<u>République Algérienne Démocratique et Populaire</u> <u>Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique</u>



<u>Université Abou Bekr Belkaid – Tlemcen</u> <u>Faculté des Sciences</u> <u>Département de Physique</u>



MÉMOIRE

Présenté pour l'Obtenion le Diplôme de:

MAGISTER EN PHYSIQUE

OPTION: PHYSIQUE DES POLYMERES

Sur le thème

SYSTÈMES HOLOGRAPHIQUES À BASE DE MÉLANGES POLYMÈRES CRISTAUX LIQUIDES (H-PDLC)

Par:

Melle BELHADJ Amina

Soutenu le 11/02/2010 devant la commission d'examen:

Mr Toufik BOUCHAOUR Pr. UABB, Tlemcen Président
Mr Abdelkader BERRAYAH M.C. UABB, Tlemcen Examinateur
Mr Abdelhakim BENOSMAN M.C. UABB, Tlemcen Examinateur
Mr Lahcène MECHERNENE Pr. UABB Tlemcen Encadreur

Année Universitaire: 2009 - 2010

Remerciements

En tout premier lieu, Je remercie le bon **Dieu**, tout puissant, de m'avoir donné la force pour survivre, ainsi que l'audace pour dépasser toutes les difficultés.

Le travail présenté dans ce mémoire a été réalisé au laboratoire de physique des polymères du département de physique de la faculté des sciences de l'Université de Tlemcen, sous la direction du monsieur le profésseur Lahcène Méchernène. Ma plus grande gratitude va à mon encadreur, pour sa disponibilité et la confiance qu'il m'a accordée. Je vais profiter pendant longtemps du savoir et savoir-faire dont j'ai pu bénéficier au cours de nombreuses discussions. J'aimerais aussi le remercier pour l'autonomie qu'il m'a accordée, et ses précieux conseils qui m'ont permis de mener à bien ce travail.

J'exprime toute ma reconnaissance à monsieur le profésseur **Toufik Bouchaour** pour avoir bien voulu accepter de présider le jury de ce mémoire.

Que Monsieur le docteur **Abdelkader Berrayah**, maître de conférences à l'université de Tlemcen, trouve ici l'expression de mes vifs remerciements pour avoir bien voulu juger ce travail.

Que Monsieur le docteur **Abdelhakim Benosman**, maître de conférences à l'université de Tlemcen, trouve ici l'expression de mes vifs remerciements pour avoir bien voulu juger ce travail.

I'ovi	orime ma rec	eonnaissan <i>ee</i>	à tous ma	pe nroføssøu	ers et de
n'oubl	ier personne, ui m'ont aidé (mes vifs re	emerciemen	ts s'adresse	nt à tous
ceux q	ui moni aiae	u ta realisati	on de ce mo	ueste memo	ire.

Au nom de Dieu Le Clément et Le Miséricordieux Louange à ALLAH le Tout-puissant



A mes très chers parents et mon trés chers mari

A mes trés chers soeurs

A tous mes oncles, tantes et cousins (es)

A touts (es) mes amis (es)

A tous ceux qui me sont chers

Amina

Table des Matières

Introduction générale:
Chapitre I : Concepts généraux sur les cristaux liquide et matériaux PDLCs.
I.1. Les cristaux liquides:
I.1.1. Introduction:
I.1.2. Organisation structurelle
I.1.3. Les différentes phases d'un cristal liquide :5
I.1.4. Anisotropie diélectrique et biréfringence :9
I.2. Les systèmes PDLCs:
I.2.1.Définition:
I.2.2.Elaboration des matériaux PDLC:14
I.2.3.Ancrage et configuration des gouttelettes de CL:16
I.2.4. Principe de fonctionnement d'une cellule
électro-optique:17
I.2.5.Applications des matériaux PDLCs:19
Chapitre II : Concepts de base sur l'holographie
II.1.Historique de l'holographie21
II.2 .Principe de l'holographie :23
II.3 .Enregistrement d'un hologramme :25
II.4 .Lecture d'un hologramme :26
II.5. Bases physiques et mathématiques:27

Chapitre III: Elaboration et description des Holo-PDLC

III.1. Introduction :		30
III.2 . Description d	u matériau holographique :	32
III.3. Montage holog	graphique :	32
III.4. Principe de fa	brication :	34
III.5. Propriétés d'u	n matériau holographique :	37
III.5.1. Pas du réseau	······	37
III.5.2. Efficacité de l	Diffraction :	39
III.5.3.Effet d'un cha	mp électrique externe:	40
	es de matériaux <i>holo-</i> PDLCs <u>:</u> lu faisceau de lecture :	
—	Efficacité de diffraction par un transmission enregistre en	
IV.1.Introducti:		4
IV. 1. 1. Effet de l'irra	diation :	45
IV. 1. 2. Effet de tene	ur en CL :	45
IV.2.Diffraction par	un réseau : théorie	45
IV.3.Expression thé	orique de l'efficacité de	
diffraction:		49
IV.3.1. Introduction :		49
IV.3.2. Critère d'épai	sseur pour un réseau :	50
IV.3.3.Rendement de	e diffraction d'un réseau épais :	54
Chapitre V:	Résultats et discussions	
V.I. Introduction:		62

V.2. Propriétés physiques du réseau :63
V.3. Etude du comportement de l'efficacité de
diffraction:67
V.3.1. Variation de l'efficacité de diffraction en fonction de l'angle
d'incidence :67
V.3. 2. Effet de la longueur d'onde :69
V.3. 3. Effet du pas du réseau :72
V.3. 4.Effet de la concentration du cristal liquide :73
V.3. 5. Effet de l'épaisseur :76
Conclusion générale:78
Bibliographie:81

Introduction générale

Les matériaux PDLCs sont des systèmes qui se présentent sous forme des films minces caractérisés par un phénomène de diffusion de la lumière dont l'intensité peut être contrôlée par l'application d'un champ électrique externe. Ces systèmes sont élaborés par un procédé de séparation de phases, à partir d'un mélange monomères/cristaux liquides, suite à une polymérisation de ces monomères sous rayonnement UV ou sous bombardement électronique. L'application d'un champ électrique sur le matériau provoque à l'échelle microscopique un alignement des molécules de cristal liquide, ce qui modifie les propriétés optiques de ce matériau.

Le principe de fabrication des systèmes holographiques H-PDLC (pour Holographic Polymer Dispersed Liquid Crystals) repose sur l'irradiation d'un mélange, monomère-cristaux liquides, par deux faisceaux croisés d'un laser qui produit un modèle d'interférence dans tout le volume du matériau dans une région particulièrement espacée (un réseau). Le modèle périodique mène aux régions alternatives de l'intensité d'éclairement, élevée et basse. Cela se traduit par une variation de l'indice de réfraction des domaines de cristal liquide, ce qui modifie la profondeur de modulation de l'hologramme et donc son efficacité de diffraction.

Ce mémoire est organisé en cinq parties:

Le chapitre (I) est consacré aux définitions et concepts généraux de base sur les cristaux liquides en général et les systèmes PDLC en particulier. Les méthodes d'élaboration et les propriétés électrooptiques des PDLC, mélange de polymère et de cristaux liquides, sont décrites de façon claire et détaillée.

Le chapitre(II) donne un rappel bref sur les concepts de base sur l'holographie et leur historique.L 'accent est mis sur le principe et montage du stockage holographique.

Dans le chapitre(III), on s'intéresse aux élaborations et à la description des Holo-PDLC.

Dans le Chapitre (IV), on présente une théorie détaillée sur l'étude de l'efficacité de diffraction par un réseau en transmission enregistre en H – PDLC. L'efficacité de diffraction est obtenue en fonction de quelques paramètres cruciaux du réseau H-PDLC, comme le pas du réseau, son épaisseur, la longueur d'onde ...

Les réseaux H-PDLC sont caractérisés principalement par l'efficacité de diffraction, la tension appliquée, la diffusion de la lumière et la modulation de l'indice de réfraction. Ces grandeurs sont grandement contrôlés par certains facteurs morphologiques regroupant la taille, la forme et la densité des domaines de cristal liquide, le pas de réseau, la rugosité à l'interface, l'intensité de l'irradiation et la concentration du photoamorceur.

Au cours du Chapitre (V), on présente les propriétés physiques du réseau et l'étude du comportement de l'efficacité de diffraction en fonction de quelques paramètres de réseau tel que l'angle d'incidence, la longueur d'onde de la lumière incidente, le pas du réseau, la concentration du cristal liquide et l'épaisseur du réseau.

I.1. Les cristaux liquides:

I.1.1. Introduction:

Découverts il y a plus d'un siècle, les cristaux liquides ont présenté pendant longtemps un intérêt purement académique. Mais à la suite de longs travaux et de la mise en évidence de nouveaux effets d'une importance technologique considérable, l'étude de ces matériaux connait de puis les années soixante dix, un développement rapide.

En effet, le fort développement des produits mobiles issus des nouvelles technologies est fortement lié à la qualité et au cout des afficheurs à cristaux liquides [1] (pour Liquide Crystal Display).

On pense que la découverte des cristaux liquides s'est faite il y a 150 ans mais la signification de cette découverte ne fut révélée que 100 ans plus tard.

En 1877, Otto Lehmann utilisa un microscope à lumière polarisée avec un système à température échelonnée pour observer les phases de transition de certaines substances et trouva qu'une d'elles passait par une phase liquide trouble optiquement anisotrope pendent la transition liquide/solide. Il remarqua aussi que cette phase trouble possédait simultanément des propriétés d'un liquide (fluidité, formation des gouttelettes, coalescence des gouttes par contact,...etc.) et des propriétés d'un cristal solide .Mais Lehmann pensa que ceci était une simple phase d'imperfection.

Le premier CL synthétique, l'azoxyanisol, fut produit par Gatterman et Ritschke, à la fin du 19ème siècle. Depuis de nombreuses substances peuvent être synthétisées et il est possible de produire des cristaux liquides avec certaines propriétés définies.

P.Chatelain a développé une méthode permettant d'aligner les molécules dans une direction par rapport aux parois qui entourent le cristal liquide.

En 1922,G.Friedel [2]définit clairement les trois grandes catégories de CL et expliqua l'effet du champ électrique sur l'orientation des molécules.

Entre les deux guerres, Oseen et Zocher développèrent les bases mathématiques pour l'étude des cristaux liquides.

En 1963, Williams découvrit que la lumière ne passait pas de la même manière à travers un CL lorsque 'il était stimulé par une charge électrique.

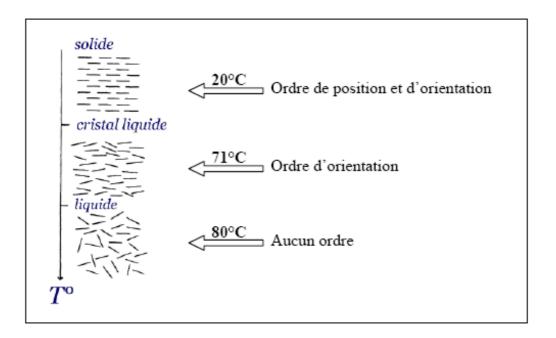
En 1973, grâce au biphényl, un matériau stable est découvert par un chercheur de l'université de Hull en grande Bretagne à la suite de laquelle Sharp introduit sur le marché la première calculatrice à technologie LCD.

I.1.2. Organisation structurelle:

La matière se présente sous trois états différents : solide, liquide ou gazeux.

- Les solides sont caractérisés par une dureté et un arrangement moléculaire ordonné. Certains solides ont même une structure cristalline dont le pas de réseau est constant.
- Les liquides quant à eux n'ont pas d'arrangement ordonné. Leur molécules sont placées aléatoirement les unes à coté des autres dans un désordre statistique.

Ainsi une phase cristal-liquide, appelée phase mésomorphe ou mésophase, est caractérisée par un certain ordre d'orientation des molécules et un désordre de position au moins partiel (Figure I.1).



Figure(I.1) : Le Cristal liquide est une phase intermédiaire entre les deux phases, solide et liquide

Les matériaux communément appelés « cristaux liquides » sont des composés organiques complexes qui présentent l'aspect et la faible viscosité d'un liquide et en même temps les anisotropies physiques liés aux solides.

En effet, les cristaux liquides sont arrangements cristallins possédant donc les propriétés spécifiques du cristal mais aussi d'autres caractéristiques propres à la phase CL qui n'existe que dans certains cristaux [3].

I.1.3. Les différentes phases d'un Cristal liquide :

Si on utilise l'orientation individuelle d'une molécule par rapport à ses voisines, on peut classer les CLs en trois grandes familles distinctes. Il existe plusieurs phases de cristal liquide dont les principales et les plus utilisées sont les phases nématiques (parallèle et torsadées), smectique (A et C) et cholestérique [4,5].

Les principales phases cristal liquide existantes sont les suivantes :

▶ La phase nématique :

Les molécules qui possèdent des forces intermoléculaires et restent parallèles par rapport aux autres, forment le cristal nématique. La phase nématique est fluide, mais les molécules s'aliènent parallèlement, même si elles se déplacent aléatoirement.

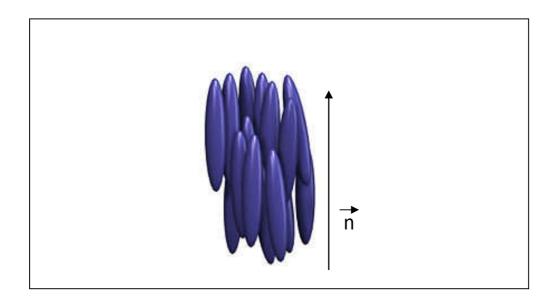


Figure (I.2) : Illustration de la phase nématique.

On a donc un ordre rotationnel, mais pas positionnel. Le matériau est biréfringent. La figure 1.2 représente schématiquement les nématique ou \overrightarrow{n} est le directeur moyen d'orientation.

▶ La phase cholestérique<u>:</u>

La phase cholestérique est encore appelée phase nématique chirale (les molécules constituant le cristal liquide sont chirales). Localement, les molécules tendent à s'aligner selon un directeur n mais ce directeur varie dans l'espace de manière hélicoidale (figure I.3).

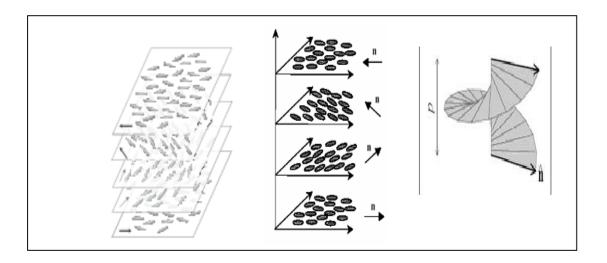


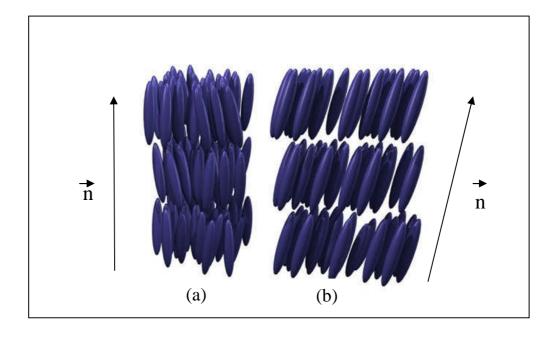
Figure (I.3): Illustration de la phase cholestérique.

Les plans contenant les molécules n'ont aucune réalité physique et sont seulement destinés à aider la représentation.

