

Mise en forme topologique: lumière et cristaux liquides Charles Loussert

▶ To cite this version:

Charles Loussert. Mise en forme topologique : lumière et cristaux liquides. Physique [physics]. Université de Bordeaux, 2014. Français. NNT : 2014BORD0325 . tel-01249577

HAL Id: tel-01249577 https://theses.hal.science/tel-01249577

Submitted on 4 Jan 2016

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers. L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



THÈSE

PRÉSENTÉE À L'UNIVERSITÉ DE BORDEAUX

ÉCOLE DOCTORALE DES SCIENCES PHYSIQUES DE L'INGÉNIEUR

par

Charles LOUSSERT

pour obtenir le Grade de

DOCTEUR EN SCIENCES

DE L'UNIVERSITÉ DE BORDEAUX

SPÉCIALITÉ : Laser, Matière et Nanosciences

Sujet

Mise en forme topologique : lumière et cristaux liquides

Soutenue le 08 décembre 2014 devant la Commission d'examen :

$\mathbf{M}.$	G. AGEZ	Maître de conférences	Rapporteur
$\mathbf{M}.$	L. DUPONT	Professeur des universités	Rapporteur
$\mathbf{M}.$	R. WUNENBURGER	Professeur des universités	Président
$\mathbf{M}.$	P. LALANNE	Directeur de recherche	Examinateur
$\mathbf{M}.$	JC. LOUDET	Maître de conférences	Examinateur
$\mathbf{M}.$	E. BRASSELET	Chargé de recherche	Directeur de thèse
$\mathbf{M}.$	P. ADAM	Responsable du domaine photonique DGA	Membre invité
$\mathbf{M}.$	JP. HUIGNARD	Membre invité à l'Institut Langevin	Membre invité

À Anaïs,

 \dot{A} mes parents, Jacques et Monique,

Remerciements

Ce travail de recherche a été réalisé au Laboratoire Ondes et Matière d'Aquitaine, LOMA, dirigé par Jean-Pierre Delville. Je le remercie de m'avoir accepté au sein du laboratoire.

Je tiens particulièrement à remercier Régis Wunenburger et lui témoigner de ma reconnaissance pour le grand honneur qu'il m'a fait en acceptant de faire partie de mon jury ainsi que d'en assurer la présidence. Je le remercie de m'avoir fait rentrer au CPMOH lors de mon premier stage de recherche en 2008, pour sa sympathie et ses conseils.

Je remercie Gonzague Agez et Laurent Dupont d'avoir accepté d'être les rapporteurs de ce manuscrit, je remercie également les membres du jury, examinateurs et invités, Philippe Lalanne, Jean-Christophe Loudet, Philippe Adam et Jean-Pierre Huignard pour l'attention et la critique qu'ils ont porté à mes travaux.

J'adresse mes chaleureux remerciements à mon directeur de thèse Etienne Brasselet. Il m'a appris durant ces trois années (et plus) à être chercheur, à ne pas abandonner face aux difficultés de la recherche, a aiguiser ma curiosité, à accepter le défi et surtout, il m'a montré ce qu'était la passion, si fondamentale dans notre métier. Je suis admiratif de ses qualités en tant que scientifique mais je tiens également à le remercier pour sa gentillesse, son humour, sa pédagogie, sa disponibilité et pour la cohésion qu'il a su insuffler au sein de notre équipe. Merci.

Merci également à mes collègues, membres de l'équipe *Optique singulière et cristaux liquides*, Mohamed, Georgiy, Maxim, Davit, Artur, Tatiana, Mushegh, Hernando, Andrew et Kate, pour leur bonne humeur et pour les échanges culturels et scientifiques que nous avons eu.

Je remercie mes collaborateurs Ulysse Delabre (LOMA), Supitchaya Iamsaard et Nathalie Katsonis (Université de Twente, Pays-Bas) et Kateryna Kushnir (Université de Kiev, Ukraine), ainsi que toute l'équipe SLAM.

Je tiens à remercier l'ensemble du laboratoire et en particulier le service d'administration avec Annie, Isabelle, Laurette, Sophie et Suzanne, le service mécanique avec Eddie, Levi et Sandra, le service électronique avec Bernard, Sébastien et William et le service informatique avec Alain et Hassan, je remercie également Bernadette et Marc.

