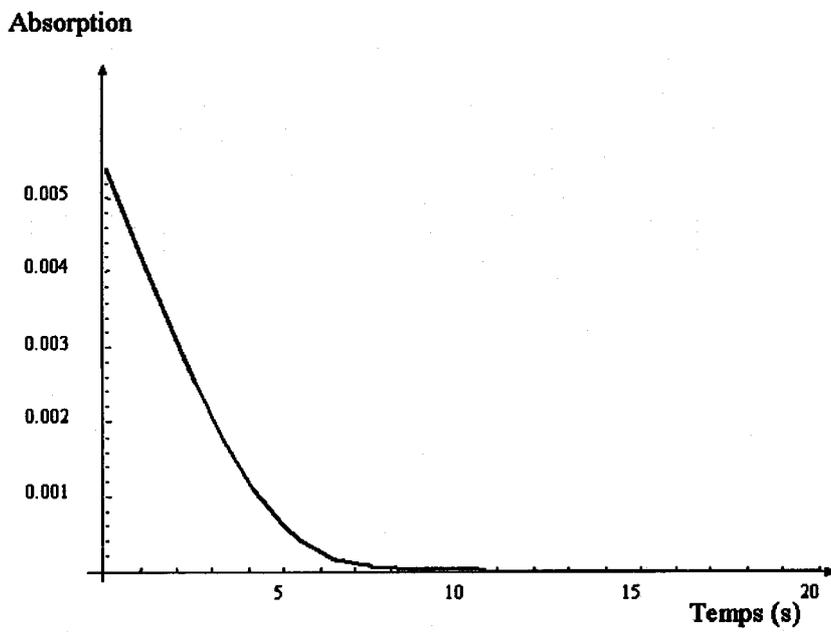


FIG. 4.11 – Exemple d'absorption pour une durée d'exposition de 20 secondes, $k=1$, $T_0=0,2$

expérimentales précédente (figure 4.9 page 120). Nous obtenons ainsi $k' = 8.10^{-6} m^2/J$.

Introduction de l'absorption résiduelle pour 2% d'éosine Le milieu photopolymérisable montre à un temps suffisamment long, une absorption résiduelle. Celle-ci est due tout simplement aux molécules qui composent la formulation à savoir : le PETIA et le MDEA, qui restent dans le milieu même après consommation de l'éosine. Cette constatation émerge de la mesure faite en 2.4.2 page 50 qui présente une certaine valeur aux durées d'exposition élevées. Pour ces raisons, nous pensons qu'il est nécessaire de rajouter au modèle défini par le DPG, une constante qui représente cette absorption.

$$\alpha(E_{acc}, 8.10^{-6}, 0.01, 514, 35) = \alpha_r - \frac{\lambda \log\left[\frac{1}{1+\exp(-E_{acc}k)(-1+\frac{1}{T_0})}\right]}{4d\pi} \quad (4.12)$$

α_r est l'absorption résiduelle qui vaut 0,001.

4.2.3.3 Résultats

La figure 4.12 page ci-contre montre l'évolution du faisceau qui se propage dans le milieu photopolymérisable, avec une absorption qui varie au cours du temps. Dans les précédentes simulations, le faisceau a la même distribution le long de l'axe de propagation. Lorsque nous sommes en présence d'une absorption d'une formulation comportant 2% d'éosine, le faisceau est fortement absorbé au départ puis de moins en moins au cours du temps. Sur l'image correspondant à $t=4s$, on voit l'apparition d'une focalisation à une distance de $2/3$ par rapport à l'origine ($z=0$). L'introduction de l'absorption fait diminuer le rayon de courbure vers une valeur de $2,6\mu m$ (qui était initialement de $5,3\mu m$). C'est la mesure qui est faite sur l'image de droite de la figure 4.13 page 126, où la micropointe subit un rétrécissement sur toute sa longueur pour donner une forme conique, à pointe arrondie.

Conclusion A partir d'un modèle de transmission, proposé par le DPG, nous avons déduit un modèle local décrivant l'évolution de l'absorption du milieu photopolymérisable au cours du temps. Les résultats de simulation montrent clairement le rôle que joue l'absorption sur la photopolymérisation.

Le nouveau rayon de courbure de la micropointe diminue sensiblement, son diamètre diminuant en allant vers son extrémité. Quant à l'aspect géométrique, celui-ci a changé le long de la micropointe, en obtenant une extrémité plus étroite. Ceci est lié à l'énergie qui est plus faible lorsqu'on s'approche de l'extrémité de la goutte, c'est ce que traduisent les

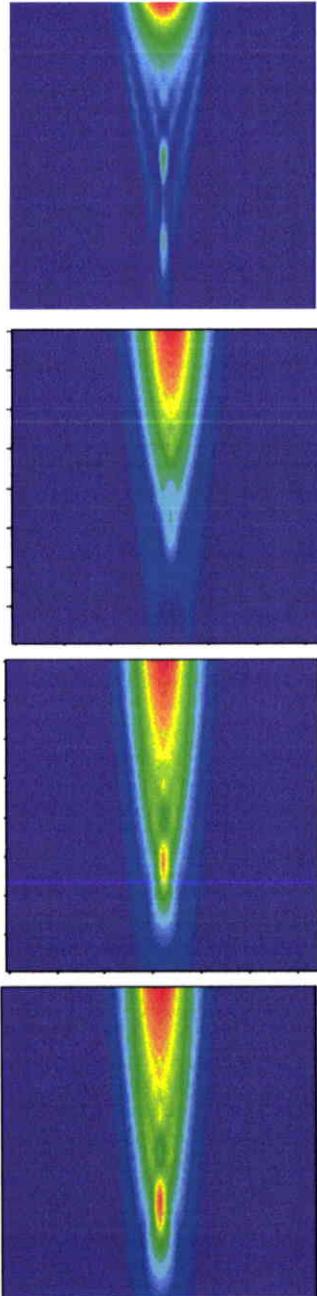


FIG. 4.12 – Niveau d'intensité du faisceau lumineux au cours du temps dans un milieu photopolymérisable avec une absorption qui varie au cours du temps (de haut en bas : 1, 2, 3 et 4s). Puissance : $2,5\mu\text{W}$, $C_s : 5 \times 10^2 \text{J/m}^2$, $C_{smax} : 10^8 \text{J/m}^2$, Distance de diffusion de l'oxygène extérieure $Ddiff : 0,1\mu\text{m}$

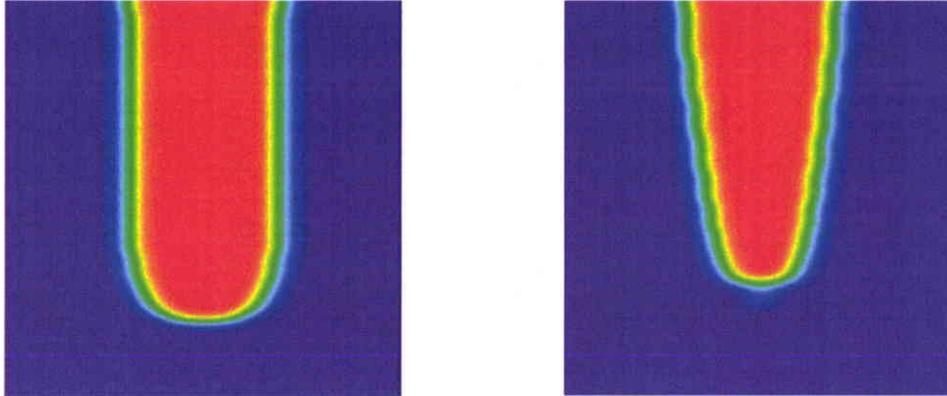


FIG. 4.13 – Comparaison d’une micropointe sans absorption (à gauche) et avec absorption (à droite), du milieu photopolymérisable pour une durée d’exposition d’une seconde et pour une puissance de $2,5\mu\text{W}$, $C_s : 5 \times 10^2 \text{J/m}^2$, $C_{smax} : 10^8 \text{J/m}^2$, Distance de diffusion $D_{diff} : 0,1\mu\text{m}$

images de la figure 4.12 page précédente.