▶ La phase smectique :

Ces molécules sont proches des nématiques mais la différence majeure réside dans l'arrangement spatial, elles s'organisent en couches parallèles successives dotées d'un espace inter-couche.De ce fait, ces molécules possèdent en plus d'un ordre de direction, un ordre de position. On peut encore scinder cette famille car il existe plusieurs types de smectiques.

Comme illustre la figure (I.4.a) on les appelle « smectique A » quand le grand axe $\vec{\Pi}$ des molécules est parallèle à la normale aux couches. Par ailleurs, on parle de « smectique B » (figure I.4.b) si le grand axe $\vec{\Pi}$ des molécules est incliné par rapport à la normale aux couches.



Figure(I.4): Illustration de la phase smectique : a) smectique A, b) smectique B.

Les différentes phases cristal présentées ci-dessus sont stables mais pour une plage de température donnée. De nombreuses espèces n'ont qu'une seule phase cristal liquide, mais il n'est pas rare qu'une même substance présente plusieurs phases dépendantes de la température.

Un exemple des différentes transitions de phase pour le cristal liquide 8CB est donné ci-dessous :

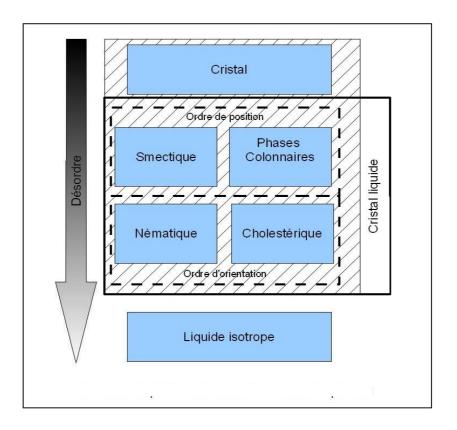


Figure (I.5) : Schéma simplifié de classification des mésophases

I. 1. 4. Anisotropie diélectrique et biréfringence :

Une des caractéristiques des CLs est leur facilité à s'orienter en raison de leur fluidité et de leur structure ordonnée. Par exemple, l'application d'un champ électrique sur un CL provoque l'induction d'une orientation des molécules CL à l'échelle macroscopique en raison de leurs propriétés électriques [6].

Lorsque les molécules ayant un moment dipolaire permanent sont exposées à un champ électrique, ces dipôles peuvent s'aligner le long de la direction du champ électrique. En ce qui concerne les molécules qui ne possèdent pas de dipôle permanent, l'application d'un champ électrique provoque un moment dipolaire induit qui contribue à la polarisation de la molécule.

L'orientation résultante face à un champ électrique appliqué n'est pas pour effet majeur chez les solides et liquides, mais peut être beaucoup plus importante pour les CL. Par exemple, si la molécule CL possède un moment dipolaire permanent élevé, parallèle au grand axe de la molécule, l'anisotropie de la constante diélectrique du CL est large. Si les molécules du CL sont hautement polarisables, leur permittivité relative (constante diélectrique) est élevée et cela leur confère la propriété de s'aligner dans un champ électrique.

Chaque CL possède une composante de la permittivité le long de son directeur, ϵ //, et une autre composante perpendiculaire au directeur, ϵ \to . On définit donc «l'anisotropie diélectrique» comme étant la différence des deux composantes selon l'équation (I. 1):

$$\Delta \varepsilon = \varepsilon_{//} - \varepsilon_{\perp} \tag{I.1}$$

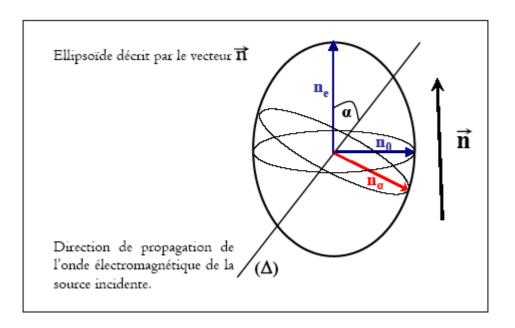
Elle peut être soit positive ou négative tout dépend du moment dipolaire permanant et de la polarisabilité de la molécule. Une valeur d'anisotropie diélectrique positive signifie que l'orientation du CL se fera parallèle à la direction du champ électrique appliqué tandis qu'une valeur négative indique une orientation perpendiculaire [7.8].

- \bullet Si $\Delta\epsilon$ > 0 les molécules s'orientent parallèlement au champ électrique.
- ullet Si $\Delta\epsilon$ < 0 les molécules s'orientent perpendiculairement au champ électrique.

On définit «la biréfringence»[9.10] par l'équation (I. 2):

$$\Delta n = ne-no$$
 (I.2)

où n_e et n_o sont les indices de réfraction extraordinaire et ordinaire du cristal liquide définis sur la figure (I.6).



Figure(I.6) : Modèle de l'indice de réfraction moyen n d'une gouttelette de cristaux liquides.

L'indice de réfraction extraordinaire, n_e, est défini pour la valeur mesurée dans la direction de l'axe de symétrie de la gouttelette et l'indice de réfraction ordinaire no, mesuré dans toutes les directions perpendiculaires à l'axe de symétrie.

Habituellement pour les CLs nématiques, l'indice de réfraction extraordinaire est plus élevé que celui ordinaire (Δn est positif).

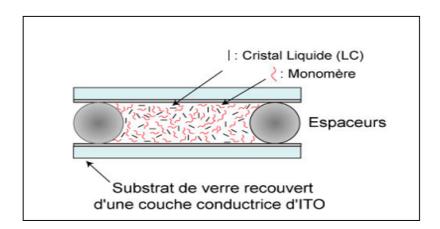
L'indice de réfraction d'une gouttelette de CL nématique suivant un angle **9** par rapport à une direction moyenne est donné par l'équation (I. 3) [11].

$$n_{\theta} = \frac{n_{e} \times n_{o}}{\left(n_{e}^{2} \sin^{2} \theta + n_{o}^{2} \cos^{2} \theta\right)^{1/2}}$$
(I.3)

I.2. Les systèmes PDLC:

I.2.1. Définition :

Les matériaux composites polymère-cristal liquide (PDLC pour "Polymer Dispersed Liquid Crystal") sont formés par des domaines de cristal liquide (nommés gouttelettes) de faible masse moléculaire dispersées dans une matrice de polymère, et se présentent sous forme de films minces de quelques dizaines de microns d'épaisseur.



Figure(I.7) : Structure d'une cellule à PDLC

Ces matériaux présentent un intérêt considérable grâce à leurs propriétés électro-optiques. Ils peuvent en effet commuter entre un état opaque fortement diffusif (état off) et un état transparent (état on) après application d'un champ électrique [12].

Trois régimes sont distingués qui se différencient tant par leur morphologie microscopique que par leurs effets électro-optiques:

- PDLC diffusant,
- PDLC retardant, ou déphasant, ou nano-PDLC,
- PDLC diffractant, H-PDLC ou holo-PDLC,
- ❖ On parle des nano-PDLC si la taille des gouttelettes est très petite devant les longueurs d'onde utilisées.

Dans ce régime, le matériau composite n'est plus diffusant: il se comporte comme un milieu optique isotrope (quasi-transparent) et il permet d'obtenir une variation isotrope de l'indice de réfraction insensible à la polarisation et commandée par l'action d'un champ électrique.

❖ On parle des PDLC diffusant quand il s'agit d'une taille des gouttelettes de l'ordre de la longueur d'onde de la lumière d'où un effet de diffusion de la lumière par les gouttelettes. Cette diffusion diminue avec l'application d'un champ électrique et rend le matériau PDLC transparent.

Ce travail est illustré dans l'étude de deux régimes, les PDLCs diffusant et ceux holographiques. Nous allons donner alors les méthodes de préparations des deux régimes.

Les premiers composites polymère/cristal liquide, constitués de micropores imprégnés de CL, ont été développés par Craighead en 1982 [13]. L'expansion de ces composites a été importante en 1985, ou F.Fergason[14] a développé une nouvelle méthode de fabrication basée sur la microencapsulation appelé NCAP(Nematic Curvilinear Ligned Phase).

C'est seulement en 1988 que J.L W est a proposé une autre méthode basée sur la séparation de phase [15]. Ces nouveaux composites sont appelés communément PDLC. Cette dernière méthode de fabrication offre

actuellement les meilleurs résultats. Elle est la plus utilisée aujourd'hui et a été retenue pour notre étude.

I.2.2. Elaboration des matériaux PDLC:

La préparation des PDLC peut s'effectuer de deux manières : par encapsulation ou par séparation de phases.

- L'encapsulation : appelée émulsion, au mérite d'être la première technique à avoir été utilisée pour fabriquer des PDLC. Elle consiste à mélanger un cristal liquide avec un polymère dissous dans l'eau. Puis, en laissant l'eau s'évaporer, les gouttelettes de cristal liquide restent prises dans la matrice de polymère dans laquelle elles sont insolubles.
- ▶ La séparation de phase : Il existe trois principales méthodes de préparation des films PDLC, aboutissant toutes à une séparation de phase entre les cristaux liquides et la matrice polymère.

C'est la méthode la plus utilisée qui peut se faire de trois manières différentes [16].

▶ P.I.P.S (Polymerization Induced Phase Separation) :

Cette méthode consiste à induire la séparation de phases par polymérisation. On doit d'abord préparer une solution homogène entre le cristal liquide et un monomère, puis on initie une réaction de polymérisation.

Dans le cas d'une réticulation du prépolymère sous rayonnement U.V, on ajoute un photo-amorceur. Au fur et à mesure que la réaction avance, les molécules de cristaux liquides commencent à se dissocier de la matrice de polymère en formation. Ainsi, les molécules commencent à se rassembler pour former des gouttelettes de cristaux liquides.

La taille des gouttelettes est fonction des caractéristiques physicochimiques des constituants du mélange, de la vitesse de polymérisation et de la solubilité des cristaux liquides dans le polymère [17,18].

▶T.I.P.S (Thermally Induced Phase Separation):

Cette méthode est utilisée lorsque le mélange polymère / cristal liquide forme une phase unique à haute température. En baissant la température plus ou moins rapidement, on aboutit à une séparation de phase caractérisée par l'apparition de domaines riches en cristal liquide dispersés dans la matrice polymère. Un refroidissement rapide donne lieu à des gouttelettes de petites tailles. La taille des gouttelettes dépend donc la aussi de la vitesse de refroidissement [17,18].

▶S.I.P.S (Solvant Induced Phase Separation):

Cette méthode est utilisée dans le cas de polymères dont la température de décomposition est inférieure à la température de fusion. Le mélange polymère - cristal liquide est obtenu à l'aide d'un solvant approprié.

La séparation de phases se produit lors de l'évaporation du solvant. De même, la taille des gouttelettes dépend de la vitesse d'évaporation [17,18].

I.2.3. Ancrage et configuration des gouttelettes de CL:

La nature de la matrice polymère influence non seulement la taille des gouttes de cristal liquide, mais également l'organisation interne de la goutte.

Cette dernière peut être observée et étudiée à l'aide de la microscopie polarisante [19], par diffusion de la lumière [20], micro-spectroscopie

infrarouge[21] ou bien par résonance magnétique nucléaire[22] sur de grosses gouttes nématiques sphériques.

A l'échelle de la goutte, les molécules de CL s'absorbent avec orientation à l'interface avec la matrice de polymère qui exerce des forces de rappel. C'est ce qu'on appelle l'ancrage.

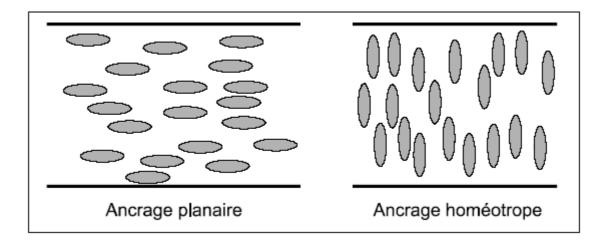


Figure (I.8) : Types d'ancrage à l'interface entre le polymère et les cristaux liquides.

Deux types d'ancrage représentés sur la figure sont définis:

- ❖ <u>L'ancrage planaire</u>: les molécules à l'interface sont parallèles à la surface de la goutte.
- ❖ <u>L'ancrage homéotrope</u>: où l'axe des molécules de CL ancrées est perpendiculaire à la surface de la goutte.

I. 2. 4. Principe de fonctionnement d'une cellule électrooptique :

Les composites polymères/CL se présentent sous la forme de gouttelettes de CL dispersées dans une matrice polymère (matériau isotrope) ayant un indice de réfraction n_m . Le CL étant un milieu biréfringent, la gouttelette a deux indices de réfraction principaux :

Chapitre I:

ne: L'indice extraordinaire.

no: L'indice ordinaire.

La direction principale d'une gouttelette est donnée par l'orientation des molécules de CL.

Généralement, les gouttelettes de CL ont une taille de l'ordre du micron. Cela dépasse largement la longueur d'onde de la lumière utilisée et c'est pour cette raison que nous sommes en mesure d'assister aux différents phénomènes optiques et électro-optiques dans les films PDLC.

Considérons une seule gouttelette CL, si la lumière incidente se propage avec son champ électrique parallèle à l'axe de symétrie de la gouttelette, elle va ressentir l'indice de réfraction n_e . Par contre, si un champ électrique est perpendiculaire à l'axe de symétrie, c'est n_o qui est effectif.

Sans la présence d'un champ électrique «OFF-state», il y a une forte diffusion de la lumière et le film mince présente un aspect opaque.

La forte diffusion de la lumière provient du fait que celle-ci, en traversant le film, ressent que la valeur moyenne des indices de réfraction de n_e et n_o .

La valeur moyenne, appelée neff, est donnée selon l'équation (I. 4):

$$n_{eff} = \left(n_e + 2n_o\right)/3\tag{I.4}$$

et correspond à l'indice de réfraction ressenti par la lumière traversant un film où l'orientation des directeurs des gouttelettes est aléatoire.

Comme $n_{eff} \neq n_p$, et avec les axes de symétrie des gouttelettes orientés dans toutes les directions, la lumière est fortement diffusée.

Par contre, lorsque le montage est soumis à un champ électrique «ONstate», celui-ci a pour effet d'aligner le champ de directeurs (toutes les molécules CL) parallèlement à la direction du champ appliqué(Figure I.9).

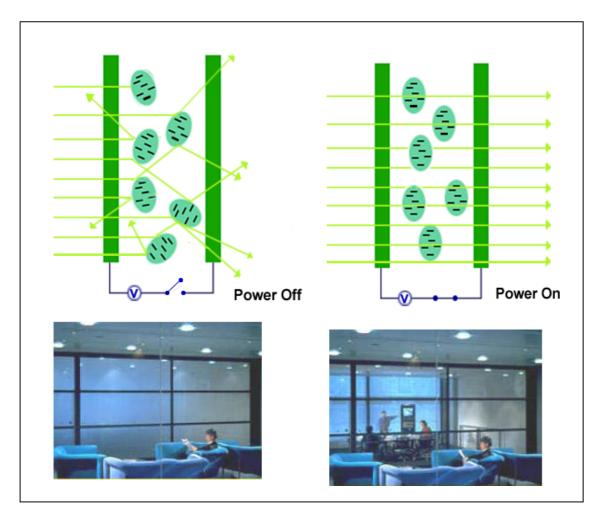


Figure (I.9) : Schéma du fonctionnement d'un système PDLC.