Merci à ma famille pour leur soutien sans faille, en particulier mes parents, pour leur amour, leur interêt, leurs conseils et leur aide à tous les niveaux. Merci à mes frères, François et Nicolas, merci pour leur fierté, vous êtes mes modèles. Merci également à Ági, Agnès, Ed et Emilie, ainsi qu'à ma petite chérie Maëlle qui fait exploser mon coeur à chaque fois que je la vois et à ma mamie pour son intérêt et son soutien.

Merci à ma belle-famille Damien, Dédé, Mado et Pam de m'avoir accompagné pendant ces trois années, une belle-famille en or !

Je remercie mes amis qui m'ont soutenu tout au long de ma thèse et particulièrement pour me changer les idées pendant le travail de rédaction, Alex, Anne-Sophie, Antoine, Aurélien, Bryan, Céline, Chiara, Fadi, Flo, Kira, Loïc, Lucie, Natasha, Nikita, Olga, Sam, Sophie, Stéphan, Thibaut, Virginie... Avec tout ce travail les voir a parfois été difficile, merci pour leur compréhension et leur affection indéfectible. Merci à tous ceux que je n'ai pas cité dans ces quelques lignes.

Enfin et je garde le meilleur pour la fin, merci à Anaïs, celle qui me porte de son amour tous les jours, je vais faire de mon mieux pour ne faire aucune faute d'orthographe dans cette phrase puisque c'est la seule qu'elle ne lira pas avant l'impression! Je la remercie pour son soutien au quotidien, de ses nombreuses et salvatrices relectures, pour ses questions pièges lors de la préparation, de ses muffins et gâteaux qui remontent si bien le moral, de ses mots qui déstressent, de ses encouragements et de sa constante bonne humeur. 1-2-1

Table des matières

Ir	ntro	ductio	on générale	7
	Sing	gularités	σ ondulatoires \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots	7
	Sing	gularités	s matérielles	9
	Ape	rçu de l	la thèse	11
		Partie	1	11
		Partie	2	12
Ι	M	ise en	forme topologique de la lumière	13
1	Pri	ncipe o	lu transfert de singularités matière/lumière	15
	1.1	Génér	ation de singularités de phase : le cas optique isotrope	15
		1.1.1	Spirale de phase	15
		1.1.2	Conversion de mode	16
		1.1.3	Hologrammes générés par ordinateur	16
	1.2	Génér	ation de singularités de phase : le cas optique anisotrope	16
		1.2.1	Milieux anisotropes et homogènes	16
		1.2.2	Milieux anisotropes et inhomogènes	17
			Principe	17
			Etat de l'art	19
2	Gér	nérateu	urs de vortex optiques à base de défauts ombilics	21
	2.1	Préser	ntation des ombilics	21
	2.2	Obser	vation et identification des ombilics	24
		2.2.1	Observation entre polariseurs linéaires croisés	24
		2.2.2	Identification de la charge topologique	25
			Observation entre polariseurs linéaires croisés mobiles	26
			Observation entre polariseurs circulaires croisés	26

		Observation en lumière blanche naturelle	27
	2.3	Un générateur de vortex accordable	28
		2.3.1 Principe	28
		2.3.2 Génération de vortex	29
		2.3.3 Comportement optimal et accordabilité	29
		2.3.4 Contrôle en temps réel du mode d'opération	32
	2.4	Conclusions	35
3	Div	ersité topologique et génération de vortex à l'aide de défauts	37
	3.1	Présentation de la texture Schlieren	37
	3.2	Observation et identification	39
	3.3	Génération de faisceaux vortex scalaires de charge topologique ar-	
		bitraire	41
	3.4	Génération de faisceaux vectoriels d'ordre arbitraire	45
	3.5	Conclusions	47
4	Pro	blématique de la résolution spatiale	49
	4.1	Principe de l'étude	50
		4.1.1 Approche théorique	50
		4.1.2 Approche expérimentale	52
	4.2	Interface spin-orbite idéale	53
	4.3	Interface spin-orbite BeamCo	54
		4.3.1 Modélisation	54
		4.3.2 Expérience et confrontation aux simulations	56
	4.4	Interface spin-orbite Schlieren	58
		4.4.1 Modélisation	58
		4.4.2 Expérience et confrontation aux simulations	61
	4.5	Interface spin-orbite ombilic	61
		4.5.1 Modélisation	61
		4.5.2 Expérience et confrontation aux simulations	64
	4.6	Conclusions	64
5	Pro	blématique de la localisation spatiale d'interfaces spin-orbite	
	mic	roscopiques	67
	5.1	Ombilic localisé : principe et analyse	68