Ce que nous pouvons dire ici est que le photoblanchiment joue un rôle important dans le processus de formation des micropointes.

4.2.4 Mise en évidence du lien entre la concentration en éosine et la distance de diffusion D_{diff} et modélisation de ce lien.

La photopolymérisation est un processus de changement de l’état du milieu photopolymérisable où l’influence de l’oxygène va s’estomper avec le temps.

Nous allons ici mettre en évidence un lien très étroit entre la distance de diffusion de l’oxygène D_{diff} et la concentration en éosine. Un modèle représentant la dynamique de ce processus, sera donné. Nous verrons en final à travers de nouvelles simulations, son effet sur la croissance de la micropointe.

4.2.4.1 Mise en évidence et conséquence sur D_{diff}

A partir des deux courbes expérimentale et théorique (figure 2.10 page 49, figure 3.12 page 89 et figure 4.3 page 110), nous remarquons la diminution du rayon de courbure de la micropointe en fonction du taux d’éosine ; pour la courbe expérimentale, et en fonction de la distance de diffusion D_{diff} , pour la courbe théorique.

Néanmoins, le taux d’éosine mentionné n’est que celui fixé durant la préparation de la

formulation. L'expérience liée au photoblanchiment, nous montre que, durant la formation de la micropointe, il s'opère une décoloration qui est due à la consommation de l'éosine. Si nous supposons que le taux d'éosine est lié à D_{diff} , par analogie nous aurons la diminution de sa valeur à partir de D_{diff0} qui est la distance de diffusion initiale.

La deuxième analyse montre que, lorsque les systèmes photopolymérisables changent d'état, en passant du liquide au solide, les molécules venant de l'extérieur ou de l'intérieur auront de plus en plus de mal à se mouvoir au cours du temps, y compris l'oxygène, qui voit diminuer son influence sur la formation de la micropointe, d'où la chute de la distance de diffusion D_{diff} .

4.2.4.2 Modèle de variation de la distance de diffusion de l'oxygène extérieur : D_{diff}

Comme expliqué dans le point précédent, nous lions la variation de la distance de diffusion de l'oxygène extérieur, à la consommation de l'éosine du milieu (photoblanchiment). Donc, la diminution de l'absorption du système, qui est directement attachée à la décroissance du photoinitiateur, peut avoir la même évolution que D_{diff} . Nous proposons (voir la formule 4.13), un modèle de variation de D_{diff} proportionnel à la consommation en éosine et donc à l'absorption.

$$D_{diff}(E_{acc}) = D_{diff0} \cdot \frac{absorption(E_{acc})}{absorption(0)} \quad (4.13)$$

- D_{diff0} : distance de diffusion initiale de l'oxygène extérieur.
- $absorption(0)$: absorption initiale.
- E_{acc} : densité d'énergie accumulée en J/m^2

4.2.4.3 Introduction du modèle de D_{diff} dans le code

Plusieurs conséquences apparaissent à partir de cette nouvelle modification :

- Tout d'abord, nous rappelons que l'énergie accumulée (E_{acc}) est donnée en 3 dimensions, ce qui nous fait passer D_{diff} d'un scalaire à une matrice 3 dimensions variant dans le temps.
- E_{acc} varie au cours du temps, de même que D_{diff} .
- L'énergie de seuil de polymérisation est fonction de D_{diff} , ce qui nous fait passer E_s , d'une matrice à valeur constante dans le temps, vers une matrice variable dans le temps.

Les lignes qui suivent nous permettront, à travers de nouvelles simulations, de quantifier l'influence de cette variation.

4.2.4.4 Nouveaux résultats

Nous avons réalisé des simulations grâce à l'introduction du nouveau modèle de D_{diff} , nos résultats montrent nettement qu'il n'y a pas de variation significative apportée par l'introduction du nouveau modèle de variation de la distance de diffusion de l'oxygène extérieur. En effet, les images obtenues sont exactement les mêmes que celles données jusqu'à présent.

Conclusion L'hypothèse que nous avons fixée au début de ce chapitre, concernant l'éventuel lien qui existe entre le taux d'éosine et la distance de diffusion de l'oxygène extérieur, a été étudié et analysée. Nous avons proposé un modèle qui décrit l'évolution de D_{diff} en fonction de l'énergie accumulée (E_{acc}), et l'avons intégré dans le code initial pour voir son influence. Cependant, il n'y a pas d'influence cruciale entre les deux phénomènes : la polymérisation et la diminution de la distance de diffusion D_{diff} . Compte-tenu des figures (2.10 page 49, 3.12 page 89) il semble que ce phénomène soit bien réel. Toutefois, son influence sur la forme de la micropointe est négligeable, par conséquent, étant donnée la lourdeur des calculs engendrés nous ne l'introduirons pas dans le modèle final.

4.2.5 Photochimie Non linéaire

Nous avons jusqu'à présent considéré que le degré de polymérisation local était proportionnel à l'énergie accumulée locale $E_{acc} = I \times t$, ceci de manière résolue dans le temps et dans l'espace. Ceci suppose qu'une dose donnée $I \cdot \delta t$ incidente provoque une polymérisation indépendante de I et δ , pourvu que le produit soit constant. Nous allons voir que ce n'est pas toujours le cas.

Analyse et modélisation L'épaisseur polymérisée dépend à la fois de la dose lumineuse (mJ/cm^2) et de l'intensité du faisceau (mW/cm^2)(56; 57).

A.Espanet (57), au cours de sa thèse, a obtenu des résultats de mesure de l'épaisseur polymérisée en fonction de la dose lumineuse et ceci pour différentes intensités. A partir de l'observation de ces résultats, nous pouvons diviser le comportement photochimique en deux parties :

- pour des intensités très inférieures à $40\text{mW}/\text{cm}^2$, l'épaisseur polymérisée dépend à la fois de la dose et de l'intensité lumineuse. Ceci est qualifié de comportement non linéaire.
- dépassé les $40\text{mW}/\text{cm}^2$, les courbes se rejoignent pratiquement toutes. Nous aurons dans ce cas un comportement linéaire sauf si la dose est supérieure à 1000.

Pour décrire ce phénomène, nous proposons d'introduire dans notre synoptique de calcul et plus spécifiquement dans E_{acc} une constante, dépendant de I que nous nommerons β . Celle-ci va traduire l'efficacité de polymérisation du système, en accélérant ou en ralentissant le phénomène. Cette vitesse de photopolymérisation va intervenir dans les énergies accumulées E_{acc} de la façon suivante :

$$E_{acc} = E_{acc} + \beta(I) \times I \quad (4.14)$$

$\beta(I)$ varie en fonction de I (comme reporté par la figure 4.14 page suivante). Notons que l'introduction de ce *facteur d'efficacité* sur l'accumulation de l'énergie, permet de tenir compte de l'influence de l'intensité I sur l'absorption de la dose $I \cdot \delta t$ de façon entièrement résolue dans le temps et dans l'espace.

Ordre de grandeur des intensités mises en jeu dans la formation de la micropointe Intéressons nous maintenant aux ordres de grandeur des intensités utilisées dans nos expériences et simulations. La puissance injectée dans la fibre est de $2,5\mu\text{W}$, ce qui nous amène à une densité moyenne de puissance aux environs de $25\text{W}/\text{cm}^2$, qui est 10^3 fois plus grande que le seuil de densité mentionnées dans la thèse de A.Espanet (57). Nous sommes donc dans le cas où β est saturé à 1 et nous ne l'introduisons pas dans notre modèle de calcul.

4.3 Approche globale et correction

Après l'étude des différents processus physicochimiques pouvant intervenir dans la croissance de la micropointe, nous avons entrepris des simulations qui incluent les éléments donnés dans le présent chapitre, à savoir la diffusion de l'oxygène interne et le photoblanchiment tout en tenant compte des résultats de calcul donnés au chapitre 3. Les rayons de courbure sont mesurés par la méthode citée précédemment (voir figure 2.6 page 42). Ils sont comparées avec les résultats expérimentales de mesure.