Pour une lumière se propageant face à la normale du plan du film, celle-ci traverse l'échantillon et ne reste que l'indice de réfraction no (perpendiculaire à l'axe de symétrie de la gouttelette).

La très faible différence d'indices entre n_0 et n_p ($n_0 - n_p \sim 0$) provoque une transmission de la lumière et l'aspect du film devient transparent lors de la réorientation des molécules CL sous l'application du champ électrique.

Généralement, le contraste entre l'état de forte diffusion et l'état de transmission augmente si l'écart entre n_{eff} et n_{p} est plus grand et celui entre n_{o} et n_{p} est plus petit.

Ces propriétés électro-optiques sont à la base des applications des systèmes de PDLC pour les Affichages aux Cristaux Liquides (ALC), pour les fenêtres «intelligentes» et pour certains exemples de vitres d'automobile (pare-soleil) [23].

I.2.5. Applications des matériaux PDLCs:

Les matériaux PDLCs présentent un intérêt considérable pour leurs nombreuses applications électrooptiques comme la visualisation, les fenêtres à opacité variable et les valves optiques.

Ils existent d'autres applications potentielles telles que les filtres optiques, [24], les capteurs optiques, l'holographie et le stockage optique qui peuvent être réalisés dans un film à nano-gouttes.

Les deux applications des composites polymère/cristal liquide, à microgouttelettes, les plus recherchées sont la visualisation et les vitrages à opacité contrôlée.

I.2.5.a. Visualisation:

Dans la réalisation des écrans de visualisation à base de PDLC deux procédés optiques entrent en jeu : le procédé électro-optique diffusif et la modulation de l'absorption par un colorant dichroïque incorporé en faible pourcentage dans le film permettant d'avoir une visualisation en couleur.

Notons aussi que ces matériaux composites s'adaptent aisément à la technologie des matrices actives grâces à leurs faibles tensions de commande et leurs temps de réponse compatibles avec la vidéo.

I.2.5.b. Vitrage à opacité variable :

La seconde grande application des PDLCs est la fabrication de vitrages à opacité contrôlable électriquement. En fonction de l'utilisation souhaitée on peut utiliser le mode normal (stores extérieurs ou partition de bureaux) ou le mode inverse (pare-brise d'automobile par exemple).

Les contraintes électro-optiques sont différentes de celles imposées par la visualisation : la tension seuil et les temps de réponse ont peu d'importance alors que l'angle de vue, la simplicité de la mise en œuvre sur de très grandes surfaces et le coût des matériaux sont cruciaux.

II.1. Historique de l'holographie:



L'holographie a débuté dès **1891** avec *Gabriel Lippmann*, physicien à la Sorbonne, qui élabora la photographie interférentielle. Ses travaux furent récompensés par le prix Nobel

de physique en 1908. Entre 1910 et 1920, des découvertes, celles d' *Einstein notamment* , laissèrent à penser que stimuler des atomes provoquerait l'émission de radiations.



Mais ce fut, en **1947** que le principe de l'hologramme fut réellement introduit par le professeur britannique/hongrois *Dennis Gabor*, qui était alors à l'Imperial College of Science and Technology de l'université de Londres. Il essayait de trouver une manière d'améliorer le pouvoir séparateur du

microscope électronique en réduisant l'aberration de sphéricité des objectifs électromagnétiques. Pour plusieurs raisons, le but premier de Gabor ne fut pas atteint, mais il remarqua pour la première fois que si le spectre de diffraction d'un objet et l'information sur les phases pouvaient être enregistrés, l'image d'un objet pouvait être reconstruite par une illumination cohérente du spectre de diffraction enregistré. Dennis Gabor donna le nom de "hologramme" pour sa nouvelle technique, des mots grecs "holos", qui veut dire "entier", et "gramma", qui signifie "message". Le développement de cette technique a été freiné à l'époque car les sources lumineuses disponibles n'étaient pas vraiment cohérentes.



En **1958**, le Russe *Youri Denisyuk* échafauda le principe d'un hologramme visible en lumière blanche mais il fallut attendre **1960** et l'arrivée du *LASER* (*Light*

Amplification by Stimulated Emission of Radiation soit en français Lumière Amplifiée par Stimulation d'Emission de Radiation) mis au point par l'Américain **Théodore Maiman**, source de lumière dite cohérente, pour pouvoir produire les premiers hologrammes.



▶ En **1960**, l'Américain *Theodore Maiman* mit au point le premier laser pulsé au rubis, qui contrairement aux lasers continus que l'on utilise en holographie, émettent un pulse d'énergie très élevée qui ne dure que quelques nanosecondes.

Ceci permet de "geler" le mouvement et permet donc de produire des hologrammes d'événements à haute-vitesse.



En 1962, *Emmeth Leith* et *Juris Upatnieks* de l'université du Michigan réalisèrent, grâce à leurs travaux de recherches sur le radar, que l'holographie pourrait être utilisée comme média de visualisation en trois dimensions. Ils lurent

en 1962 le rapport de Gabor et décidèrent "en toute curiosité" de recréer la technique de Gabor en utilisant un laser et une géométrie "hors-axe" qu'ils avaient développée pour le radar. Les résultats obtenus furent concluants : ils créèrent le premier hologramme de transmission d'un objet tridimensionnel (un train et un oiseau).

- ▶ Toujours en **1962**, *Dr Yuri N.Denisyuk* de l'Union Soviétique combina l'holographie avec les travaux de photographie en couleur naturelle du gagnant du prix Nobel en 1908 Gabriel Lippmann. Les travaux de Denisyuk débouchèrent en particulier sur la création de l'holographie de réflexion qui permet notamment de voir les hologrammes en lumière blanche.
- ▶ Grâce aux découvertes de Maiman en 1960, le premier hologramme d'une personne put être réalisé en 1967, permettant dès lors une application spécialisée de l'holographie : les portraits holographiques pulsés.
- L'année **1968** fut une des années marquantes de l'histoire de l'holographie. En effet, le docteur *Stephen A.Benton* inventa les hologrammes de transmission visibles en lumière blanche pendant ses travaux de recherche sur

la télévision holographique pour les Laboratoires de Recherche de Polaroid. Ce type d'hologramme pouvait être vu en lumière blanche normale, ils créèrent des images de type "arc-en-ciel" utilisant les sept couleurs comprises dans la lumière blanche.



- ▶ En **1972**, *Lloyd Cross* développa l'hologramme intégral en combinant l'hologramme de transmission visible en lumière blanche avec la cinématographie conventionnelle
- pour produire des images en trois dimensions avec mouvement.
- ▶ En mars **1980** s'ouvrit à Paris, plateau Beaubourg, un musée de l'holographie, ouverture précédée de peu par le Museum of Holography de New York en 1976.
 - Le magazine *National Geographic* fut le premier à utiliser un hologramme sur sa couverture. La publication de mars 1984 a transporté ainsi près de 11 millions d'hologrammes à travers le monde. Le même magazine réitéra l'expérience en novembre 1985 pour la couverture de son numéro "The Search for Early Man".

II.2 .Principe de l'holographie :

L'holographie du visible est un procédé de photographie en trois dimensions utilisant les propriétés de la lumière cohérente issue des lasers. Le mot holographie vient du grec holos « en entier » et graphein « écrire ». Holographie signifie donc « tout représenter ».

Le principe de l'holographie a été découvert par Dennis Gabor en 1948 alors qu'il travaillait à l'amélioration de microscopes électroniques dans la compagnie Thomson-Houston à Rugby en Angleterre. Une source cohérente est utilisée pour interférer avec le rayonnement diffracté par un « objet ».

Cette interférence est soit enregistrée pour donner un hologramme, soit modifiée par une lentille qui en donnant une transformée de Fourier forme une « image 3D » de l'objet.

On produit un hologramme en éclairant un objet par une source de lumière cohérente (laser) et en enregistrant sur une surface sensible (par exemple, une plaque photographique) les franges d'interférences obtenues en combinant l'onde émise par la source laser (onde de référence) et l'onde réfléchie par l'objet.

Lors de la « restitution » de l'image holographique, l'hologramme est éclairé par un laser (voire par une lumière non cohérente) et il agit alors comme un réseau de diffraction, pour former une image en relief de l'objet initial.

Un avantage de cette technique est que chaque morceau d'hologramme peut restituer la même image que l'hologramme entier vu sous un certain angle, netteté mise à part, même si l'on a cassé la plaque.

Au lieu d'être produit à partir d'un objet réel, un hologramme peut être aussi calculé par un ordinateur à partir d'une image de synthèse en 3D.

Il a fallu attendre la mise au point des lasers dans les années soixante pour que son application avec des ondes optiques soit menée, parallèlement aux États-Unis et en Union soviétique.

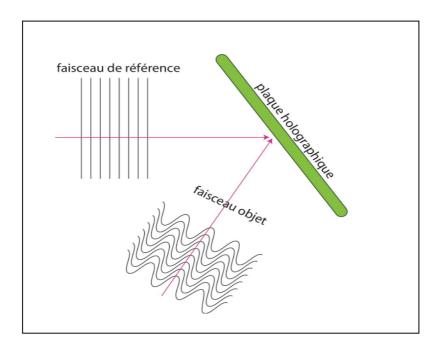


Figure (II.1) : Principe et montage du stockage holographique

II.3 .Enregistrement d'un hologramme :

Pour enregistrer un hologramme, il faut parvenir à coder sur un support l'amplitude et la phase de la lumière issue de l'objet considéré.

Pour cela, on fait interférer deux faisceaux cohérents sur une plaque photographique. Le premier faisceau, appelé onde de référence, est envoyé directement sur la plaque. Le second, appelé onde objet, est envoyé sur l'objet à photographier, qui diffuse cette lumière en direction de la plaque photographique.

La figure d'interférences ainsi formée contient toutes les informations concernant l'amplitude et la phase de l'onde objet, c'est-à-dire la forme et la position de l'objet dans l'espace.

Puisqu'il fait intervenir un phénomène d'interférences, l'enregistrement holographique n'est possible que si la lumière utilisée est cohérente, c'est-à-dire : monochromatique (cohérence temporelle). La seule source de lumière qui répond à ces exigences est le laser.

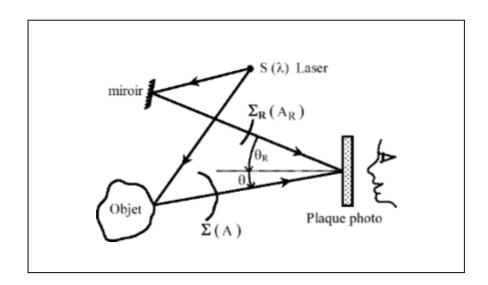


Figure (II.2) : Enregistrement d'un hologramme

II.4 .Lecture d'un hologramme :

Après développement de la plaque photographique, on éclaire celle-ci avec l'onde de référence. En pratique il peut s'agir du laser utilisé lors de l'enregistrement, éclairant la plaque avec le même angle d'incidence.

L'onde restituée par la plaque est alors une onde identique à l'onde objet, avec la même amplitude et la même phase que lors de l'enregistrement. En regardant un hologramme, nous avons vraiment l'impression que l'objet se situe devant nous.

Cependant les couleurs ne sont généralement pas restituées, à cause de l'utilisation d'une source laser monochromatique.

Certains hologrammes peuvent aussi être regardés avec une lumière non cohérente: la profondeur de l'image bien restituée est d'autant plus grande que cette lumière incidente est plus directive et plus monochromatique. Des hologrammes pas trop profonds sont ainsi très convenablement restitués quand ils sont directement exposés à la lumière du Soleil, directive seulement à un demi-degré près et pas du tout monochromatique.

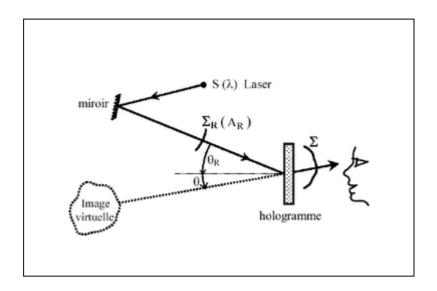


Figure (II.3): Lecture d'un hologramme

II.5. Bases physiques et mathématiques :

La base de l'holographie est donc le principe d'interférences. On peut visualiser ce phénomène lumineux similairement aux ondes mécaniques : l'interférence entre deux ondes peut se produire à la surface d'un lac lorsqu'on fait tomber deux cailloux dans l'eau à une certaine distance l'un de l'autre.

Les ondes produites par les deux objets interféreront lorsqu'elles se rencontrent : à certains endroits, les vagues seront plus hautes, tandis qu'à d'autres, elles seront quasiment inexistantes.

Il y a interférence lors de la superposition de deux ondes sans simple

addition des énergies, mais qui dépend également des phases respectives de ces ondes, plus précisément de leur différence de phase.

L'intensité résultant d'interférences à deux ondes I1 et I2 est telle que :

$$I = I_1 + I_2 + 2\sqrt{I_1 I_2} \cdot \cos(\varphi - \phi)$$
 (II.1)

Les interférences sont constructives si les deux ondes sont en phases (déphasage nul) en un point donné de l'espace : le cosinus vaut 1 et les intensités s'ajoutent.

Les interférences sont destructives si les deux ondes sont en opposition de phase (déphasage de Pi, c'est à dire que l'intensité maximum d'une onde se superpose au minimum de l'autre onde), le cosinus vaut -1 et les intensités se soustraient. Dans ce cas, si les intensités sont égales, l'intensité résultante est nulle.

La démonstration de la relation est peu compliquée en utilisant les notations complexes. En notant l'onde objet et onde de référence

$$a = ae^{-i\phi}$$
 et $A = Ae^{-i\varphi}$; on obtient:

$$I = \left| a + A \right|^2$$

$$I = (a+A).\overline{(a+A)}$$

$$I = \left(ae^{-i\phi} + Ae^{-i\varphi}\right)\left(ae^{i\phi} + Ae^{i\varphi}\right)$$

$$I = a^{2}e^{-i\phi}e^{i\phi} + A^{2}e^{-i\varphi}e^{i\varphi} + aAe^{-i\phi}e^{i\varphi} + aAe^{i\phi}e^{-i\varphi}$$

$$I = a^2 + A^2 + aA\left(e^{i(\varphi - \phi)} + e^{i(\phi - \varphi)}\right)$$

$$I = a^2 + A^2 + aA(\cos(\varphi - \phi) + i.\sin(\varphi - \phi) + \cos(\phi - \varphi) + i.\sin(\phi - \varphi))$$

$$I = a^2 + A^2 + aA(2\cos(\varphi - \phi))$$

$$I = a^2 + A^2 + 2aA\cos(\varphi - \phi)$$

D'où le résultat en repassant aux intensités.

Pour obtenir des interférences, les sources doivent être cohérentes, c'est à dire que tous les rayons lumineux doivent avoir la même amplitude (donc une lumière monochromatique) et la même phase (être parfaitement synchronisés). Seul le laser satisfait parfaitement à toutes ces exigences, son utilisation est donc primordiale.

En optique deux sources lumineuses indépendantes ne sont jamais cohérentes. C'est pour cela que pour observer des franges d'interférences, on utilise deus sources secondaires obtenues à partir d'une source unique de petite dimension (à l'aide d'un miroir semi-réfléchissant par exemple).