	5.1.1 Présentation de la proposition		68
	5.1.2 Etude théorique structurelle		69
	5.1.3 Etude théorique de la génération de vortex		71
5.2	Etude expérimentale d'une interface spin-orbite localisée		73
	5.2.1 Choix des paramètres expérimentaux		73
	5.2.2 Mesure de l'efficacité de conversion		74
5.3	Mise en réseaux : vers le traitement ultra-large-bande du mome	ent	
	orbital		76
	5.3.1 Principe		76
	5.3.2 Analyse théorique générique		78
	Cas d'une interface		78
	Cas de M interfaces		79
	5.3.3 Analyse théorique : le cas des réseaux d'ombilics		81
5.4	Conclusions		82
N Str	Aise en forme topologique de la matière uctures topologiques induites sous champs dans des films	cho-	83
N Str lest	Aise en forme topologique de la matière uctures topologiques induites sous champs dans des films ériques frustrés	cho-	83 85
N Str lest 6.1	Aise en forme topologique de la matière uctures topologiques induites sous champs dans des films tériques frustrés Films cholestériques frustrés	cho-	83 85 85
N Str lest 6.1	Alise en forme topologique de la matière actures topologiques induites sous champs dans des films dériques frustrés Films cholestériques frustrés	cho-	83 85 85
N Str lest 6.1	Alise en forme topologique de la matière uctures topologiques induites sous champs dans des films rériques frustrés Films cholestériques frustrés 6.1.1 Présentation des cristaux liquides cholestériques 6.1.2 Frustration géométrique	cho-	83 85 85 85 86
N Str lest 6.1 6.2	Aise en forme topologique de la matière uctures topologiques induites sous champs dans des films rériques frustrés Films cholestériques frustrés 6.1.1 Présentation des cristaux liquides cholestériques 6.1.2 Frustration géométrique Structures topologiques localisées induites sous champs	cho -	83 85 85 85 86 87
N Str lest 6.1 6.2	Aise en forme topologique de la matière uctures topologiques induites sous champs dans des films cériques frustrés Films cholestériques frustrés 6.1.1 Présentation des cristaux liquides cholestériques 6.1.2 Frustration géométrique Structures topologiques localisées induites sous champs 6.2.1 Cas d'un champ électrique quasi-statique	cho-	83 85 85 86 87 88
N Str lest 6.1 6.2	Alise en forme topologique de la matière uctures topologiques induites sous champs dans des films cériques frustrés Films cholestériques frustrés 6.1.1 Présentation des cristaux liquides cholestériques 6.1.2 Frustration géométrique Structures topologiques localisées induites sous champs 6.2.1 Cas d'un champ électrique quasi-statique 6.2.2 Cas d'un champ lumineux	cho-	83 85 85 86 87 88 88
N Str lest 6.1 6.2	Alise en forme topologique de la matière uctures topologiques induites sous champs dans des films cériques frustrés Films cholestériques frustrés 6.1.1 Présentation des cristaux liquides cholestériques 6.1.2 Frustration géométrique Structures topologiques localisées induites sous champs 6.2.1 Cas d'un champ électrique quasi-statique 6.2.2 Cas d'un champ lumineux 6.2.3 Potentiel applicatif	cho-	83 85 85 86 87 88 88 89 90
N Str lest 5.1 5.2 5.3	Alise en forme topologique de la matière uctures topologiques induites sous champs dans des films cériques frustrés Films cholestériques frustrés 6.1.1 Présentation des cristaux liquides cholestériques 6.1.2 Frustration géométrique Structures topologiques localisées induites sous champs 6.2.1 Cas d'un champ électrique quasi-statique 6.2.2 Cas d'un champ lumineux 6.2.3 Potentiel applicatif Diversité topologique sous champ gaussien	cho-	83 85 85 85 86 87 88 89 90
N Str lest 6.1 6.2 6.3	Alise en forme topologique de la matière uctures topologiques induites sous champs dans des films cériques frustrés Films cholestériques frustrés 6.1.1 Présentation des cristaux liquides cholestériques 6.1.2 Frustration géométrique Structures topologiques localisées induites sous champs 6.2.1 Cas d'un champ électrique quasi-statique 6.2.2 Cas d'un champ lumineux 6.2.3 Potentiel applicatif Diversité topologique sous champ gaussien 6.3.1 Présentation du système choisi	cho-	83 85 85 85 86 87 88 89 90 90 91
N Strulest 6.1 6.2	Alise en forme topologique de la matière uctures topologiques induites sous champs dans des films ériques frustrés Films cholestériques frustrés 6.1.1 Présentation des cristaux liquides cholestériques 6.1.2 Frustration géométrique 6.1.2 Frustration géométrique Structures topologiques localisées induites sous champs 6.2.1 Cas d'un champ électrique quasi-statique 6.2.2 Cas d'un champ lumineux 6.2.3 Potentiel applicatif Diversité topologique sous champ gaussien 6.3.1 Présentation du système choisi 6.3.2 Résultats expérimentaux	cho-	83 85 85 85 86 87 88 89 90 90 90 91 92
N Str 6.1 6.2 6.3 6.4	Alise en forme topologique de la matière uctures topologiques induites sous champs dans des films ériques frustrés Films cholestériques frustrés 6.1.1 Présentation des cristaux liquides cholestériques 6.1.2 Frustration géométrique Structures topologiques localisées induites sous champs 6.2.1 Cas d'un champ électrique quasi-statique 6.2.2 Cas d'un champ lumineux 6.2.3 Potentiel applicatif Diversité topologique sous champ gaussien 6.3.1 Présentation du système choisi 6.3.2 Résultats expérimentaux Reconfigurabilité topologique	cho-	83 85 85 85 86 87 88 89 90 90 90 91 92 96
N Strulest 6.1 6.2 6.3 6.4 6.5	Alise en forme topologique de la matière uctures topologiques induites sous champs dans des films ériques frustrés Films cholestériques frustrés 6.1.1 Présentation des cristaux liquides cholestériques 6.1.2 Frustration géométrique Structures topologiques localisées induites sous champs 6.2.1 Cas d'un champ électrique quasi-statique 6.2.2 Cas d'un champ lumineux 6.2.3 Potentiel applicatif Diversité topologique sous champ gaussien 6.3.1 Présentation du système choisi 6.3.2 Résultats expérimentaux Reconfigurabilité topologique	cho-	83 85 85 85 86 87 88 89 90 90 90 91 92 96 97
N Str: lest 6.1 6.2 6.3 6.4 6.5 Top	Alise en forme topologique de la matière uctures topologiques induites sous champs dans des films ériques frustrés Films cholestériques frustrés 6.1.1 Présentation des cristaux liquides cholestériques 6.1.2 Frustration géométrique 6.1.2 Frustration géométrique Structures topologiques localisées induites sous champs 6.2.1 Cas d'un champ électrique quasi-statique 6.2.2 Cas d'un champ lumineux 6.2.3 Potentiel applicatif Diversité topologique sous champ gaussien 6.3.1 Présentation du système choisi 6.3.2 Résultats expérimentaux conclusions	cho-	 83 85 85 86 87 88 89 90 91 92 96 97 99