Nous avons étudié l'influence de la durée d'exposition ainsi que de la puissance. Pour les

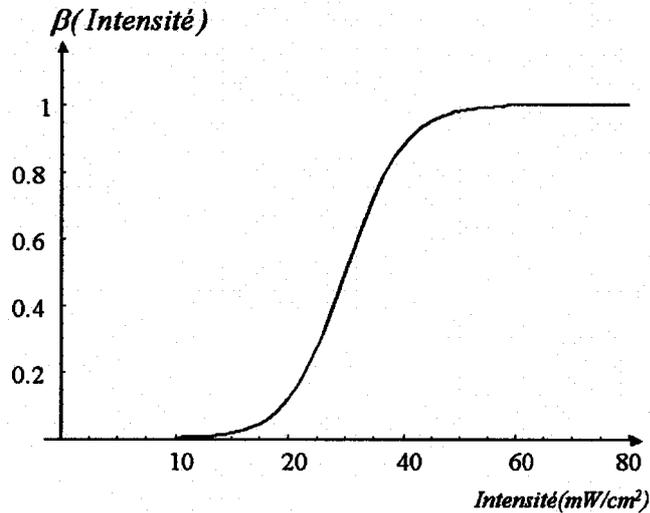


FIG. 4.14 – Modélisation de la photochimie non linéaire.

comparer, nous avons sélectionné les résultats expérimentaux faits sur des formulations à 4% d'éosine. Les simulations numériques ont été faites après un choix judicieux des valeurs à affecter aux constantes du modèle. Comme ce problème n'est pas trivial, nous avons entrepris une stratégie de détermination de ces valeurs que nous allons expliquer dans le prochain paragraphe.

4.3.1 Choix des paramètres du modèle

Les constantes du modèle qui nous permettent de simuler la croissance de la micropointe, ne sont pas choisies de façon arbitraire. Un lien existe entre toutes ces constantes : la corrélation entre paramètres du modèle que nous nommerons *paramétrage*.

L'expérience nous a montré qu'un changement d'une quelconque valeur physique intervenant dans la fabrication de la micropointe peut engendrer la variation d'un autre élément. Il nous faut tenir compte de ce couplage dans le choix de nos paramètres. Il faut connaître le rapport qui existe entre les constantes, pour voir ce qu'elles engendrent comme changement de paramètres et déterminer le point de fonctionnement du code qui nous permettra d'aboutir à un résultat cohérent avec la réalité physique.

Pour montrer l'importance du choix judicieux des valeurs de ces constantes du modèle, il faut réaliser une série de calculs basés sur la succession de tableaux. Cette stratégie de détermination des constantes des modèles peut être qualifiée par la convergence vers une

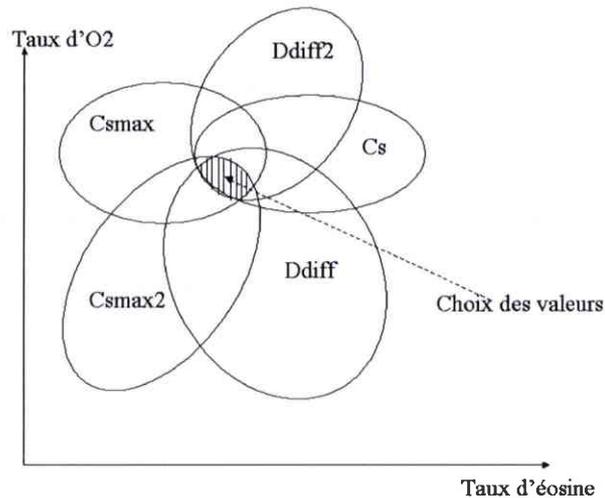


FIG. 4.15 – Détermination de la zone de fonctionnement du code de simulation

zone appropriée qui sont les valeurs permises. Si on suppose que la constante C_s est fonction des paramètres expérimentaux tels que la concentration en éosine et le taux d'oxygène, il en est de même que pour C_{smax} et D_{diff} . Ces derniers devront se rejoindre de façon à trouver le bon point de fonctionnement du code. C'est ce qui est schématisé par la figure 4.15, où nous pouvons voir que C_s , C_{smax} , D_{diff} , C_{smax2} , D_{diff2} dépendent du taux d'éosine mais aussi du taux d'oxygène dans la formulation et dans l'atmosphère. Pour des données physiques fixes, il ne peut y avoir qu'une seule valeur pour chaque constante.

Pour illustrer tout ce qui a été dit autour du paramétrage des constantes du modèle, nous prenons l'exemple de la simulation de la micropointe sous le mode de propagation fondamental. Ici et en raison des calculs donnés au début de ce chapitre, nous n'avons pas considéré ni la diffusion de l'oxygène interne, ni le photoblanchiment. Si nous prenons des valeurs arbitraires des constantes C_s , C_{smax} et D_{diff} , nous aurons une micropointe en désaccord avec l'expérience (voir la figure 4.16 page suivante). En effet, celle-ci présente une dissymétrie, elle ne ressemble à aucune micropointe observée expérimentalement.

Pour obtenir un résultat conforme à l'expérience nous avons réalisé une série de calculs basés sur la succession des tableaux 4.3, 4.4 et 4.5 page 133. Le premier tableau nous permet de déterminer la valeur de C_{smax} , le second de C_s et le troisième de D_{diff} . Le passage d'un tableau à un autre s'effectue en prenant la valeur optimale, donnant le meilleur résultat, pour chaque constante.

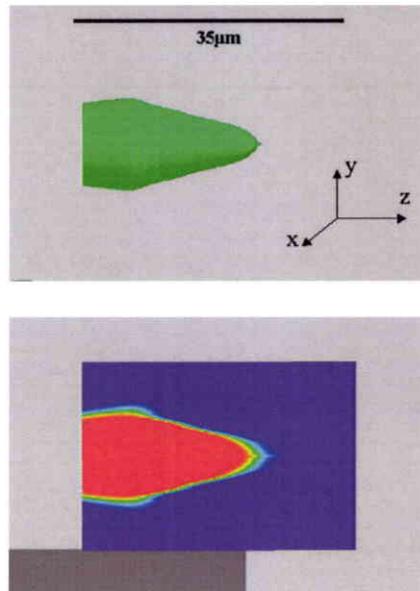


FIG. 4.16 – Premier résultat d’une micropointe issue du mode de propagation fondamental LP_{01} .

C_{smax}	C_s	D_{diff}	Figure
10^{14}	10^9	$1\mu m$	test1
10^{15}	10^9	$1\mu m$	test2
10^{16}	10^9	$1\mu m$	test3
10^{17}	10^9	$1\mu m$	test4
10^{18}	10^9	$1\mu m$	test5
10^{19}	10^9	$1\mu m$	test6

TAB. 4.3 – Détermination de la valeur optimale de la constante C_{smax} .

C_{smax}	C_s	D_{diff}	Figure
10^{16}	10^4	$1\mu m$	test1
10^{16}	10^5	$1\mu m$	test2
10^{16}	10^6	$1\mu m$	test3
10^{16}	10^7	$1\mu m$	test4
10^{16}	10^8	$1\mu m$	test5
10^{16}	10^9	$1\mu m$	test6

TAB. 4.4 – Détermination de la valeur optimale de la constante C_s .

$C_s max$	C_s	D_{diff}	Figure
10^{16}	$4 \cdot 10^5$	$0,25 \mu m$	test1
10^{16}	$4 \cdot 10^5$	$0,5 \mu m$	test2
10^{16}	$4 \cdot 10^5$	$0,75 \mu m$	test3
10^{16}	$4 \cdot 10^5$	$1 \mu m$	test4
10^{16}	$4 \cdot 10^5$	$1,25 \mu m$	test5
10^{16}	$4 \cdot 10^5$	$1,5 \mu m$	test6

TAB. 4.5 – Détermination de la valeur optimale de la constante D_{diff} .