On peut distinguer deux phases en holographie:

- la phase d'enregistrement
- la phase de reconstruction image réelle / virtuelle

III.1. Introduction:

Les matériaux composites polymère-cristal liquide (PDLC pour Polymer-Dispersed-Loqiod-Crystals) se présentent sous la forme de films minces formés d'une matrice de polymère plus ou moins flexible incluant des domaines de cristal liquide appelés gouttelettes.

Ces matériaux sont élaborés par différentes méthodes dont la plus utilisée est la méthode PIPS (Polymerization Induced Phase Separation). Ce procédé consiste à polymériser un mélange initialement homogène de monomères et de cristal liquide grâce à une exposition à la lumière Ultra Violette (UV) en présence d'une faible quantité d'un photoamorceur. Les longueurs d'ondes utilisées se rangent en général entre 300 nm et 380 nm.

La croissance des chaînes de polymères va entraîner une séparation de phases entre les grosses molécules de polymères qui commencent à former un réseau réticulé et les petites molécules de cristal liquide qui se rassemblent pour former des domaines nématiques. La formation de ces domaines appelés gouttelettes dépend essentiellement de la composition du mélange et de la cinétique de séparation de phases.

Ces matériaux présentent un grand intert grâce à leurs nombreuses et importantes fonctionnalités électrooptiques qu'on peut obtenir par l'application d'un champ électrique qui peut modifier la structure du matériau PDLC en réorientant les molécules de cristal liquide contenues à l'intérieur des gouttelettes. Ces systèmes, contrairement aux dispositifs d'affichage à cristaux liquides purs, ne nécessitent pas l'utilisation des polariseurs. Les propriétés électrooptiques de ces matériaux ont pour origine une modulation (en amplitude et en phase) de la lumière transmise.

Le matériau élaboré est généralement inséré dans une cellule entre deux substrats recouverts intérieurement d'une mince couche conductrice transparente d'ITO (Indium Tin Oxyde). L'épaisseur de la cellule peut être contrôlée par des espaceurs au moyen de microbilles calibrées insérées entre les substrats.

La structure (taille et forme et configuration des domaines de cristal liquide) du matériau PDLC obtenu dépend des conditions d'élaboration notamment de la composition du mélange polymère/cristal liquide et de la valeur de l'éclairement de la source UV nécessaire à la polymérisation. Le film PDLC obtenu peut, ainsi, présenter plusieurs tailles de gouttelettes, ce qui peut donner lieu à des effets électrooptiques prédominants selon la valeur du rapport taille de gouttelettes/longueur d'onde utilisée.

On peut distinguer trois régimes caractérisés aussi bien par la morphologie microscopique des domaines de cristal liquide dispersés dans la matrice polymère que par leurs effets électrooptiques.

- Lorsque la taille des gouttelettes du cristal liquide est supérieure ou au moins de l'ordre de la longueur d'onde, le matériau PDLC est essentiellement diffusant. L'intensité de la lumière diffusée par le film peut être modulée par l'application d'un champ électrique externe. Outre les afficheurs, ces matériaux à caractère diffusant trouve des applications dans les fenêtres à opacité variable, les atténuateurs optiques variables, les modulateurs optiques spatiaux destinés au traitement optique de l'information...
- → Lorsque la taille des domaines de cristal liquide est beaucoup plus petite que la longueur d'onde, l'effet de diffusion est considérablement réduit et la structure PDLC fonctionne principalement dans un régime déphasant.

Les gouttelettes de cristal liquide possèdent dans ce cas des diamètres de l'ordre de quelques centaines de nanomètres et on parle alors de système nano-PDLC. Dans ce régime, le matériau composite n'est plus diffusant: il se comporte comme un milieu optique isotrope (quasi-transparent) et il permet d'obtenir une variation isotrope de l'indice de réfraction insensible à la polarisation et commandée par l'action d'un champ électrique.

Lorsque le matériau est déphasant et qu'il possède en plus une structuration de la matrice polymère réalisée par une technique holographique, le milieu travaille dans un régime diffractant. On parle alors de H-PDLC ou holo-PDLC. Notre travail concerne ces systèmes.

III.2. Description du matériau holographique :

Comme les PDLC, les H-PDLC sont obtenus par une séparation de phase entre le polymère et le cristal liquide qui fait aboutir à la formation de gouttelettes de cristal liquide.

Ces matériaux H-PDLC bénéficient de nombreux travaux concernant l'holographie dans les photopolymères et ceux sur la structure PDLC[25.26]. Ces systèmes sont caractérisés par une structure du polymère lorsque le matériau est exposé à une figure d'interférences.

III.3. Montage holographique:

La figure (III.1) illustre le processus de formation du Matériau H-PDLC. Un mélange homogène monomères/cristal liquide est illuminé par une figure d'interférence.

Le montage d'enregistrement d'un réseau holographique consiste en un obturateur, un filtre spatial, une lentille de collimation, deux miroirs et un séparateur de faisceau qui permet de séparer le faisceau incident en deux parties d'égale intensité..

L'échantillon est placé dans le plan de deux faisceaux d'enregistrement provenant d'une même source de lumière laser d'intensité suffisamment élevée pour pouvoir produire une polymérisation des monomères. La longueur d'onde du faisceau laser utilisée doit être compatible avec le photo-amorceur du mélange initial. Un deuxième laser He-Ne de longueur d'onde 632.8nm est utilisé pour la lecture de l'hologramme au cours de l'enregistrement c'est à dire au cours de sa formation. Les deus faisceaux, celui de l'enregistrement et celui de la lecture, doivent tomber sur l'échantillon sous le même angle de Bragg.

L'évolution des faisceaux générés par l'échantillon est achevée par deux photodiodes, l'acquisition des données est faite par un microordinateur qui pilote l'ensemble du montage d'enregistrement.

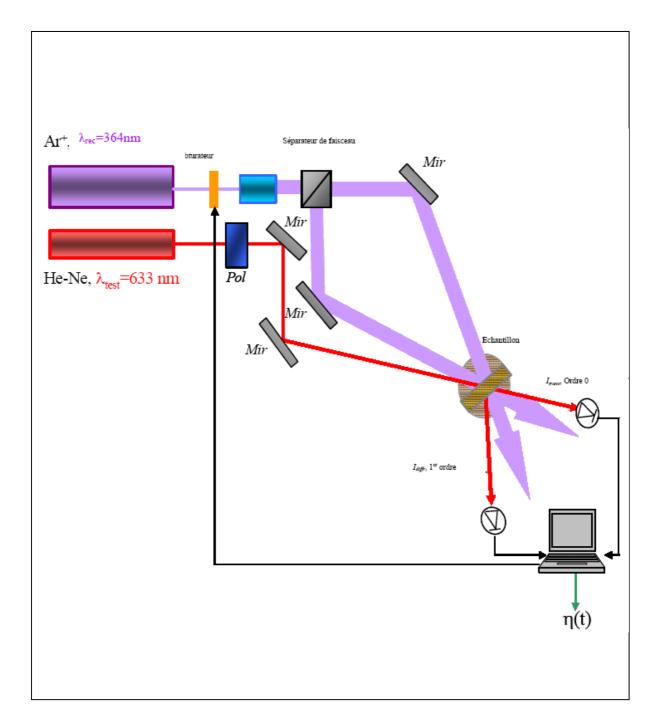


Figure (III. 1) : Montage d'enregistrement des matériaux H-PDLCs.

III.4. Principe de fabrication :

Les deux faisceaux d'enregistrement vont créer une figure d'interférence au niveau de l'échantillon (figure (III.2)); les régions dans lesquelles les franges d'interférence sont constructives, on assiste à une forte polymérisation des

monomères. Il en résulte ainsi un gradient de concentration de ces monomères qui vont migrer, par le processus de diffusion, des zones sombres (franges d'interférence destructive) vers les zones claires (franges d'interférence constructive).

Au cours de cette polymérisation structurée, les molécules de cristal liquide diffusent des régions de fort éclairement (riches en polymères) vers les régions de faible éclairement (riches en monomères). Le cristal liquide se sépare ainsi du polymère et il y a formation de domaines de cristal liquide (gouttelettes).

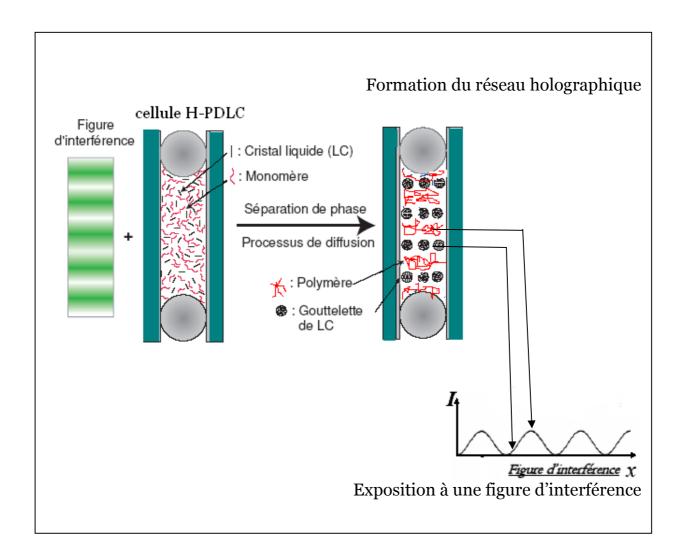


Figure (III.2) : Principe de fabrication d'un réseau holographique «H-PDLC»

La figure d'interférence des deux faisceaux d'enregistrement est alors reproduite dans le matériau sous forme d'une alternance de régions riches en polymère et d'autres riches en cristal liquide. Cette périodicité vient de la méthode de préparation utilisant des techniques holographiques. Elle est basée sur un phénomène de polymérisation non homogène.

L'un des avantages de l'utilisation de ces matériaux H-PDLC est qu'on n'a pas besoin d'un développement ultérieur.

Les polymères et le photo amorceur restant dans le matériau après son élaboration peuvent être consommés en exposant celui-ci à une source de lumière UltraViolette. Ceci permet d'augmenter la valeur de la modulation de l'indice de réfraction.

La figure(III.3) montre le profil type d'une structure de la matrice polymère d'un matériau H-PDLC.

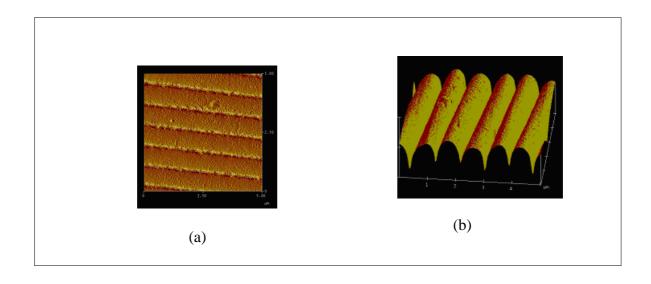


Figure (III.3) : Profil du réseau H-PDLC observé au Microscope à Force Atomique (AFM). a) profil en 2D, b) : profil en 3D.

Des structures de type cristaux photoniques à 2 ou 3 dimensions peuvent être fabriqués [27.28] en utilisant des configurations d'enregistrement avec trois ou quatre faisceaux.

III.4. Propriétés d'un matériau holographique :

III.4.1. Pas du réseau :

La fréquence spatiale du réseau holographique, appelée aussi la période de réseau ou le pas de réseau et notée (Λ) peut être variée en ajustant l'angle de l'intersection des faisceaux d'enregistrement.

Le pas Λ de l'hologramme est donc défini par [29]:

$$\Lambda = \frac{\lambda_{\text{\'ecriture}}}{2 \sin \theta_{\text{\'ecriture}}}$$

Où $\theta_{\text{\'ecriture}}$ est l'angle que fait le faisceau d'écriture avec la normale au réseau et $\lambda_{\text{\'ecriture}}$ est la longueur d'onde d'écriture du réseau (Figure(III.4)).

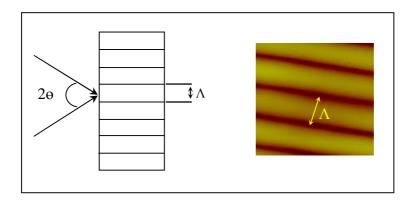


Figure (III.4) : Définition du pas de réseau.

La lecture du réseau est faite en utilisant la lumière rouge d'un laser He-Ne de longueur d'onde $\lambda = 632.8$ nm et dont le faisceau fait un angle d'incidence qui doit satisfaire la relation de Bragg pour le faisceau diffracté du premier ordre.

La puissance du faisceau diffracté au premier ordre (P_{dif} (t)), peut être mesurée à l'aide d'une photodiode. Un exemple typique de la cinétique de polymérisation (la formation de la structure H-PDLC) pendant le temps de l'enregistrement holographique, est représenté sur la figure(III.5) qui montre l'évolution des intensités transmises et diffractées par l'échantillon en fonction du temps d'exposition.

On voit bien qu'au cours de l'enregistrement de l'hologramme, l'intensité de la lumière transmise diminue et celle de la lumière diffractée augmente, suite à une diffusion de plus en plus importante provoquée par la formation progressive des gouttelettes de cristal liquide et à une structure en réseau de plus en plus ordonnée.

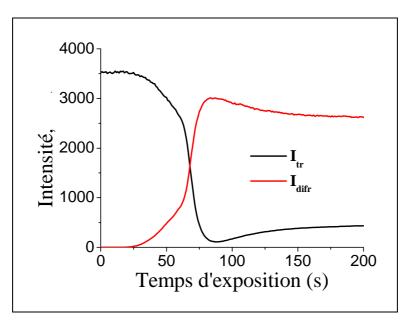


Figure (III.5) : Cinétique d'enregistrement: évolution des intensités de transmission et de diffraction en fonction du temps d'exposition pour une polarisation TE du faisceau de lecture.

III.5.2. Efficacité de Diffraction :

La caractérisation du matériau holographique diffractant se fait par la mesure de l'efficacité de diffraction (DE ou η) qui peut être effectuée de plusieurs façons.

La méthode la plus courante, celle que nous adoptons ici, consiste à faire le rapport entre l'intensité diffractée et l'intensité incidente.

$$\eta(t) = \frac{I_{diffr}(t)}{I_{i}(t)}$$

La figure (III.6) montre un exemple typique de la cinétique de l'efficacité de diffraction en fonction du temps d'exposition du matériau H-PDLC aux faisceaux d'enregistrement pour des polarisations de lecture *TE* et *TM*. Selon Carre et al [30], une telle évolution de l'efficacité de diffraction présente trois parties principales:

- a) Période d'inhibition qui dure de 5 à 20 secondes et pendant laquelle la polymérisation est absente à cause de l'oxygène résiduel présent dans la solution jouant le rôle d'inhibateur désactivant le photo-initiateur.
 - b) Polymérisation en cours avec croissance rapide de la DE.
- c) Un plateau où la DE n'augmente plus est atteint ou même l'existence d'une chute de la DE en fonction toujours du temps d'exposition.

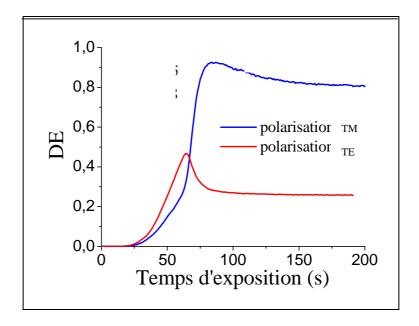


Figure (III.6) : Cinétique de l'efficacité de diffraction DE en fonction du temps d'exposition pour les polarisations TE et TM.