		7.1.1	Montage expérimental	99
		7.1.2	Structures de type multimère	100
		7.1.3	Auto-assemblage de structures individuelles	102
	7.2	Généra	ation contrôlée par voie électro-optique	103
		7.2.1	Structuration « bottom-up »	103
		7.2.2	Structuration « top-down »	104
	7.3	Conclu	asions	108
8	Gér	nératio	n de structures topologiques à ultra-faible puissance 1	L 0 9
	8.1	Présen	tation de l'approche opto-moléculaire	110
		8.1.1	Présentation du concept	110
		8.1.2	Choix du matériau photo-actif	111
		8.1.3	Principe de l'expérience	112
	8.2	Appro	che opto-moléculaire localisée	113
		8.2.1	Faisceau d'écriture gaussien	114
		8.2.2	Faisceau d'écriture vortex	115
		8.2.3	Reversibilité	116
	8.3	Appro	che opto-moléculaire étendue	117
	8.4	Conclu	asions	119
9	Mé	moire s	spin-optique à cristaux liquides 1	$\lfloor 21$
	9.1	Hélicit	é du photon	122
	9.2	Démor	nstration expérimentale de principe	122
		9.2.1	Genèse de l'idée	122
		9.2.2	Résultats	123
		9.2.3	Dynamique d'écriture	125
	9.3	Influer	nce de l'angle d'incidence d'écriture	126
	9.4	Influer	nce du moment angulaire incident	127
	9.5	Influer	nce de la chiralité du cholestérique	129
	9.6	Conclu	sions	130

C	onclusion	131
A	nnexes	134
\mathbf{A}	Table des cristaux liquides utilisés	135
в	Mesure des paramètres de Stokes	137
С	Configurations métastables de structures opto-induites dans cristal liquide cholestérique	un 139
D	Remerciements opto-moléculaires	143
Bi	bliographie	152

Introduction générale

Les développements liés au stockage et à la transmission de l'information ont toujours été au coeur des préoccupations de nos civilisations. La recherche de systèmes permettant d'une part, de transmettre plus d'information dans un temps toujours plus court et d'autre part, de stocker de manière fiable et pérenne l'information, ont ainsi façonné nos modes de vie. Il est ainsi devenu nécessaire d'innover sans cesse notre manière de traiter l'information.