4.3.2 Rayon de courbure en fonction du temps et de la puissance

Pour voir comment le milieu se comporte lorsqu'il est en présence des deux processus expliqués précédemment, à savoir la diffusion de l'oxygène et le photoblanchiment, nous avons refait la série de simulations faites au début de ce chapitre. Nous étudions l'influence de la durée d'exposition et de la puissance, après avoir fixé grâce à la méthode expliquée précédemment, la valeur correspondant à chaque constante du modèle.

4.3.2.1 Influence de la durée d'exposition sur le rayon de courbure

Les résultats de nos calculs sont donnés sur le tableau 4.6 page suivante et représentés sur la figure 4.17 page 135.

Il est intéressant de voir que pour des durées d'exposition faibles, nous sommes en présence de micropointes avec une base plus large que l'extrémité⁴, d'une longueur plus petite et d'un rayon de courbure plus faible. Lorsque la durée d'exposition augmente, nous avons une plus importante polymérisation autour de l'extrémité ainsi nous obtenons un rayon de courbure plus grand.

Nous reportons l'ensemble des mesures sur la courbe 4.18 page 136, où nous avons comparés les rayons de courbure avec leurs mesures expérimentales en fonction de la durée d'exposition. On retrouve le même comportement pour les durées d'exposition faibles, (entre 1s et 6s) avec un rayon de courbure autour de $2 \mu m$. Dépassé les 6 secondes d'exposition, le rayon de courbure croît linéairement à raison de $0,34 \mu m/s$. On remarque tout de même un décalage entre les deux courbes aux durées élevées, cette différence est peut être dû à la technique de mesure.

Notons au passage que ces simulations nous ont permis de valider l'hypothèse suivant laquelle le point de *rupture de pente* apparaissant aux environs de 7s sur les courbes de

⁴la partie étudiée est l'isoindice, représentée par l'intérieur de la micropointe

Durée d'exposition (s)	Rayon de courbure (μm)
1	1,2
2	1,2
3	1,5
4	1,6
5	1,6
6	2,6
7	4,9
8	3,9
9	4,7
10	5,8
11	5,8
15	6,6
20	8,3
25	10
30	12,4
35	14,8

TAB. 4.6 – Résultats de simulation sur l'influence de la durée d'exposition sur le rayon de courbure de la micropointe, puissance : $2,5\mu\text{W}$, longueur d'onde $543,5\text{nm}$, $C_s : 5 \times 10^2 \text{J/m}^2$, $C_{smax} : 10^8 \text{J/m}^2$, Distance de diffusion $Ddiff = Ddiff2 : 0,1\mu\text{m}$, $C_{smax2} : 10^4 \text{J/m}^2$ correspondant à la figure 4.18 page 136

la figure 4.18 page 136 correspondant au moment où l'extrémité de la zone polymérisée entrant dans la zone d'influence de l'oxygène extérieur.

4.3.2.2 Influence de la puissance

Nous avons simulé la croissance de la micropointe, et déterminé son rayon de courbure. Pour des puissances allant de $0,8$ à $35\mu\text{W}$, les résultats sont présentés sur le tableau 4.7 page ci-contre et reportés sur la courbe 4.19 page 137, où sont faites la comparaison avec l'expérience.

Contrairement à la courbe de la figure 4.2 page 108, notre calcul met cette fois-ci en évidence deux paliers comme dans l'expérience. Pour les puissances allant de $0,8$ à $20\mu\text{W}$, le rayon de courbure ne varie pratiquement pas et est situé proche de $2\mu\text{m}$. Dépassé les $20\mu\text{W}$, nous avons un saut pour atteindre une valeur élevée de $9\mu\text{m}$. Ceci est dû au fait que nous nous rapprochons de l'interface air-polymère. La transition n'est cependant pas au même endroit entre la théorie et l'expérience, tout comme pour le point précédent nous insistons sur l'origine de mesure (expérience faite au LNIO et la simulation au LMOPS). En effet, l'endroit de l'isoindice pris sur les images a une influence sur les mesures.

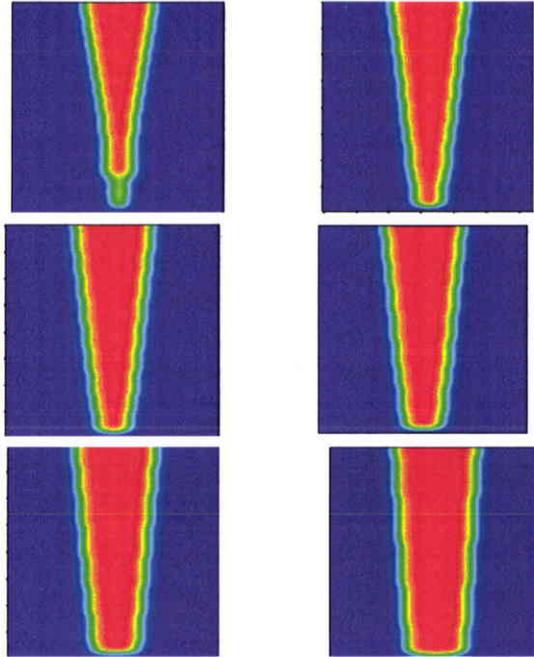


FIG. 4.17 – Croissance de la micropointe pour : de gauche à droite 1s, 3s, 6s, 9s, 15s, 40s, Puissance : $2,5\mu\text{m}$, $C_s : 5 \times 10^2 \text{J/m}^2$, $C_{smax} : 10^8 \text{J/m}^2$, Distance de diffusion $D_{diff} = D_{diff2} : 0,1\mu\text{m}$, $C_{smax2} : 10^4 \text{J/m}^2$.

Puissance du faisceau (μW)	Rayon de courbure (μm)
0,8	0,6
0,9	0,9
1	0,6
2,5	1,2
5	1,2
7	1,3
10	1,4
15	2,2
20	2,2
25	8,9
30	8,9
35	8,9

TAB. 4.7 – Résultats de simulation sur l'influence de la puissance sur le rayon de courbure de la micropointe. Durée d'exposition : 1s, $C_s : 5 \times 10^2 \text{J/m}^2$, $C_{smax} : 10^8 \text{J/m}^2$, $D_{diff} = D_{diff2} : 0,1\mu\text{m}$, $C_{smax2} : 10^4 \text{J/m}^2$ correspondant à la figure 4.19 page 137.

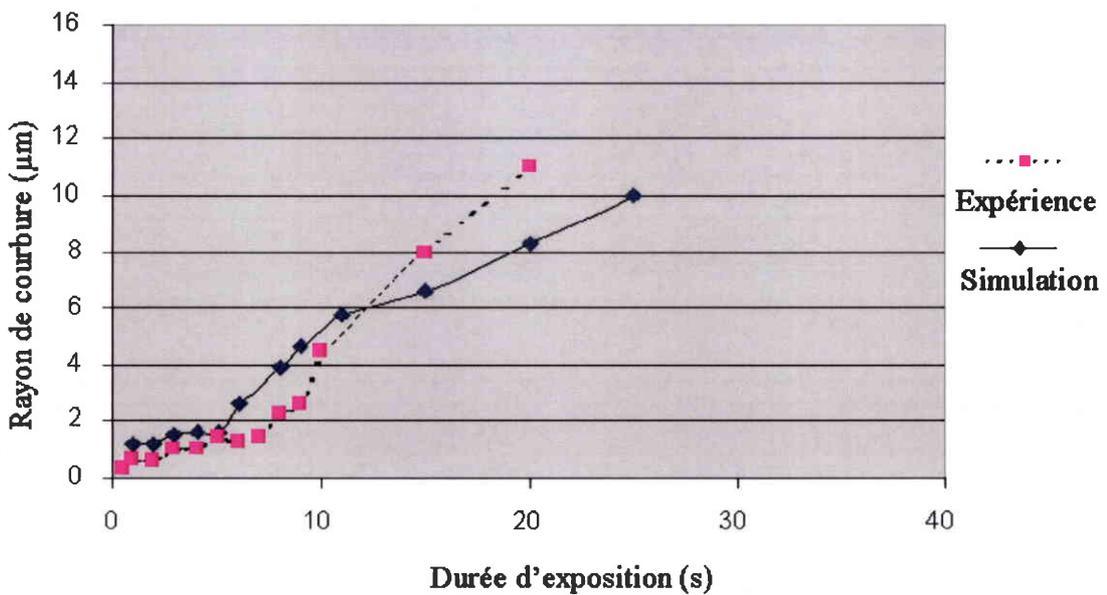


FIG. 4.18 – Comparaison expérience-simulation du rayon de courbure de la micropointe en fonction de la durée d'exposition. *Données expérimentales* : Puissance : $2,5\mu\text{m}$, taux d'éosine : 4% *Données de simulation* : $C_s : 5 \times 10^2 \text{J/m}^2$, $C_{smax} 10^8 \text{J/m}^2$; Distance de diffusion $Ddiff = Ddiff2 : 0,1\mu\text{m}$, $C_{smax2} : 10^4 \text{J/m}^2$ dans un milieu qui photoblanchit selon le nouveau modèle à 2% d'éosine.