L'enregistrement d'hologrammes donne lieu à des matériaux diffractifs aussi bien transmissifs que réflectifs, une vue typique de ce réseau est représentée sur la figure (III.6). Le faisceau passant par le réseau est le faisceau transmis. Le faisceau allant du côté gauche est diffracté. Le faisceau reflété n'est pas présenté sur la photo.

III.5.3. Effet d'un champ électrique externe :

L'enregistrement d'hologrammes dans un matériau H-PDLC nous fournit des composants diffractifs commutables électriquement ce qui étend la gamme d'application des réseaux épais en volume. Par un choix judicieux des indices de réfraction du polymère et du cristal liquide (l'indice du polymère n_P égal à

l'indice ordinaire du cristal liquide n_o), il est possible « d'effacer » complètement l'hologramme (figure (III.7)).

- → Sans champ électrique appliqué (état off), l'hologramme va diffracter la lumière.
- ▶ En présence d'un champ (état on), les molécules de cristal liquide s'orientent suivant leur axe ordinaire et l'onde incidente ne voit plus de différence d'indice entre le polymère et le cristal liquide, l'hologramme est alors « effacé ».

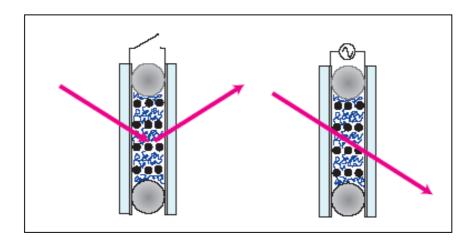


Figure (III.7) : Fonctionnement d'un réseau H-PDLC en transmission H-PDLC sans et avec application d'un champ électrique.

III. 6. Différents types de matériaux holo-PDLCs :

On peut distingue deux types de matériaux *H*-PDLC pouvant se former selon la position du matériau par rapport aux faisceaux d'enregistrements :

- ▶ Si les deux faisceaux qui interfèrent sont incidents du même côté du matériau symétriquement par rapport à la normale à sa surface, «un réseau en transmission» symétrique se forme.
- S'ils s'interfèrent de chaque côté du matériau, «un réseau en réflexion» va avoir lieu.

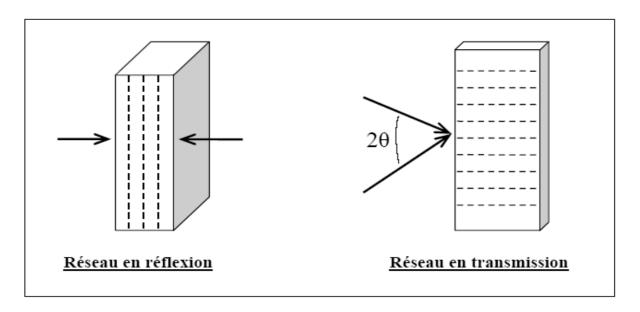


Figure (III.8) : Le schéma des réseaux en transmission et en réflexion, les petits traits représentent les domaines de LC formés d'un mode périodique dans le polymère.

III. 7. Polarisation du faisceau de lecture :

L'efficacité de diffraction des matériaux H-PDLCs dépend de la polarisation du faisceau de lecture.

Pour un réseau de diffraction, elle reflète la différence d'efficacité de diffraction pour les états principaux de polarisation notées TE et TM.

La polarisation TE (transverse électrique) est définie par un vecteur champ électrique orthogonal au plan d'incidence, il est alors parallèle aux sillons (ou franges) du réseau.

Pour la polarisation TM, le champ électrique est compris dans le plan d'incidence et est orthogonal aux sillons du réseau.

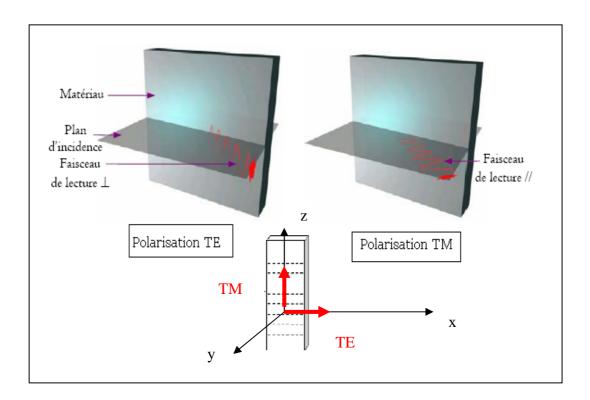


Figure (III.9) : Polarisations TE et TM du faisceau de lecture.

IV.1.Introduction:

La tendance actuelle est de rechercher des systèmes dotés qui possèdent des aspects dynamiques ou qu'on peut reconfigurer. De tels aspects peuvent être obtenus en holographie en utilisant des matériaux avec lesquels on peut effectuer des enregistrements accordables.

Ces comportements dynamiques comme l'accordabilité peuvent être obtenus en utilisant des matériaux composites polymère/cristaux liquides (PDLC) structurés en domaines de cristal liquide dispersés dans une matrice de polymère. Les fonctionnalités électro-optiques de ces systèmes peuvent être modifiées par l'application d'un champ électrique qui provoque à l'échelle microscopique un alignement des molécules de cristal liquide. Cette propriété se traduit, dans le cas d'un hologramme qui nous intéresse dans ce travail, par une modulation de l'indice de réfraction de la structure holographique. L'efficacité de diffraction, qui est la caractéristique essentielle d'un hologramme, est grandement modifiée par la profondeur de la modulation.

Des études importantes [31] ont mis en évidence le processus concernant la formation de la structure du réseau de polymère et celle des gouttelettes de cristal liquide. Ces investigations montrent que le développement des matériaux PDLCs est différent de celui des H-PDLCs qui sont caractérisés par une structure périodique du faisceau d'irradiation obtenue par polymérisation accompagnée d'une diffusion des espèces dans le mélange.

Les réseaux H-PDLC sont caractérisés principalement par l'efficacité de diffraction, la tension appliquée, la diffusion de la lumière et la modulation de l'indice de réfaction. Ces grandeurs sont grandement contrôlées par certains facteurs morphologiques regroupant la taille, la forme et la densité des domaines de cristal liquide, le pas de réseau, la rugosité à l'interface, l'intensité de l'irradiation et la concentration du photoamorceur. Une bonne

compréhension de l'effet de ces divers facteurs est nécessaire pour comprendre et améliorer les performances électrooptiques de ces matériaux.

IV. 1. 1. Effet de l'irradiation :

De nombreux études [32] ont montré que l'intensité de l'éclairement utilisé dans l'enregistrement des H-PDLC a une légère influence sur les propriétés électro-optiques de ces systèmes structurés.

Les gouttelettes obtenues ont généralement (inférieur à 100 nm) des tailles dont les dimensions sont de l'ordre de grandeur de la moitié du pas du réseau.

La taille des gouttelettes de cristal liquide augmente légèrement avec la diminution de la dose d'irradiation.

IV. 1. 2. Effet de teneur en CL:

Des études [33] ont montré qu'une meilleure efficacité de diffraction peut être en faisant un choix optimal de la nature et de la concentration du cristal liquide. Dans le cas d'un réseau H-PDLC constitué d'une matrice de TPGDA incluant des domaines de cristal liquide E7, ces études ont montré qu'une concentration de 30% de E7 donne lieu à une efficacité de diffraction maximale.

La taille des gouttelettes de cristal liquide augmente avec la concentration de ce dernier. Une concentration adéquate de cristal liquide est recherchée pour avoir une bonne efficacité de diffraction.

IV.2.Diffraction par un réseau : théorie

C'est Lord Rayleigh [34] qui, au début du siècle dernier, a établi la première théorie électromagnétique sur le calcul de l'efficacité de diffraction par un réseau alors qu'il recherchait une explication des anomalies de Wood [35].

Pour ces systèmes structurés, le développement d'une théorie vectorielle était nécessaire puisque les effets dépendent considérablement de la polarisation de l'onde incidente.

Dans cette théorie, le champ électromagnétique est exprimé par un ensemble d'ondes planes montantes et descendantes aussi bien à l'intérieur qu'à l'extérieur du réseau. Ce mode de développement, appelé développement de Rayleigh, est valide dans les deux régions homogènes entourant le réseau, appelés substrat et super substrat, mais pas dans la zone modulée constituant l'intérieur du réseau.

Cette théorie fournit de bons résultats uniquement pour les réseaux sinusoïdaux parfaitement conducteurs et à condition que le rapport de l'épaisseur du matériau par rapport au pas du réseau ne dépasse pas la valeur de 0.1.

Ce n'est qu'au cours des années soixante quez sont apparues les premières théories rigoureuses sur la modélisation de réseaux. On dit qu'une théorie est rigoureuse quand elle est issue des équations de Maxwell sans aucune approximation sur le plan théorique. Les seules qu'on peut rencontrer relève du domaine numérique et le principe général repose sur le fait que les équations de Maxwell sont écrites sous leur forme intégrale ou différentielle. Finalement la résolution d'un système linéaire permet de déterminer les champs des différentes ondes diffractées.

On donne un bref descriptif des différentes méthodes existantes :

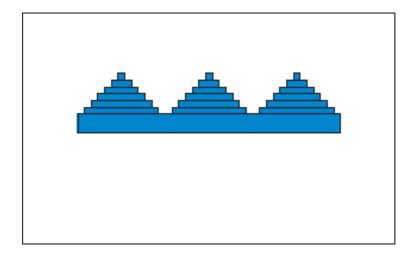
La méthode intégrale : c'est la première méthode rigoureuse

établie pour le calcul des réseaux de diffraction [36,37]. Elle a été utilisée avec succès dans beaucoup de réseaux notamment les réseaux à base de

conducteurs parfaits. Cette théorie présente cependant l'inconvénient que son développement mathématique est très complexe.

@ La méthode modale : Dans cette méthode, les champs des

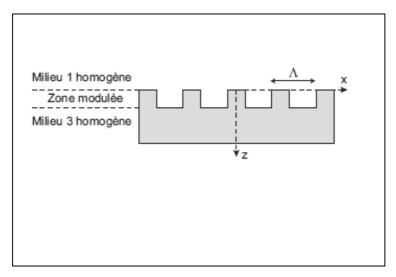
différents ordres de diffraction sont donnés sous la forme d'un développement de modes de propagation de la structure [38,39]. Le champ global est donné par une combinaison linéaire de chacun de ces modes. On peut déterminer les amplitudes de ces divers modes de propagation en résolvant un système linéaire et en écrivant les équations de continuité. Cette méthode est plutôt restreinte aux réseaux lamellaires ou par des réseaux en marche d'escalier (figure(IV.1)).



Figure(IV.1): Découpage du profil d'un réseau en relief de surface

La méthode différentielle classique : Dans cette théorie, la

résolution du problème de diffraction se fait à partir des équations de Maxwell écrites sous leur forme différentielle. Ces équations sont recherchées à être résolues dans trois domaines, deux semi espaces infinis homogènes entourant une section modulée, en relief ou en volume, formant le réseau de diffraction (figure (IV.2)).



Figure(IV.2) : illustration des différentes régions

<u>La théorie rigoureuse des ondes couplées ou méthode</u> <u>RCW (Rigorous Couples Wave):</u> Cette théorie a été établie

aux débuts des années 80 par Moharam et Gaylord. Le principe de cette méthode est le même que celui de la méthode différentielle énoncée précédemment, sauf que dans ce cas le réseau a un profil qui ne change pas en profondeur. Le processus d'intégration numérique se trouve ainsi grandement simplifié.

Une théorie vectorielle complète à 3 dimensions a été publiée en 1983 [40] après une première version parue en 1981. Cette méthode est bien adaptée à beaucoup de types de réseaux et notamment les réseaux holographiques en volume auxquels on s'intéresse dans ce mémoire.

IV.3.Expression théorique de l'efficacité de diffraction: IV.3.1 Introduction :

Les caractéristiques de diffraction d'un réseau dépendent grandement du rapport du pas de ce dernier par rapport à son épaisseur. A l'opposé d'un réseau mince dans lequel l'angle d'incidence du faisceau de lecture est choisi arbitrairement, ce dernier, dans un réseau épais, est fixé par le pas du réseau et par la longueur d'onde de ce faisceau. Notons aussi que pour ces réseaux épais, seule une onde diffractée existe et toute l'énergie de l'onde de lecture est transférée à cette onde diffractée.

Nous nous proposons dans ce chapitre qui constitue la partie centrale de notre travail, d'étudier les propriétés optiques, notamment l'efficacité de diffraction, des systèmes H-PDLC constitués d'une structure d'une matrice de polymère réticulée incluant des gouttelettes de cristal liquide dont la taille est de l'ordre de quelques dizaines de micromètres.

Nous utilisons, comme développement théorique, la théorie des ondes couplées de Kogelnik qui est la plus adaptée pour l'étude de l'efficacité de diffraction et de la sélectivité angulaire et spectrale des réseaux épais.

Les matériaux photosensibles utilisés en holographie sont d'épaisseurs non négligeables et il devient nécessaire d'étudier les effets de ces derniers sur les propriétés de la diffraction. Nous devons donc tenir compte de l'aspect tridimensionnel de ces réseaux épais.

Le système holographique que nous considérons est un hologramme élémentaire, c'est-à-dire un réseau structuré enregistré par l'interférence de deux ondes planes qui induit des variations spatiales de permittivité et/ou de conductivité. Le réseau obtenu est appelé réseau de phase si c'est l'indice de réfraction qui varie. Il est dit d'absorption (ou d'amplitude) lorsque c'est la

conductivité qui varie. On peut avoir un réseau mixte présentant à la fois des variations périodiques de permittivité et de conductivité

Seuls les réseaux de phase qui sont d'ailleurs les plus intéressants sont considérés ici.

IV.3.2. Critère d'épaisseur pour un réseau :

Considérons un réseau épais dont la figure (IV.3) donne un modèle simplifié. Les strates du réseau, de pas Λ , sont perpendiculaires à l'axe Ox. Soit une lumière incidente monochromatique et plane qui tombe sur le réseau sous un angle d'incidence i. Cette onde est difractée par les strates du réseau dans plusieurs directions.

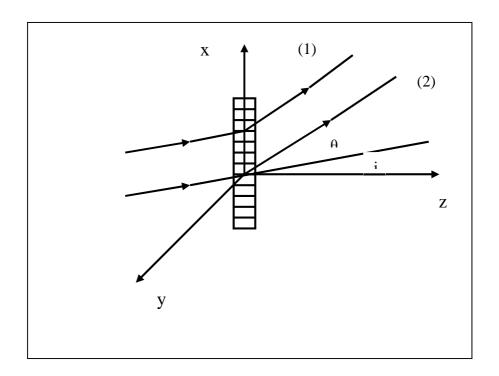
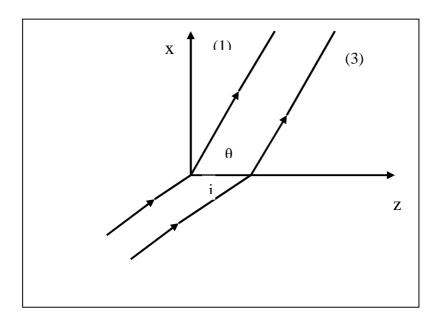


Figure (IV.3): Un réseau épais

Les rayons tels que (1) et (2) diffractés par deux points homologues situés sur deux strates consécutives sont en phase si la différence de marche entre

eux est égale à un nombre entier de la longueurs d'onde c'est- à-dire lorsque la relation suivante est satisfaite :

$$n\Lambda(\sin\theta - \sin i) = p\lambda$$
 (IV.1)



Figure(IV.4)

Où:

- n est l'indice de réfraction moyen du réseau ;
- λ est la longueur d'onde de la lumière dans le vide.

Cette équation, qui ne tient pas compte de l'épaisseur du réseau est en fait celle d'un réseau mince.

Contrairement à un réseau mince, l'ange de diffraction θ , dans un réseau épais, doit satisfaire en plus à la condition que deux rayons difractés par la même strate mais à différentes profondeurs (figure IV.4) doivent être en phase ou presque en phase pour que l'amplitude totale diffractée par cette strate sur

toute sa longueur soit maximale. Pour calculer cette amplitude, nous évaluons la différence de marche entre ces rayons sur toute l'épaisseur du réseau.

Sur une profondeur z cette différence de marche est:

$$nz(\cos i - \cos \theta)$$

Si a est l'amplitude diffractée par unité de longueur d'une strate, l'amplitude diffractée par toute la strate est :

$$A = \int_{0}^{d} a \exp\left[j\frac{2\pi nZ}{\lambda}(\cos i - \cos \theta)\right] dz$$

$$= ad \exp\left[j\frac{\pi nd}{\lambda}(\cos i - \cos \theta)\right] \sin c\left[\frac{\pi nd}{\lambda}(\cos i - \cos \theta)\right]$$
(IV.2)

Où:

sinc désigne la fonction sinus cardinal $\frac{\sin x}{x}$.

- ▶ |A| est maximal pour $\theta = \pm i$;
- θ = i correspond à l'ordre zéro (p=o) dans l'équation (IV.1); c'est le faisceau transmis directement.
- ullet θ =- i correspond à l'ordre -1 et il est le plus intense parmi les faisceaux diffractés .

La condition θ =- i correspond à la réflexion du faisceau incident sur la strate du réseau, les rayons réfléchis à différentes profondeurs parcourant le même chemin optique.

Substituant θ =- i et p=-1 dans l'équation (IV.1), nous obtenons une relation entre l'angle d'incidence (i) et le pas du réseau comme donne par suit,

$$\sin i = \frac{\lambda}{2 n \Lambda} \tag{IV.3}$$

Le faisceau de lecture doit satisfaire cette condition appelée condition de Bragg. Contrairement à un réseau mince, l'angle d'incidence dans un réseau épais ne peut pas être choisi de façon arbitraire c'est-à-dire indépendamment de λ .

A l'aide des équations (IV.1) à(IV.3) nous pouvons calculer les intensités relatives des ordres par rapport à l'ordre principal p=-1 dont l'intensité est la plus intense, lorsque le faisceau de lecture obéit à la condition de Bragg.

Si l'on s'intéresse à l'intensité relative dans l'ordre +1, l'angle θ pour p=1 est donné par :

$$\sin \theta = \frac{3}{2} \frac{\lambda}{n \Lambda} \tag{IV.4}$$

En substituant les équations

(IV.3) et (IV.4) dans (IV.1), l'intensité relative dans l'ordre +1 devient :

$$\operatorname{sinc}^{2}\left[\frac{\pi nd}{\lambda}\left\{\left(1-\frac{\lambda^{2}}{4n^{2}\Lambda^{2}}\right)^{\frac{1}{2}}-\left(1-\frac{9\lambda^{2}}{4n^{2}\Lambda^{2}}\right)^{\frac{1}{2}}\right\}\right] \tag{IV.5}$$

Pour λ =0,5 μm, n=1,5, Λ =1 μm, l'intensité relative dans l'ordre +1 est 3.10^3 .

▶ Pour des angles (i) ,(θ) petits ,(≤45°),par un développement limité ,la formule (III.5) se réduit à :

$$\sin c^2 \left(\frac{\pi \lambda d}{n\lambda^2}\right) \tag{IV.6}$$

Introduisons le paramètre adimensionné Q tel que :

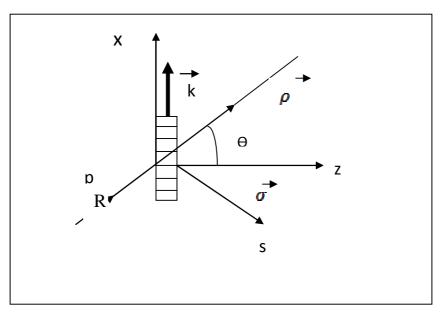
$$Q = \left(\frac{\pi \lambda d}{n \Lambda 2}\right)$$

- Si Q=1, l'intensité de l'onde diffractée dans l'ordre 1 n'est plus négligeable devant celle des ordres 0 et -1. Dans ce cas le réseau est mince et diffracte en régime de Raman-Nath.
- Si Q≥10, l'intensité relative de l'ordre 1 et celle de tous les ordres supérieurs ne dépasse pas 1 % et sont par conséquent négligeables par rapport à celles des ordres 0 et -1. Le réseau considéré comme étant épais et diffracte en régime de Bragg.

IV.3.3. Rendement de diffraction d'un réseau épais :

Théorie des ondes couplées de kogelnik[41]

Le réseau épais est représenté sur la figure (IV.5).



Figure(IV.5): Présentation de réseau épais

- Les surfaces du milieu diélectrique constituant le réseau structuré sont parallèles au plan xz donc perpendiculaires à l'axe Oy
 - Les strates des franges sont perpendiculaires au plan d'incidence (xz).
- Le vecteur réseau $\vec K$, de module $\frac{2\pi}{\Lambda}$, est perpendiculaire aux strates ${\rm l'angle}\left(\vec K,O\vec Z\right)=\phi \ .$

Pour simplifier le développement théorique de la théorie des ondes couplées , nous nous limitons à une onde plane incidente R qui tombe sur le réseau avec un angle θ et dont le champ électrique est parallèle à l'axe Oy. L'onde est ainsi dite polarisée rectilignement selon la direction Oy.

Cette onde incidente appelée, onde de lecture, donne naissance à une onde signal S à l'entrée du réseau, et il y a échange d'énergie entre ces deux ondes tout au long de leurs trajets dans le volume du réseau.

Pour étudier la propagation de ces ondes dans le volume de réseau, nous devons résoudre l'équation d'onde scalaire :

$$\nabla^2 E + K^2 E = 0 \tag{IV.7}$$

Avec:

k est le nombre d'onde; E (x,z) est l'amplitude du champ électrique suivant l'axe des y ,et de fréquence angulaire ω .

Le paramètre k est donné par :

$$K = \omega^2 \mu \varepsilon \left(1 + j \frac{\sigma}{\omega \varepsilon} \right)$$
 (IV.8)

Ou μ est la perméabilité du milieu que nous prenons comme celle du vide, ϵ la permittivité et σ la conductivité du milieu constituant le réseau.

La constante diélectrique absolu peut s'écrire sous la forme :

$$\varepsilon = \varepsilon_0 \varepsilon_r = \varepsilon_0 n^2$$

 ε_r est la permittivité relative, ε_0 est la permittivité du vide et n l'indice de réfraction du milieu. Dans les systèmes holographiques que l'on étudie, $\frac{\sigma}{\omega \varepsilon}$ qui est de l'ordre de 10^{-5} , est très faible. Ce qui nous permet d'écrire :

$$K = \omega (\mu \varepsilon)^{\frac{1}{2}} \left(1 + j \frac{\sigma}{2\omega \varepsilon} \right)$$

$$= \frac{2\pi}{\lambda} n + j \frac{\sigma}{2nc\varepsilon_o}$$

$$= \frac{2\pi}{\lambda} n + j \frac{\alpha}{2}$$
(IV.9)

Où α représente le coefficient d'absorption (en intensité). Dans les matériaux optiques $\alpha = \frac{2\pi}{\lambda} n$.

Le réseau holographique est représenté par une modulation spatiale de l'indice de réfraction n et de coefficient d'absorption α on peut écrire:

$$n = n_o + n_1 \cos(\vec{k}, \vec{r})$$

$$\alpha = \alpha_o + \alpha_1 \cos(\vec{k}, \vec{r}) \tag{IV.10}$$

Où n_0 , α_0 sont les valeurs moyennes de l'indice de réfraction et du coefficient d'absorption respectivement et \vec{r} le vecteur de position.

A partir des équations (IV.9) et (IV.10) et en supposant n très grand devant l'amplitude de modulation n_1 et $\frac{2\pi}{\lambda}n$ très grand devant α_0 , nous obtenons :

$$k^{2} = \beta^{2} + j\beta\alpha + \beta \left[\frac{2\pi}{\lambda}n_{1} + j\frac{\alpha_{1}}{2}\right] \left\{ \exp\left(j\vec{k}, \vec{r}\right) + \exp\left(-j\vec{k}, \vec{r}\right) \right\} \quad \text{(IV.11)}$$

Où:

• β est la constante de propagation moyenne définie par:

$$\beta = \frac{2\pi}{\lambda} n_o$$

Le paramètre κ appelé constante de couplage, joue un rôle clé dans la théorie des ondes couplées tel que :

$$\kappa = \frac{\pi}{\lambda} \eta + j \frac{\alpha_1}{4} \tag{IV.12}$$

Lorsque $\kappa=0$, donc $n_1=0$ et $\alpha_1=1$, il n'y pas existence d'onde diffractée puisque dans ce conditions il n' y a pas de réseau. Le champ électrique total dans le milieu du réseau est donné par :

$$E = R(Z) \exp(j\vec{\rho}.\vec{r}) + S(Z) \exp(j\vec{\sigma},\vec{r})$$
 (IV.13)

Où:

 $ightharpoonup \vec{\rho}$ représente le vecteur d'onde de lecture, $|\rho| = \beta$.

Le vecteur $\vec{\sigma}$ donne la direction de propagation du signal S et est lié aux vecteurs $\vec{\rho}$ et \vec{K} par la relation suivante :

$$\vec{\sigma} = \vec{\rho} - \vec{k} \tag{IV.14}$$

 \bullet Lorsque la condition de Bragg est satisfaite, le module de σ est égal à β.

En combinant les équations (IV.7), (IV.11), (IV.13) et (IV.14), et en comparant les termes de même exponentielle $(\exp(j\vec{\rho},\vec{r}),\exp(j\vec{\sigma},\vec{r}))$ nous obtenons le système des deux équations suivantes :

$$\cos \theta \frac{dR}{dz} + \frac{\alpha}{2}R = j\kappa S$$

$$\cos\theta \frac{dR}{dz} + \left[\frac{\alpha}{2} - j\left(\frac{\beta^2 - \sigma^2}{2\beta}\right)\right] S = j\kappa R$$
 (IV.15)

Rappelons qu'on a convenu de prendre le vecteur réseau parallèlement à l'axe Ox.

Notons aussi que, dans ce calcul théorique, nous avons supposé que les échanges d'énergie entre les deux ondes, incidente et diffractée, restent faibles pour des distances de l'ordre d'une longueur d'onde, ce qui nous a parmis de négliger les dérivées secondes de R et S.

Les ondes engendrées dans les directions $\vec{\rho}+\overline{K}$ et $\vec{\sigma}-\vec{K}$ sont aussi négligées.

Le paramètre :

$$\frac{\beta^2 - \sigma^2}{2\beta} = \Theta \tag{IV.16}$$

qui apparait dans les deux équations couplées ci-dessus représente le désaccord de phase par rapport aux conditions de Bragg. A l'aide de la relation(IV.14) on peut écrire :

$$\Theta = K \sin \theta - \frac{K^2}{4\pi n} \lambda \tag{IV.17}$$

 Θ est nul lorsque:

$$\sin \theta = \frac{K}{4\pi n} \lambda = \frac{\lambda}{2\pi \Lambda} \tag{IV.18}$$

Qui est bien l'équation de Bragg. Pour une longueur d'ordre donnée, on peut trouver un angle d'incidence θ pour que la condition de Bragg soit satisfaite. Pour des petites déviations $\Delta\theta$ et $\Delta\lambda$ par rapport à la condition de Bragg, le paramètre Θ est égal à :

$$\Theta = K \cos\theta \Delta \theta - \frac{K^2}{4\pi n} \Delta \lambda \tag{IV.19}$$

L'amplitude diffractée après la traversée du réseau s'obtient par résolution des équations couplées avec les deux conditions aux limites suivantes :

- S(0)=0;
- R(0)=1.

Le rendement de diffraction, défini comme la fraction de l'énergie incidente qui se trouve dans le faisceau signal à la sortie du réseau, est :

$$\eta = S(d)S^*(d)$$

Après de longs calculs on obtient l'expression du rendement de diffraction pour un réseau de phase sous la forme :

$$\eta = \exp\left(-\frac{\alpha d}{\cos \theta}\right) \left\{ \frac{\sin\left(v^2 + \xi^2\right)^{\frac{1}{2}}}{\left(v^2 + \xi^2\right)^{\frac{1}{2}}} \right\}^2 v^2$$
 (IV.20)

Avec:

$$v = \frac{n_1 d}{\lambda \cos \theta}$$

$$\xi = \frac{d}{2\cos\theta}\delta = \frac{kd}{2}\Delta\theta - \frac{k^2}{8\pi n\cos\theta}d\Delta\lambda \tag{III.21}$$

Pour un réseau

non-absorbant (α =0) et pour l'indice de Bragg (ξ =0), on obtient :

$$\eta = \sin^2 v = \sin^2 \left(\frac{\pi n_1 d}{\lambda \cos \theta} \right) \tag{IV.22}$$

V.I. Introduction:

Plusieurs études de la structure interne des matériaux H-PDLCs ont été faites par Microscopie Electronique à Balayage (*MEB*). L'effet d'un certain nombre de variables sur la morphologie finale a été systématiquement discuté par plusieurs groupes. Ces variables incluent la composition en cristal liquide, la période de Bragg [19] (pas de réseau), la fonctionnalité du monomère [42], le type et la concentration du photo amorceur [43] et l'intensité d'éclairement.

Ces études ont fournit des informations importantes concernant le développement de la structure du réseau de polymère et celle des gouttelettes de cristal liquide. Les règles régissant le développement des matériaux PDLCs sont différentes dans le cas des H-PDLCs car ces derniers sont établis par un profil périodique d'intensité dont le principe comprend à la fois la diffusion des espèces dans le mélange et la polymérisation (séparation de phase).

Les performances des réseaux holographiques H-PDLC s'identifient au terme de l'efficacité de diffraction, la tension appliquée, la diffusion de la lumière, la modulation de l'indice de réfaction et autres. Les facteurs morphologiques regroupent la taille des gouttelettes, leur forme, leur densité, le pas de réseau, et la rugosité à l'interface. Une compréhension de ces facteurs morphologiques est nécessaire pour expliquer les données électro optiques des HPDLCs.

V.2. Propriétés physiques du réseau :

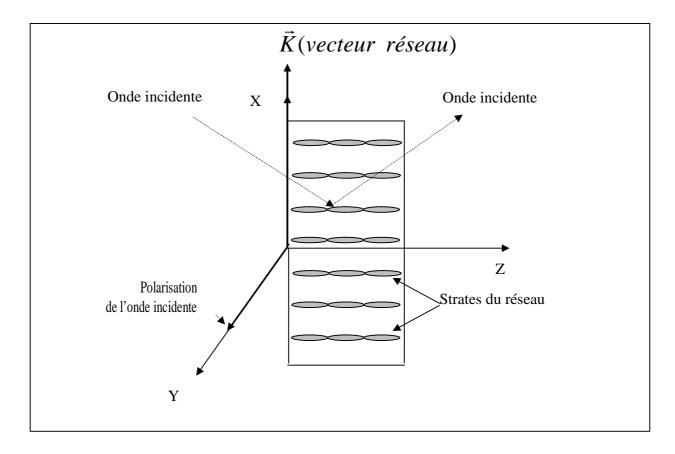
Les systèmes H PDLC utilisés dans cette étude de l'efficacité de diffraction sont élaborés à partir d'un mélange de monomères de TPGDA et de cristal liquide E7 avec une concentration en volume de 47,6% de ce dernier.