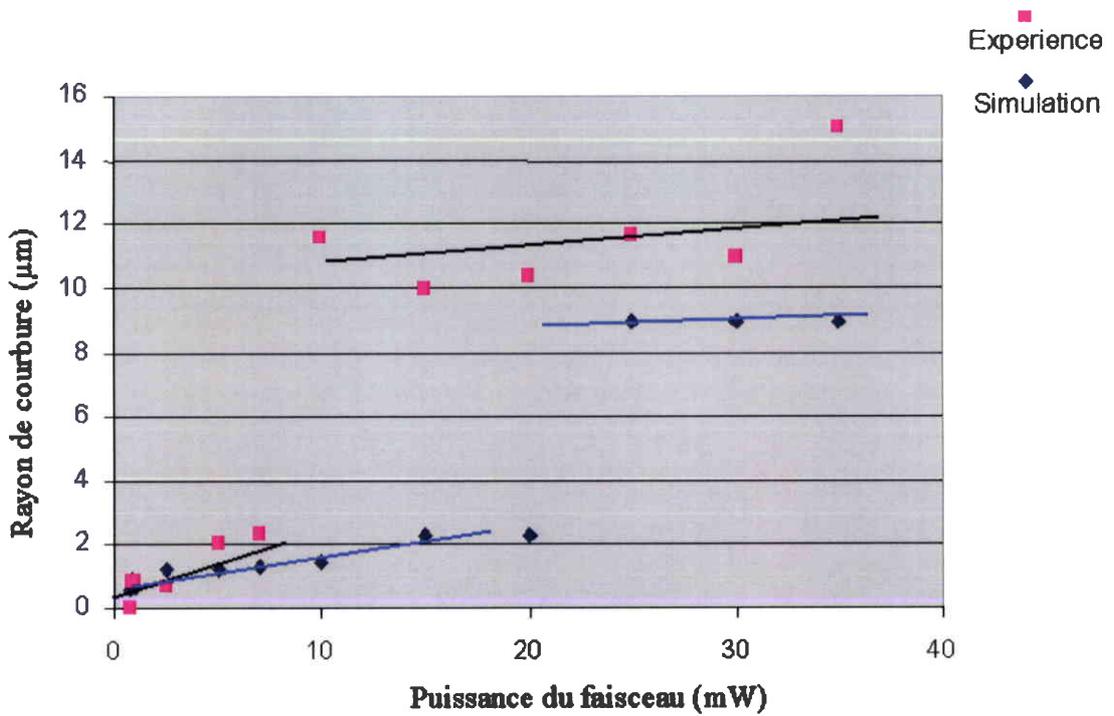


FIG. 4.19 – Comparaison expérience-simulation du rayon de courbure de la micropointe en fonction de la puissance du champ émergent de la fibre optique. Durée d'exposition : 1s, $C_s : 5 \times 10^2 \text{ J/m}^2$, $C_{smax} : 10^8 \text{ J/m}^2$, $D_{diff} = D_{diff2} : 0,1 \mu\text{m}$, $C_{smax2} : 10^4 \text{ J/m}^2$

4.3.3 Interprétation des résultats

Nous allons interpréter ces résultats par rapport aux trois points suivants :

- la durée d'exposition,
- la puissance,
- l'effet du photoblanchiment,

Par la suite, nous verrons comment est liée la théorie avec l'expérience, puis nous commenterons le sens de chaque constante du modèle du point de vue expérimental.

4.3.3.1 Comment la durée d'exposition influence la formation de la micropointe

L'augmentation de la durée d'exposition engendre l'augmentation de l'énergie accumulée dans le milieu photopolymérisable.

$$E_{acc} = Puissance.Temps \quad (4.15)$$

A partir de la courbe 3.24 page 72, représentant la réponse du milieu à une excitation lumineuse, l'indice de réfraction serait plus important avec la durée d'exposition ; la forme hémisphérique de la micropointe pour les durées d'exposition faibles, vient de la forme gaussienne du mode de propagation fondamental qui émerge de la fibre optique ; en effet, en s'éloignant du centre de l'axe de propagation l'intensité diminue. Cette extrémité ne se retrouve, qu'après quelques secondes d'exposition, au niveau de l'interface air-polymère à cause de deux aspects :

- l'énergie de seuil qui est plus élevée lorsqu'on s'éloigne de l'origine ($z=0$). De ce fait, il faut plus d'énergie accumulée pour contrer cette énergie de seuil donc, plus de temps,
- l'absorption au départ est importante, le faisceau est considérablement atténué. Après quelques secondes l'absorption diminue, à cause du photoblanchiment et par conséquent nous avons plus d'énergie qui arrive au bout de la goutte.

4.3.3.2 Influence de la puissance

La transition brutale observée sur la figure 4.19 page précédente en fonction de la puissance, n'est pas observée sur la figure 4.18 page 136 en fonction du temps alors que dans les deux cas, la dose lumineuse reçue varie de la même manière. Ceci s'interprète en considérant que notre modèle est entièrement résolu dans le temps et dans l'espace. C'est donc la variation temporelle de la répartition de l'indice de réfraction qui est différente

<i>Experience</i>	<i>Simulation</i>
Taux d'éosine dans la formulation (%)	Distance de diffusion D_{diff}
Taux d'oxygène dans le milieu	Constante de seuil de polymérisation C_s, C_{smax2}
Taux d'oxygène extérieur	C_{smax}
Intensité du faisceau	D_{diff2}

TAB. 4.8 – Comparaison entre les constantes du modèle théorique et l'expérience

entre ces deux courbes. Cela provient du fait que les effets de diffraction sont entièrement pris en compte. Ces considérations sont d'ailleurs confirmées par l'expérience.

4.3.3.3 Le photoblanchiment

Le photoblanchiment est très important dans l'interprétation des deux évolutions du rayon de courbure dans ces deux comportements temporel et en fonction de la puissance. Il intervient de la même façon, car l'absorption qui varie au cours du temps varie aussi en fonction de l'énergie accumulée. Nous avons utilisé dans le modèle de l'absorption un taux d'éosine de 2%, les courbes expérimentales qui sont les plus proches des courbes théoriques sont celle obtenues pour 4% de taux d'éosine. La raison en est que ce taux d'éosine n'entre pas explicitement dans le code de simulation. Il est donc difficile d'attribuer exactement un taux d'éosine à un jeu de paramètres.

4.3.4 Comparaison entre l'expérience et la simulation

Il est important après toutes les simulations faites sur la croissance de la micropointe de faire une synthèse, sous forme de tableau récapitulatif (voir tableau 4.8), de toutes les constantes du modèle et de les comparer aux éléments qui interviennent dans l'expérience.

Si nous modifions le taux d'éosine, en l'augmentant, dans le milieu, celui-ci laissera plus facilement pénétrer l'oxygène venant de l'atmosphère : c'est ce qui est représenté par la distance de diffusion D_{diff} . L'oxygène quant à lui a deux origines, la première est l'atmosphère de croissance qui approvisionne constamment le milieu et qui est représenté par C_{smax} . La seconde origine est dans la formulation photopolymérisable qui contient une certaine quantité d'oxygène dissout. L'irradiation gaussienne va créer un gradient de concentration qui va dépendre de la vitesse de dépeuplement de cet élément. Donc, plus le faisceau est intense, plus vite l'oxygène est consommé ainsi que l'éosine sur son passage : C_{smax2} est lié au taux d'oxygène présent aux bords du faisceau, D_{diff2} représente sa distance de diffusion.

4.4 Conclusion

Nous avons apporté dans ce chapitre, plusieurs modifications qui concernent la modélisation du processus de photopolymérisation donnant naissance à la micropointe. Cet apport, que nous avons nommé *affinement de la modélisation*, s'appuie sur plusieurs phénomènes que nous avons identifié comme important :

- la diffusion de l'oxygène dissout à l'intérieur du milieu photopolymérisable,
- le photoblanchiment par un modèle décrivant la diminution de l'absorption au cours du temps.
- la décroissance de la distance de diffusion de l'oxygène extérieur au cours du temps.

Tous ces processus ont été considérés, leurs influences respectives dans le fonctionnement du phénomène de photopolymérisation sont mis en évidence, et ont permis d'apporter des corrections significatives au modèle développé au cours du chapitre 3.

A l'issue des simulations, nous avons pu voir que les deux premiers points sont extrêmement importants. Le photoblanchiment est la base de la croissance du rayon de courbure au cours du temps et en fonction de la puissance. La diffusion de l'oxygène interne a pour effet un décalage vers les rayons de courbure plus petits, indépendant de la durée d'exposition ou de la puissance injectée. Cependant, tous ces résultats ne seront mis en place sans un bon paramétrage des constantes du modèle. Le point dur dans ces simulations, est le fait de ne pas avoir de valeur expérimentale qui représente les constantes tel que D_{diff} , C_{smax} , C_{smax2} ... C'est à partir de là, que nous avons entrepris une série de tests intermédiaires, nommés dans ce chapitre *stratégie de détermination des constantes du modèle* pour fixer les bonnes valeurs correspondantes, ceci nous a permis d'obtenir une bonne corrélation entre les courbes expérimentales et théoriques et de dresser un bilan récapitulatif de l'effet de chaque constante du modèle et de ce qu'elle représente physiquement ou expérimentalement.

Conclusion générale

L'objectif du travail présenté au cours de ce manuscrit était la compréhension et la modélisation de la croissance d'un micro-composant polymère en extrémité de fibre, réalisé par photopolymérisation. Nous l'avons baptisé *micropointe optique*. Le but ultime de cette étude est de pouvoir prévoir et contrôler la fonction optique réalisée par la micropointe optique à partir des paramètres de sa croissance.

Nous avons présenté les aspects expérimentaux de ce travail qui ont été réalisés au Laboratoire de Nanotechnologie et d'Instrumentation Optique de l'Université de Technologie de Troyes. Les aspects théoriques de modélisation et de simulation ont été faits réalisés dans notre laboratoire.

Les expériences ont permis d'une part de confirmer l'intérêt industriel de la micropointe optique, autant d'un point de vue coût que fonctionnalités, et d'autre part de fournir une base de travail pour les travaux de modélisation.

En effet, c'est à partir de mesures systématiques du rayon de courbure en extrémité de la micropointe optique que nous avons pu affiner les modélisations de manière à reproduire, pour la simulation, ces mesures.

Nous sommes ainsi arrivés à la conclusion que le modèle à prendre en compte ne devait pas nécessairement être très complexe, mais que la simple prise en compte des effets de diffraction et d'autofocalisation à l'intérieur de la formulation suffisait à rendre compte de la majorité des observations. En effet, les effets de diffusion de l'oxygène depuis l'atmosphère de croissance dans le composant, ainsi qu'à l'intérieur de la formulation vers les zones appauvries associés au photoblanchiment nous ont permis de reproduire les mesures expérimentales.

A ce stade, nous disposons d'un modèle tridimensionnel nous permettant de prévoir le comportement de la solution photopolymérisable en présence d'un éclairage focalisé. Celui-ci nous permet d'en déduire la forme de la micropointe optique obtenue après lavage au méthanol.

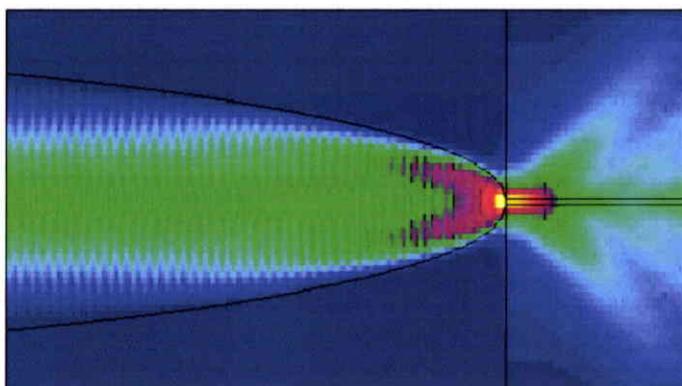


FIG. 4.20 – Energie électromagnétique totale dans la micropointe optique et aux alentours.

Nous disposons donc d'une description numérique de la forme de la micropointe optique. Or, celle-ci peut être considérée, une fois polymérisée, comme un milieu essentiellement linéaire. Par conséquent, la fonction optique qu'elle réalise peut être obtenue par une simulation de la propagation linéaire en milieu homogène et isotrope.

Il existe des logiciels dans le commerce à même de réaliser cette simulation. Citons par exemple le logiciel FIMMPROP3D de la société anglaise Photon Design grâce auquel nous avons obtenu les figures 4.20 et 4.21 page ci-contre représentant la propagation de la lumière dans une micropointe simplifiée. Ce logiciel est basé sur la décomposition du faisceau se propageant sur la base des modes propres en un point donné. C'est la raison pour laquelle nous disposons de la figure 4.21 page suivante représentant l'énergie se propageant vers l'extrémité de la micropointe séparément de l'énergie réfléchie, la figure 4.20 représentant la répartition globale de l'énergie.

Je voudrais simplement terminer en remerciant encore une fois mes collaborateurs du Laboratoire de Nanotechnologie et d'Instrumentation Optique et du Département de Photochimie Générale, sans la compétence et le travail desquels rien de tout ceci n'aurait été possible.

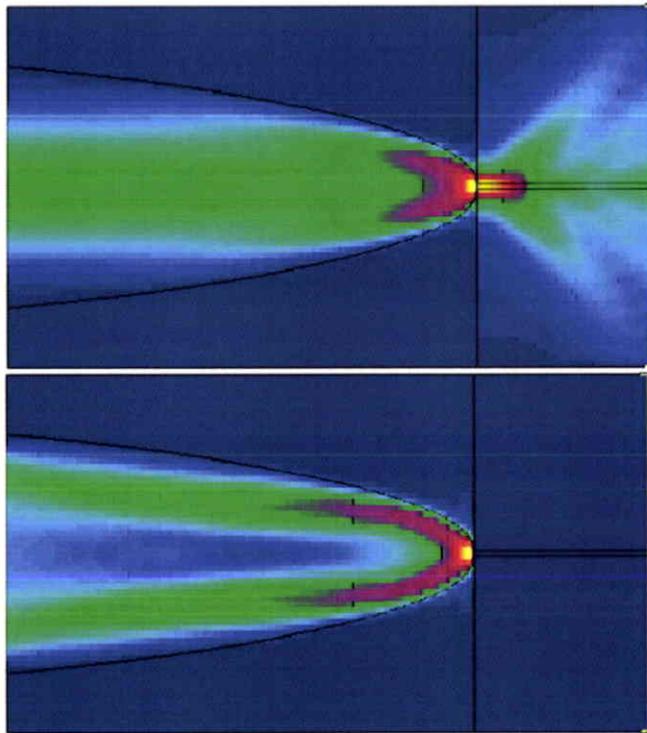


FIG. 4.21 – En haut, énergie se propageant de gauche à droite, donc issue de la fibre. En bas, énergie se propageant de droite à gauche donc issue des réflexions internes