L'anisotropie diélectrique $\mathcal{E}_a = \mathcal{E}_{/\!/} - \mathcal{E}_{\perp}$, du cristal liquide E7, est positive à la température ambiante, où $\mathcal{E}_{/\!/}$ et \mathcal{E}_{\perp} représentent les composantes parallèle et perpendiculaire de la constante diélectrique respectivement. La valeur de \mathcal{E}_a , prise de la littérature, est $\mathcal{E}_a = 14.34\mathcal{E}_0$ avec $\mathcal{E}_{/\!/} = 19.54\mathcal{E}_0$, $\mathcal{E}_{\perp} = 5.2\mathcal{E}_0$ et où \mathcal{E}_0 est la constante diélectrique dans le vide de valeur $\frac{1}{36 \pi} 10^{-9}$ (unité S.I.). Les indices de réfraction

ordinaire et extraordinaire de E7, à la longueur d'onde de 632.8 nm et à la température ambiante, sont $n_o = 1.5183$ et $n_e = 1.7378$ respectivement

L'efficacité de diffraction de ces systèmes dépend grandement de la modulation de l'indice de réfraction n₁, de la structure du réseau HPDLC, correspondant à la polarisation de l'onde incidente.

Pour simplifier les calculs et l'interprétation, on considère la structure schématisée par la figure (V.1).



Figure(V.1): Schémas de la structure H-PDLC

Le vecteur réseau est parallèle à l'axe Ox et son module est tel que $K = \frac{2\pi}{\Lambda}$ où Λ est le pas du réseau. On ne considère que la polarisation transversale (parallèle à l'axe OY) pour les ondes, incidente et diffractée que l'on suppose situées toutes les deux dans le plan XY. Les strates du réseau sont parallèles au plan YZ. Par ailleurs on suppose que toutes les gouttelettes de cristal liquide qui se sont formées pour constituer les strates, pendant la polymérisation des monomères, sont orientées telles

que leurs directeurs nématiques restent constamment parallèles au plan des strates et sont distribués, aléatoirement, dans ce plan.

L'indice de réfraction de la matrice de polymère, polymérisée en absence de cristal liquide, est différent de celui de la matrice élaborée en présence de ce dernier. En effet, des molécules de cristal liquide restent dissoutes dans la matrice polymère jusqu'à une certaine concentration limite; ceci mène à un changement de l'indice de réfraction de la matrice polymère qui affecte des propriétés optiques et électrooptiques de ces matériaux.

En supposant que l'indice de réfraction de la matrice polymère n_{mat} a une dépendance linéaire des indices de réfraction du cristal liquide E7 et de la matrice polymère pure en fonction de la fraction volumique de cristal liquide dissous γ on peut écrire :

$$n_{\text{mat}} = \gamma n_{\text{LC}} + (1 - \gamma) n_{\text{p}} \tag{V-1}$$

où n_{LC} est l'indice de réfraction moyen du cristal liquide :

$$n_{LC} = \sqrt{\frac{2n_o^2 + n_e^2}{3}}$$
 (V-2)

et n_p (n_p =1.4845) est l'indice de réfraction de la matrice pure mesuré à la température ambiante. n_o et n_e sont les indices de réfraction ordinaire et extraordinaire du cristal liquide.

En prenant une solubilité limite en cristal liquide de 32 % pour l'indice de réfraction de la matrice de polymère correspondante, incluant le cristal liquide dissous, calculé à l'aide de l'équation (V-1), est 1.5198. Cette valeur ainsi que la concentration de cristal liquide c=47 %, ségrégé sous

forme de gouttelettes, sont introduites dans les calculs des courbes théoriques de l'efficacité de diffraction de ces réseaux H-PDLC.

Par ailleurs, en faisant l'hypothèse que la quasi-totalité des gouttelettes de cristal liquide sont constituées dans les strates du réseau H-PDLC, l'indice de réfraction du matériau dans ces strates peut être approximé par $n_{\rm LC}$.

L'indice de réfraction moyen du matériau, correspondant à la polarisation transversale (suivant OY) est par conséquent égal à :

$$n_{\text{moy}} = c n_{\text{LC}} + (1 - c) n_{\text{mat}} \tag{V-3}$$

La modulation d'indice de réfraction figurant dans les équations (IV.20) et (IV.21) s'obtient tout simplement en faisant la différence entre l'indice moyen n_{LC} d'une strate et l'indice moyen n_{moy} du matériau :

$$n_1 = n_{LC} - n_{moy} \tag{V.4}$$

Passons maintenant à l'étude du comportement de l'efficacité de diffraction d'un réseau H-PDLC en fonction de quelques paramètres importants.

V.3. Etude du comportement de l'efficacité de diffraction :

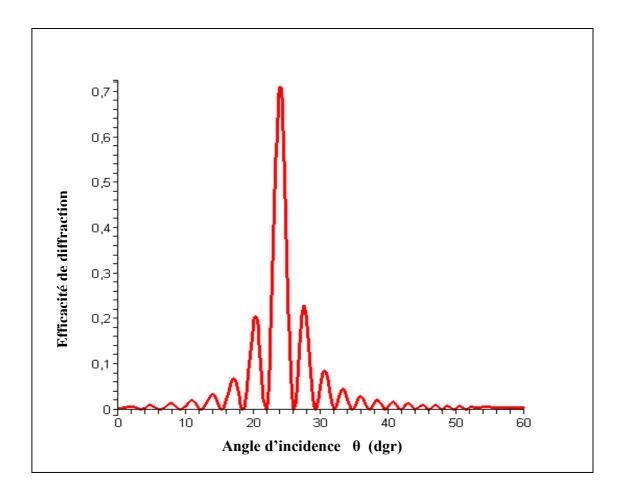
V.3.1. Variation de l'efficacité de diffraction en fonction de l'angle d'incidence :

La variation de l'efficacité de diffraction théorique en fonction de l'angle d'incidence θ , calculée en utilisant l'équation (IV.20) du chapitre (IV) précédent, est montrée sur la figure(V.2). Le calcul est effectué en prenant des paramètres de réseau suivants :

- La longueur d'onde de la lumière incidente est $\lambda = 0632$ nm.
- L'épaisseur du film est d=10μm.
- Le pas du réseau est Λ=0.5 μm.
- la concentration volumique de cristal liquide dans le mélange est c=47%.
- La modulation d'indice obtenue avec cette concentration est de 0.039.

On peut dire en premier que, d'un point de vue qualitatif, la courbe obtenue traduit bien la variation type de la diffraction par un réseau. On observe, en effet, que la courbe comporte un lobe principal correspondant à un angle d'incidence de 24 deg, qui est tout simplement l'angle de Bragg pour lequel l'efficacité de diffraction est maximale, et des lobes secondaires disposés de façon symétrique par rapport à ce lobe principal et dont l'intensité diminue en s'éloignant de ce dernier.

L'intensité de l'efficacité de diffraction, trouvée égale à 72% à l'angle de Bragg, peut être améliorée en choisissant une combinaison judicieuse des trois paramètres longueur d'onde, épaisseur du réseau et modulation d'indice, comme le montre clairement l'équation (IV.22) qui donne la valeur de l'efficacité de diffraction à l'angle de Bragg.



Figure(V.2): Variation de l'efficacité η de diffraction en fonction de l'angle d'incidence (θ). λ =632 nm, d=10 μ m, Λ =0.5 μ m et c=47%.

V.3. 2. Effet de la longueur d'onde :

Le comportement de l'efficacité de diffraction sous l'effet de la longueur d'onde de la lumière incidente est représenté sur la figure (V.3) qui traduit les variations de l'efficacité de diffraction en fonction de l'angle d'incidence θ , pour deux longueurs d'ondes, 0.6 μ m et 1 μ m. L'épaisseur du réseau est d=10 μ m, le pas est Λ =0.5 μ m et la concentration volumique en cristal liquide est c= 47%.

On observe, comme attendu, que les deux courbes possèdent la même forme avec un déplacement vers les grands angles d'incidence quand la longueur d'onde augmente. L'intensité du lobe principal, correspondant à l'angle de Bragg, est plus importante pour les grandes longueurs d'onde. Par contre les intensités des lobes secondaires sont relativement plus élevées quand la longueur d'onde est faible. Par exemple, l'intensité de l'efficacité de diffraction est de 100% pour une longueur d'onde de 1 µm alors qu'elle est de 6% pour une longueur d'onde de 0.6 µm. En revanche l'intensité du premier lobe secondaire est de 24 % pour la longueur d'onde de 0.6 µm alors qu'elle n'est que de 8% pour la longueur d'onde de 1 µm.

Ces résultats sont importants pour l'étude de la sélectivité spectrale.

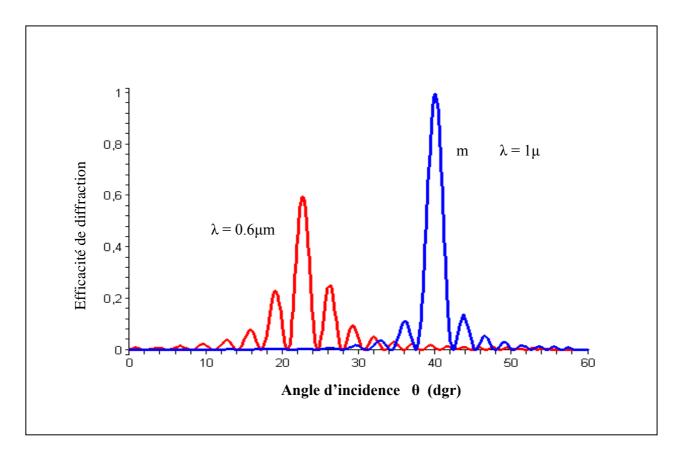
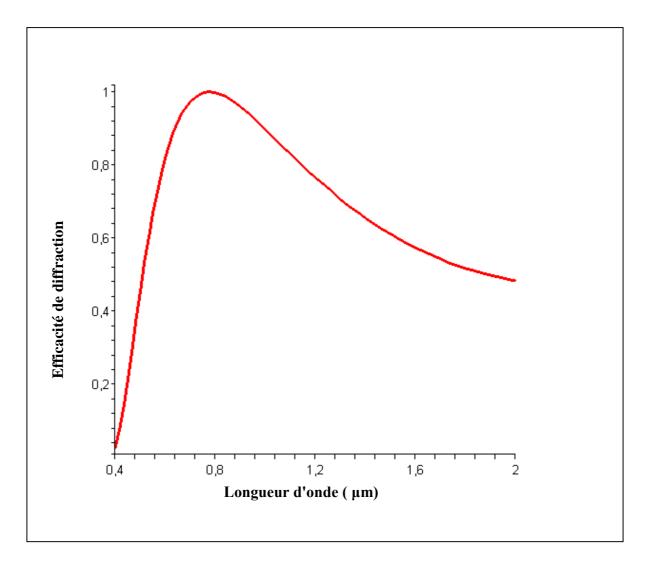


Figure (V.3): Variation de l'efficacité de diffraction η en fonction de l'angle d'incidence θ , pour deux longueurs d'onde $\lambda = 0.6 \ \mu m$ et $\lambda = 1 \ \mu m$.

Ce comportement de l'efficacité de diffraction en fonction de la longueur d'onde est mieux explicité sur la figure (V.4) qui présente les variations de l'efficacité de diffraction en fonction de la longueur d'onde et à l'angle de Bragg. Notons, qu'ici, l'efficacité de la diffraction est calculée à l'angle de Bragg qui est évalué pour chaque longueur d'onde, en accord avec l'équation (III.18) . L'épaisseur du film est d= 10 μ m, le pas du réseau est Λ =1 μ m et la concentration volumique en cristal liquide est c=47%.

On observe que l'efficacité de diffraction augmente d'abord rapidement jusqu'à la valeur maximale de 100% pour une longueur d'onde de l'ordre de 0.7 μ m, puis diminue de plus en plus lentement au fur et à mesure qu'on s'éloigne de la longueur d'onde correspondant au maximum de l'efficacité de diffraction



Figure(V.4) : Variation de l'efficacité de diffraction η en fonction de la longueur d'onde. $d=10\mu m, \Lambda=1 \mu m$ et c=47%.

V.3. 3. Effet du pas du réseau :

L'effet du pas du réseau Λ sur le comportement de l'efficacité de diffraction est montré sur la figure (V.5) qui traduit les variations de l'efficacité de diffraction en fonction de l'angle d'incidence, pour deux pas du réseau 0.5 μ m et 1 μ m.

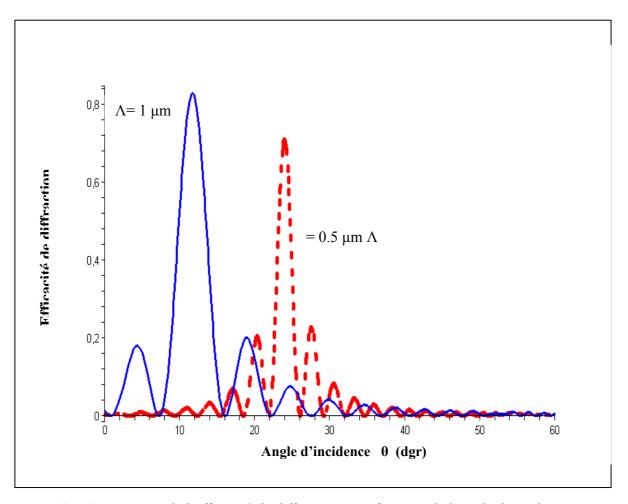


Figure (V.5): Variation de l'efficacité de diffraction η en fonction de l'angle d'incidence , pour deux valeurs du pas du réseau $\Lambda(0.5~\mu m~et~l~\mu m)$. l'épaisseur du réseau est $d=10\mu m$, la longueur d'onde est $\lambda=0.632~\mu m~et~la~fraction$ volumique du crisatal liquide est c=47%.

On observe un déplacement de la courbe vers les faibles angles d'incidence quand le pas du réseau augmente. Ce déplacement est accompagné par une valeur relativement élevée de l'intensité du lobe principal pour des pas plus importants. Ce résultat est attendu, en accord avec les équations (IV.18) et (IV.20), qui montrent que quand le pas du réseau et l'intensité du lobe principal augmentent quand l'angle de Bragg diminue. En revanche, on observe l'effet inverse en ce qui concerne les intensités pour les lobes secondaires.

V.3. 4-. Effet de la concentration du cristal liquide :

L'effet de la concentration du cristal liquide sue le comportement de l'efficacité de diffraction est montré sur la figure (V.6) qui traduit les variations de l'efficacité de diffraction en fonction de l'angle d'incidence pour deux valeurs de la concentration c (40% et 65%).