Bibliographie

- [1] Bear (P. D.). – Microlenses for coupling single-mode fibers to single-mode thin-film waveguides. *Applied optics*, vol. 19, n° 17, september 1980, p. 2906.
- [2] Jeunhomme (Luc B.). – *SINGLE-MODE FIBER OPTICS principles and applications*. – Optical Engineering, 1999 volume 23.
- [3] Saruwatari (M.) et Sugie (T.). – *Electron. Lett*, vol. 16, n° 25, 1980, pp. 955–956.
- [4] Cox (W. R.), Chen (T.), Ussery (D.), Hayes (D. J.), Tatum (J. A.) et MacFarlane (D. L.). – Microjetted lenlet triplet fibers. *Optics Communications*, vol. 123, 1996, p. 492.
- [5] Yakobson (B. I.), Moyer (P. J.) et Paesler (M. A.). – Kinetic limits for sensing tip morphology in near-field scanning optical microscopes. *J. Appl. Phys*, vol. 11, n° 73, 1993, pp. 7984–6.
- [6] Grellier (A. J. C.), Zayer (N. K.) et Pannell (C. N.). – Heat transfer modelling in CO₂ laser processing of optical fibres. *Optics Communications*, vol. 152, 1998, pp. 324–328.
- [7] Miyakawa (Walter), Neri (José Wilson), Rodrigues (Nicolau André Silveira) et dos Santos (Antonio Domingues). – Fabrication of microlenses on the end of a fiber using CO₂ laser. *Instituto de Estudos Avançados-Centro Tecnico Aeroespacial and Instituto de Fisica-Universidade de São Paulo*.
- [8] Valaskovic (G. A.), Holton (M.) et Morrison (G. H.). – Parameter control, characterization, and optimisation in the fabrication of optical fiber near-field probes. *Appl. Opt*, vol. 7, n° 34, 1995, p. 1215.
- [9] Williamson (R. L.) et Miles (M. J.). – *J. Appl. Phys*, vol. a, n° 80, 1996, pp. 4804–12.

- [10] et al (Mufei Xiao). – Fabrication of probe tips for reflection snom : Chemical etch and heating pulling methods. *J. Vac. Sci. Tech*, vol. 4, n° B15, 1997, p. 1516.
- [11] Murakami (Y.), Yamada (J. I.), Sakai (J. I.) et Kimura (T.). – *Electron. Lett*, vol. 16, n° 19, 1980, pp. 321–322.
- [12] Sakaguchi (H.), Seki (N.) et Yamamoto (S.). – *Electron. Lett*, vol. 17, n° 12, 1981, pp. 425–426.
- [13] Sayah (A.), Philipona (C.), Lambelet (P.), Pfeffer (M.) et Marquis-Weible (F.). – Fiber tips for scanning near-field optical microscopy fabricated by normal and reverse etching. *Ultramicroscopy*, vol. 71, 1998, pp. 59–63.
- [14] Jiang (S.), Tomita (N.) et Ohswa (H.). – *Jpn. J. Appl. Phys*, vol. 30, 1991, pp. 165–170.
- [15] Barnard (Chris W.) et Lit (John W. Y.). – Single-mode fiber microlens with controllable spot size. *Appl. Opt.*, vol. 30, 1991, p. 1958.
- [16] Eisenstein (G.) et Vitello (D.). – Chemically etched conical microlenses for coupling single-mode lasers. *Appl. Opt.*, vol. 21, 1982, p. 3470.
- [17] Kayoun (P.), Puech (C.), Papuchon (M.) et Arditty (H. J.). – Improved coupling between laser diode and single-mode fiber tipped with a chemically etched self-centred diffracting element. *Electronics Letters*, vol. 17, 1981, p. 400.
- [18] Kawachi (M.) et Edahiro (T.). – Microlens formation on vad single-mode fibre ends. *ELECTRONICS LETTERS*, vol. 18, n° 2, 1982, p. 71.
- [19] Pagnot (Thierry) et Pierali (Christian). – Fabrication of multimode fiber tapers with a high reproducibility of the subwavelength extremity size : application to scanning near-field optical microscope probes. *Optics Communications*, vol. 132, 1996, pp. 161–169.
- [20] Babin (S.), Weber (M.) et Koops (H. W. P.). – Fabrication of a refractive microlens integrated onto the monomode. *Deutsche Telekom AG Technologiezentrum, Am Kavalleriesand 3, D-64295 Darmstadt, Germany*, 1996.
- [21] Cohen (L. G.) et Schneider (M. V.). – Microlenses for coupling junction lasers to optical fibers. *Applied optics*, vol. 13, n° 1, january 1974, p. 89.

- [22] Saito (A.), Cotoh (T.) et Tanaka (Keiji). – Chalcogenide-glass microlenses attached to optical-fiber end surfaces. *Optics Letters*, vol. 25, n° 24, decembre 2000, p. 1759.
- [23] Saitoh (Akira), Gotoh (Tamihiro) et Tanaka (Keiji). – Chalcogenide-glass microlenses for optical fibers. *Journal of Non-crystalline solids*, vol. 299, n° 302, 2002, p. 983.
- [24] Presby (H. M.), Benner (A. F.) et Edwards (C. A.). – Laser micromachining of efficient fiber microlenses. *Appl. Opt.*, vol. 29, 1990, p. 2692.
- [25] Vaidya (Anil) et Harrington (James A.). – Sculpted optical silica fiber tips for use in Nd:Yag contact tip laser surgery: part 1-fabrication techniques. *Optical Engineering*, vol. 7, n° 31, 1992, pp. 1404–1409.
- [26] An (H. L.). – Theoretical investigation on the effective coupling from laser diode to tapered lensed single-mode optical fiber. *Optics Communications*, vol. 181, 2000, pp. 89–95.
- [27] Kuwahara (Hideo), Yoshihito, Goto (Masami) et Nakagami (Takakiyo). – Reflected light in the coupling of semiconductor lasers with tapered hemispherical end fibers. *Applied Optics*, vol. 22, n° 17, 1983, p. 2732.
- [28] Brackett (C. A.). – On the efficiency of coupling light from stripe-geometry GaAs lasers into multimode optical fibers. *Journal of Applied Physics*, vol. 45, n° 6, 1974, p. 2636.
- [29] Presby (H. M.) et Giles (C. R.). – Asymmetric fiber microlenses for efficient coupling to elliptical laser beams. *IEEE PHOTONICS TECHNOLOGY LETTERS*, vol. 5, n° 2, 1993, p. 184.
- [30] Edwards (Christopher A.), Presby (Herman M.) et Dragone (Corrado). – Ideal microlenses for laser to fiber coupling. *Journal of lightwave technology*, vol. 11, n° 2, 1993, p. 252.
- [31] Edwards (C. A.) et Presby (H. M.). – Coupling-sensitivity comparison of hemispheric and hyperbolic microlenses. *APPLIED OPTICS*, vol. 32, n° 9, 1993, p. 1573.
- [32] Kuwahara (H.), Sasaki (M.) et Tokoyo (N.). – Efficient coupling from semiconductor lasers into single-mode fibers with tapered hemispherical ends. *APPLIED OPTICS*, vol. 19, n° 15, 1980, p. 2578.

- [33] Tong-ning (Li) et Freude (W.). – Taper coupling of laser diode to singlemode fibre : influence of fibre field shape. *Optics and Laser Technology*, vol. 27, n° 13, 1991, p. 1202.
- [34] Vassallo (C.) et van der keur (J. Michiel). – Ultimate coupling performances for microlensed fibres. *ELECTRONICS LETTERS*, vol. 28, n° 20, 1992, pp. 1913–1915.
- [35] Ghafouri-Shiraz (H.) et Aruga (T.). – Improvement of coupling efficiency between a 0,82 μm wavelength laser diode and a vad single-mode fibre by conical microlenses. *Optics and Laser Technology*, vol. 28, n° 5, 1996, pp. 367–371.
- [36] Keil (R.), Klement (E.), Mathyssek (K.) et Wittmann (J.). – Expermental inves-tigation of the beam spot size radius in single-mode fibre tapers. *ELECTRONICS LETTERS*, vol. 20, n° 15, 1984, p. 621.
- [37] Presby (H. M.) et Edwards (C. A.). – Near 100% efficient fiber micrôlenses. *Electronics Letters*, vol. 28, 1992, p. 582.
- [38] Cohen (L. G.) et Schneider (M. V.). – *Appl. Opt.*, vol. 13, 1974, p. 89.
- [39] Asano (T.), Okumura (T.), Takahashi (Y.), Ghafouri-Shiraz (H.) et Yamada (A.). – Improvement of coupling coefficient between laser diode and single-mode fibre by etching technique. *6th Semiconductor Symposium, Tokyo/Japan*, no19, 1986.
- [40] Ghafouri-Shiraz (H.) et Asano (T.). – Micrôlens for coupling a semiconductor laser to a single-mode fibre. *Optics Letters*, vol. 11, n° 8, 1986, p. 537.
- [41] Ghafouri-Shiraz (H.). – Reduction of coupling loss between lds and chemically-etched smfs. *Semiconductor and Integrated Opto-Electronics (SIDE'88) UWIST, Cardiff, U. K*, 1988.
- [42] Ghafouri-Shiraz (H.). – Experimental investigation on coupling efficiency between semiconductor laser diodes and single-mode fibres by etching technique. *Optical and Quantum Electronics*, vol. 20, n° 6, 1988, p. 493.
- [43] Lee (Kyung S.) et Barnes (Frank S.). – Microlenses on the end of single-mode optical fibers for laser applications. *Applied Optics*, 1985.
- [44] Kato (Daisuke). – Light coupling from a strip-geometry gaas diode laser into an optical fiber with spherical end. *J. Appl. Phys*, vol. 44, 1973, p. 2756.

- [45] Bachelot (R.), Ecoffet (C.), Deloail (D.), Royer (P.) et Lougnot (D. J.). – Integration of micrometer-sized polymer elements at the end of optical fibers by free-radical photopolymerization. *Applied optics*, vol. 40, n° 32, november 2001, pp. 5860–5871.
- [46] Barthelemy, Maneuf et Froehly. – Propagation soliton et autoconfinement de faisceau laser. *Opt. Commun.*, vol. 55, n° 3, 09 1985, p. 201.
- [47] Kewitsch (S.) et Yariv (A.). – Self-focusing and self-trapping of optical beams upon photopolymerisation. *Opt. Lett.*, vol. 21, 1996, p. 24.
- [48] Monro (Tanya M.), de Sterke (C. Martijn) et Poladian (L.). – Topical review catching light in its own trap. *Journal of modern optics*, vol. 48, n° 2, 2001, p. 191.
- [49] Dorkenoo (Kokou), Crégut (Olivier), Mager (Loic), Gillot (Fabrice), Carre (Christiane) et Fort (Alain). – Quasi-solitonic behavior of self-written waveguides created by photopolymerization. *Optics Letters*, vol. 27, n° 20, 2002, p. 1782.
- [50] Milfaut (Laurence). – Fabrication et utilisation de microélément polymère en extrémité de fibre optique. *Stage de DESS*, 2001.
- [51] Saint-Georges (P.), Carré (C.) et Bigué (L.). – Use of a self-processing photopolymerizable material for creating synthetic holograms. *trends in photonics and series*, vol. 87, 2003, p. 249.
- [52] Mager (L.), Gillot (F.), Dorkenoo (K. D.), Fort (A.), Méry (S.) et Carré (C.). – Patterning of photoinduced linear and non linear optical properties in doped photopolymers. *trends in photonics and series*, vol. 87, 2003, p. 213.
- [53] chesneau (Eliane) et Fouassier (J. P.). – Polymerisation induite sous irradiation laser visible. *Angew. Makromol. Chem*, vol. 135, n° 2166.
- [54] Fouassier (J. P.). – Improvement of photopolymer reactivity : a fundamental approach. *Journal de chimie physique*, vol. 80, n° 4, 1983, pp. 339–353.
- [55] Decker (C.) et Moussa (K.). – Radical trapping in photopolymerised acrylic networks. *Journal of Polymer Science : Part A : Polymer Chemistry*, vol. 25, 1987, pp. 739–742.
- [56] Triger (C.). – *Application des photopolymères aux nanotechnologies, nanofabrication en champ proche optique*. – Mulhouse, France, Thèse de PhD, Université de Haute Alsace, 2001.

- [57] Espanet (A.). – *Photopolymérisation par les ondes évanescentes. Application à la stéréolithographie et au stockage optique de l'information.* – Thèse de PhD, ENCMulhouse, 1998.
- [58] Agrawal (Govind P.). – *Nonlinear Fiber Optics.* – Optics and Photonics, 1989.
- [59] Fleck (J. A.), Morris (J. R.) et Feit (M. D.). – *Appl Phys*, vol. 10, n° 129.
- [60] Feit (M. D.) et Fleck (J. A.). – Light propagation in graded-index optical fibers. *Applied optics*, vol. 17, n° 24, decembre 1978, p. 3990.
- [61] Feit (M. D.) et Fleck (J. A.). – Light propagation in graded-index optical fibers. *Applied optics*, vol. 18, 1979, p. 2843.
- [62] Agrawal (G. P.). – *J. Applied phys*, vol. 56, 1984, p. 3100.
- [63] Meissner (P.), Patzak (E.) et Yevick (D.). – *IEEE, J. Quantum Electron QE-20*, 1984, p. 899.
- [64] Agrawal (G. P.). – *J. Lightwave Technol LT-2*, 1984, p. 537.
- [65] Sziklas (E. A.) et Siegman (A. E.). – *Applied optics*, vol. 14, 1975, p. 1874.
- [66] Lax (M.), Agrawal (G. P.), Belic (M.), Coffey (B. J.) et Louisell (W. H.). – *J. Opt. Soc. Am A2*, 1985, p. 732.
- [67] Hermansson (B.), Yevick (D.) et Danielsen (P.). – *IEEE J. Quantum Electron. QE-19*, 1983, p. 1246.
- [68] Thylen (L.), Wright (E. M.), Stegeman (G. I.), Seaton (C. T.) et Moloney (J. V.). – *Opt. Lett*, vol. 11, 1986, p. 739.
- [69] Marburyer (J. H.). – *Prog. Quantum Electron*, vol. 35, n° 4, 1975.
- [70] Streppel (Ulrich), Dannberg (Peter), Wächter (Christoph), Bräuer (Andreas) et Kowarschik (Richard). – Formation of micro-optical structures by self-writing processes in photosensitive polymers. *Applied optics*, vol. 42, n° 18, 2003, pp. 3570–3579.
- [71] Wu (S. D.) et Glytsis (E. N.). – Holographic grating formation in photopolymers : analysis and experimental results based on a nonlocal diffusion model and rigorous coupled-wave analysis.

- [72] Sheridan (John T.) et Lawrence (Justin R.). – Nonlocal-response diffusion model of holographic recording in photopolymer. *J. Opt. Soc. Am. A*, vol. 17, n° 6, 2000, p. 1108.
- [73] J (Crank). – The mathematics of diffusion. *Charendon Press*, 1967.
- [74] Yeh (P.). – *Introduction to photorefractive nonlinear optics*. – New York, Wiley series in pure and applied optics, 1993.
- [75] Wolfersberger (D.), Fressengeas (N.), Maufoy (J.) et Kugel (G.). – *Physical Review E Electron. Lett*, vol. 62, n° 6, 2000, pp. 8700–8704.
- [76] Logan (S. R.). – Spatial inhomogeneity effects in photochemical kinetics. *Journal of Chemical Education*, vol. 67, october 1990, pp. 872–875.