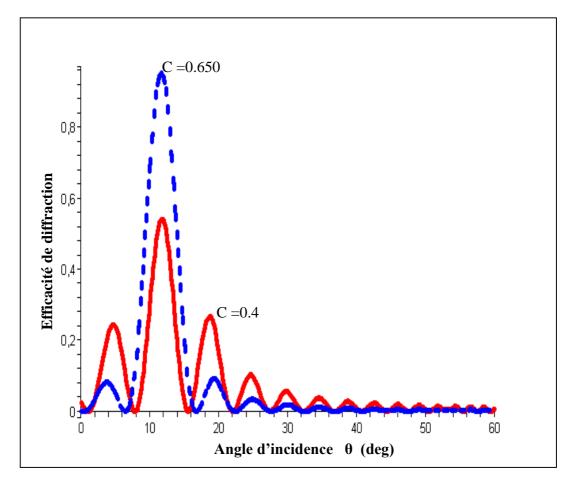


Figure (V.6): Variation de l'efficacité de diffraction η en fonction de l'angle d'incidence , pour deux concentration volumique du cristal liquide dans le mélange polymère/cristal liquide (0.40 et 0.65). du pas du réseau Λ =0.5 μ m, l'épaisseur du réseau est d=10 μ m, la longueur d'onde est λ =0.632 μ m.

On observe en premier que la position du lobe principal et celles des lobes secondaires ne dépendent pas de cette concentration, ce qui est attendu, puisque l'angle de Bragg, défini par l'équation (III.18), n'inclut pas le paramètre c. On observe par ailleurs que l'efficacité de diffraction est plus élevée quand la concentration est augmentée. Par contre les lobes secondaires sont plus importants quand la concentration est faible. L'effet

de la concentration du cristal liquide dans le mélange est clairement illustré sur la figure (V.7) traduisant la courbe montrant les variations de l'efficacité de diffraction en fonction de la concentration

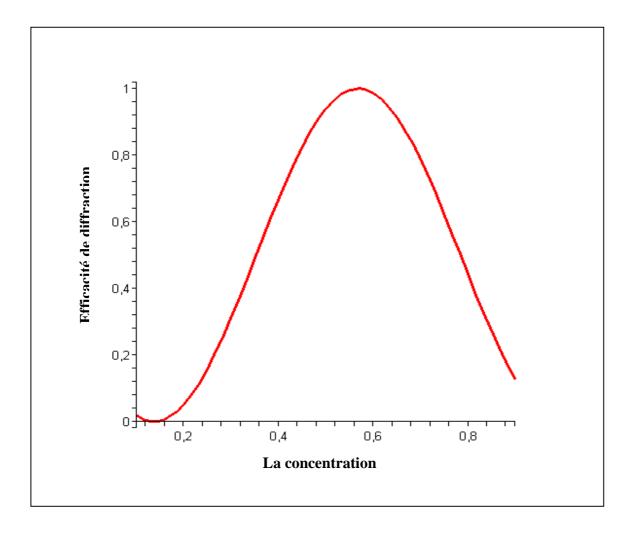


Figure (V.7) : Variation de l'efficacité de diffraction η en fonction de la concentration volumique du cristal liquide. Le pas du réseau est $\Lambda=1~\mu m$, l'épaisseur du réseau est $d=10\mu m$, la longueur d'onde est $\lambda=0.632~\mu m$.

Notons que, contrairement aux études de l'effet de la longueur d'onde et du pas du réseau cités précédemment, l'angle de Bragg ne dépend pas de c. On observe une augmentation de l'efficacité de diffraction quand la concentration croit de o à 56%, valeur à laquelle l'efficacité de diffraction est maximale (100%) suivie d'une décroissance pour des concentrations plus grandes.

V.3. 5. Effet de l'épaisseur :

L'effet de l'épaisseur d du réseau, sur le comportement de l'efficacité de diffraction est montré sur la figure (V.8) qui traduit les variations de l'efficacité de diffraction en fonction de l'angle d'incidence, pour deux épaisseurs du réseau (5µm et 10 µm).

On observe que l'allure de la courbe ainsi que la position des lobes principaux et celles des lobes secondaires ne dépendent pas de l'épaisseur, ce qui est normal, puisque l'angle de Bragg n'a pas une dépendance de ce paramètre épaisseur dont l'effet est de diminuer l'intensité de l'efficacité de diffraction quand il augmente.

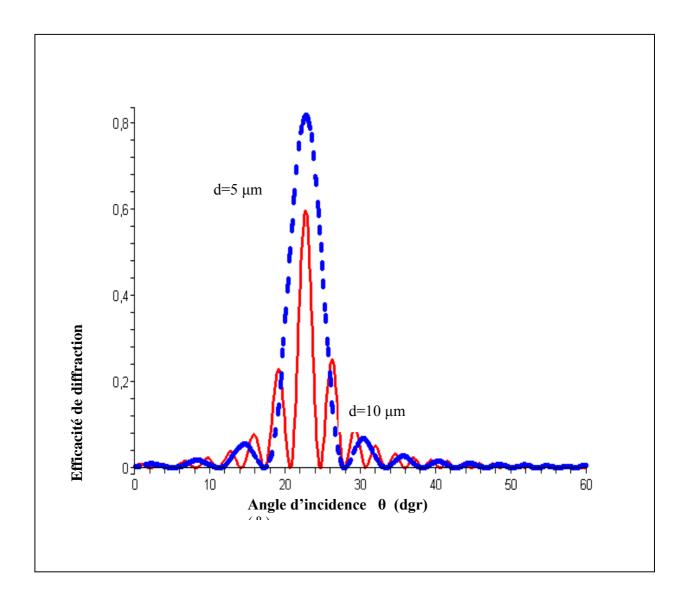


Figure (V.8): Variation de l'efficacité de diffraction η en fonction de l'angle d'incidence , pour deux épaisseurs du réseau (5 μ m et 10 μ m). La longueur d'onde est λ =0.632 μ m et la fraction volumique du cristal liquide est c=47%.

Conclusion générale

Comme les PDLC, les H-PDLC sont obtenus par une séparation de phase entre le polymère et le cristal liquide qui fait aboutir à la formation de gouttelettes de cristal liquide.

Ces systèmes sont caractérisés par une structure du polymère lorsque le matériau est exposé à une figure d'interférences créée par deux faisceaux d'enregistrement qui vont créer une figure d'interférence au niveau de l'échantillon. Dans les régions dans lesquelles les franges d'interférence sont constructives, on assiste à une forte polymérisation des monomères. Il en résulte ainsi un gradient de concentration de ces monomères qui vont migrer, par le processus de diffusion, des zones sombres (franges d'interférence destructive) vers les zones claires (franges d'interférence constructive).

Au cours de cette polymérisation structurée, les molécules de cristal liquide diffusent des régions de fort éclairement (riches en polymères) vers les régions de faible éclairement (riches en monomères). Le cristal liquide se sépare ainsi du polymère et il y a formation de domaines de cristal liquide (gouttelettes).

La fréquence spatiale du réseau holographique, appelée aussi la période de réseau ou le pas de réseau peut être variée en ajustant l'angle de l'intersection des faisceaux d'enregistrement provenant d'un laser de puissance suffisamment élevée pour pouvoir provoquer un photo polymérisation.

L'expression du rendement de diffraction, défini comme la fraction de l'énergie incidente qui se trouve dans le faisceau signal à la sortie du réseau, est établi en utilisant la théorie des ondes couplées de Kogelnick.

La caractérisation du matériau holographique diffractant se fait par l'expression théorique de cette efficacité de diffraction inclut des paramètres cruciaux, comme le pas du réseau, la longueur d'onde, la modulation d'indice, l'épaisseur du réseau pour ne citer que les principaux. Ainsi l'étude du comportement de l'efficacité de diffraction en fonction de ces divers paramètres sert à comprendre et améliorer les performances du phénomène de diffraction de ces réseaux Holo-PDLC.

La courbe obtenue, montrant le comportement de l'efficacité de diffraction en fonction de l'angle d'incidence, traduit bien la variation type de la diffraction par un réseau. Elle est caractérisée par un lobe principal correspondant à un angle d'incidence de Bragg, pour lequel l'efficacité de diffraction est maximale, et des lobes secondaires disposés de façon symétrique par rapport à ce lobe principal et dont l'intensité diminue en s'éloignant de ce dernier.

Par ailleurs, l'étude sur l'effet de la longueur d'onde montre un déplacement de l'angle de Bragg vers des valeurs élevées quand la longueur d'onde augmente. L'intensité du lobe principal, correspondant à l'angle de Bragg, est plus importante pour les grandes longueurs d'onde. Par contre les intensités des lobes secondaires sont relativement plus élevées quand celle ci est faible.

Ces résultats sont importants pour l'étude de la sélectivité spectrale

L'effet du pas du réseau sur l'efficacité de diffraction se manifeste par déplacement de la courbe vers les faibles angles d'incidence quand le pas du réseau augmente. Ce déplacement est accompagné par une valeur relativement élevée de l'intensité du lobe principal pour des pas plus importants.

En étudiant l'effet de la concentration du cristal liquide sur l'efficacité de diffraction, on a observé que la position du lobe principal et celles des lobes secondaires ne dépendent pas de cette concentration, ce qui est attendu, puisque l'angle de Bragg n'inclut pas le paramètre de la concentration. L'efficacité de diffraction est, par ailleurs, plus élevée quand la concentration est augmentée. Par contre les lobes secondaires sont plus importants quand la concentration est faible.

BIBLIOGRAPHIE

- [1]. D.Marcure(Loss analysis of single –mode fiber splices),Bell syst TechJ,Vol56,PP 703-718,1977.
- [2]. P.Chanclou,(Etude théorique et experimentale d'optique de couplage destinées à la réalisation de modules optoélectronique multivoies d'émission et de réception),thése de l'université de RENNE.1.N d'ordre 2997 Mars 2004.
- [3].W.Emkey ,et C.Jack(Analysis and évaluation of graded-index fiber-Lenses), Journal of Lightwave Technology, Vol.LT-5, N 6, PP.1156-1164, Septembre 1987.
- [4]. Fergason, J.L., Liquid crystals. Scientific. Am 211 pp 76-85 (1964).
- [5]. A. A. Collyer (Ed.). Liquid Crystal Polymers: From Structures to Applications,

Elsevier Applied Science, London (1992).

[6]. PJ Collings, M Hird, Introduction to Liquid Crystals: chemistry and physics, Taylor and

francis, London (1990).

- [7]. PS Drzaic, Liquid crystals Dispersions, World Scientific, (1995).
- [8]. F Xu, HS Kitzerow, PP Crooker, Phys. Rev. E., 49, 3061 (1974).
- [9]. B Schenble, Kontakte, Darmstadt, SID (1989).
- [10]. D Coates, J. Mater. Chem. 5, 2063 (1995).
- [11]. JW Doane, A Golemme, JL West, JB Whitehead, BG Wu, Mol. Cryst. Liq. Cryst., 165, 511 (1988).
- [12]. L. Bouteiller et P. Le Barny, Liq. Cryst., 21.157, (1996).

- [13].K.Hirabayaschi,M.wada,et C.Amano,(optical-Fiber variable-Attenuator arrays using polymer-Network liquid crystal),IEEE Photonics Technology letters Vol.13,N 5,Mars 2001.
- [14].http://perso.Wanadoo.Fr/Olivier.albenze/page-suite/Site-mat/cm/cm Pvd 4 htm.
- [15].D.Bose.M.Guilbert.C.Trubert et B.Vinouze,(Inprovenents in fabrication conditions of liquide crystal-polymer composite dells).
- [16]. J.L. WEST, ACS Symp. Ser., 435,475, (1990).
- [17]. Fergason, J.L., Liquid crystals. Scientific. Am 211 pp 76-85 (1964).
- [18]. A. A. Collyer (Ed.). Liquid Crystal Polymers: From Structures to Applications, Elsevier Applied Science, London (1992).
- [19]. J Ding, Y Yang, Jpn. J. Appl. phys., 31, 9A, 2837 (1992).
- [20]. J Ding, H Zhang, J Lu, Y Yang, Jpn. J. Appl. Phys., 34, 4A, 1928 (1995).
- [21]. CA Mc Farland, JL Koenig, JL West, Appl. Spectr., 47, 598 (1993).
- [22]. GP Crawford, DK Yang, S Zumer, D Finotello, JW Doane, Phys. Rev. Lett., 66, 6, 723 (1991).
- [23]. L Bouteiller, B LE Barny, Liq. Cryst., 21, 2, 157 (1996).
- [24]. H. Ramanitra, P. Chanclou, B. Vinouse et L. Dupont: Application of polymer dispersed liquid crystal (PDLC) nematic: optical-fiber variable attenuator. Mol.Cryst. Liq. Cryst., 404: 57-73, 2003.
- [25]. T.J. Bunning, L.V. Natarajan, V.P. Tondiglia, and R.L. Sutherland. Holographic polymer-dispersed liquid crystals (H-PDLCs). Annual Review of Material Science, 30:pp 83–115, August 2000.
- [26]. R.L. Sutherland, L.V. Natarajan, V.P. Tondiglia, T.J. Bunning, and Adams W.W. Switchable holograms in new photopolymer-liquid crystal composite materials. SPIE proceedings in 'Diffractive and Holographic Optics Technology II', 2404:pp 133–43, April 1995.

- [27]. TJ Bunning, LV Natarajan, VP Tondiglia, RL Sutherland, Annu. Rev. Mater. Sci., 115, 83 (2000).
- [28]. M Date, Y Takeuchi, K Tanaka, K Kato, Society for Information Display (SID), 7, 17 (1999).
- [29]. BEA Saleh, MC Teich, Fundamentals of Photonics, John Wiley & Sons, Inc., 149 (1991).
- [30]. YJ Liu, XW Sun, HT Dai, JH Liu, KS Xu, Optical Materials, 27, 1451 (2005).
- [31]. RL Sutherland, VP Tondigia, LV Nataranjan, Appl. Phys. Lett., 64, 1074 (1994).
- [32]. KS Anseth, CM Wang, CN Bowman, Macromolecules, 27, 650 (1994).
- [33]. NH Park, SA Cho, JY Kim, KD Suh, J. Appl. Polym. Sci., 77, 3178 (2000).
- [34]. Lord Rayleigh. On the dynamical theory of gratings. Proc. Roy. Soc., A79:pp 399–416,1907.
- [35]. R.W. Wood. On à remarquable case of uneven distribution of light in a diffraction grating spectrum. Philos. Mag., 4:pp 396–402, 1902.
- [36]. R. Petit. Contribution à l'étude de la diffraction par un réseau métallique. Rev. Opt., 45 :pp 249–276, 1966.
- [37]. D. Maystre. Sur la diffraction d'une onde plane par un réseau métallique de conductivité finie. Opt. Commun., 6 :pp 50–54, 1972.
- [38]. C. Botten, M.S. Craig, R.C. McPhedran, J.L. Adams, and J.R. Andrewartha. The dielectric lamellar diffraction grating. Opt. Acta, 28 :pp 413–428, 1981.
- [39]. P. Sheng, R.S. Stepleman, and P.N. Sanda. Exact eigenfunctions for square-wave gratings: Application to diffraction and surface-plasmon calculations. Phys. Rev. B, 26(6):pp 2907–2916, September 1982.

- [40]. M.G. Moharam and T.K. Gaylord. Three-dimensional vector coupled-wave analysis of planar grating diffraction. J. Opt Soc. Am. A, 73(9):pp 1105–1112, September 1983.
- [41]. KOGENIK, A., Bell Syst. Tech. J. 48(1969) 2909.
- [42]. MS Park, BK Kim, Nanotechnology, 17, 2012 (2006).
- [43]. JY Woo, BK Kim, Chem. Phys. Chem., 8, 175 (2007).