Dans cette thèse nous traiterons de la mise en forme topologique (i) de la lumière pour la génération d'une information optique de nature dite « orbitale » et (ii) de la matière, par exemple en vue d'un stockage de l'information. On entend par mise en forme topologique une modification structurelle ondulatoire ou matérielle caractérisée par une singularité. En l'occurrence, dans le cadre de cette thèse, il s'agira de vortex optiques et de défauts topologiques de cristaux liquides, qui sont brièvement introduits dans ce qui suit.

Singularités ondulatoires

La première partie de nos travaux de recherche correspond au thème de l'optique dite « singulière », qui étudie les singularités des champs lumineux. De manière générale, une singularité lumineuse correspond à un endroit de l'espace où une des propriétés de la lumière n'est pas définie ou varie subitement. Ces singularités peuvent être de différentes natures : d'amplitude, de phase ou de polarisation, leurs origines se croisent au début du XIX^e siècle [1].

Les singularités d'intensité (ou d'amplitude), qu'on ne trouve à proprement parler qu'en optique géométrique, correspondent en pratique à des changements abrupts de l'amplitude d'un champ lumineux. Un cas d'école correspond aux caustiques (i.e. des enveloppes de rayons lumineux réfractés ou réfléchis par une surface courbée), que l'on peut par exemple observer au fond d'une piscine. Les singularités de polarisation ont quant à elles été découvertes par Hamilton dans les années 1830 et s'obtiennent facilement lorsqu'un champ lumineux interagit avec un matériau anisotrope. Elles sont aussi présentes dans la lumière naturelle du jour. Ces singularités correspondent à un état de polarisation spatialement inhomogène caractérisé par des points de l'espace où une des propriétés de la polarisation n'est pas définie (par exemple l'azimuth de l'ellipse de polarisation ou le degré de polarisation).

Les singularités de phase, qui seront notre principal sujet d'étude, furent également découvertes dans les années 1830 suite à l'étude des marées océaniques par Whewell, qui vint à conclure qu'il devait exister un point (ou plutôt une zone) où il n'y a pas de marée et où la profondeur de l'eau ne change donc pas. Ce faisant, il a mis à jour les singularités de phase associées aux ondes constituant les marées. Ce concept, par essence scalaire, s'applique à tout type d'onde, et a fortiori aux ondes lumineuses. Le champ électromagnétique associé à une singularité de phase peut être localement décrit par une amplitude ayant une dépendance azimutale de la forme $\exp(i\ell\varphi)$, où φ est l'angle azimutal du plan dans lequel elle est décrite et $\ell \in \mathbb{Z}$, appelé charge topologique, caractérise l'enroulement local de la phase. En pratique, on appelle souvent un faisceau lumineux portant une singularité en tant que telle.

Une étape clé dans l'étude des singularités de phase fut l'article de Allen et al. en 1992 [2], où il est démontré qu'un champ lumineux ayant une amplitude de la forme $E \propto \exp(i\ell\varphi)$ transporte un moment angulaire orbital de $\ell\hbar$ par photon. Ces travaux ont permis de prendre conscience que les champs électromagnétiques portant un moment angulaire orbital par photon bien défini étaient facilement accessibles en laboratoire. Un cas particulier correspond aux modes de Laguerre-Gauss, qui forment une base complète de solutions de l'équation d'Helmholtz paraxiale et dont l'amplitude complexe s'écrit :

$$A_{p,\ell}(r,\varphi,z) \propto \frac{w_0}{w(z)} \left[\frac{r}{w(z)} \right]^{|\ell|} \exp\left[-\frac{r^2}{w^2(z)} \right] L_p^{|\ell|} \left(\frac{2r^2}{w^2(z)} \right) \exp\left[i\ell\varphi \right]$$
$$\exp\left[\frac{ikr^2z}{2(z^2+z_R^2)} \right] \exp\left[-i(2p+|\ell|+1)\zeta(z) \right] \tag{1}$$

où :

- (r, φ, z) sont les coordonnées cylindriques,
- -z est la distance au point le plus étroit du faisceau le long de l'axe de propagation du faisceau,
- $w(z) = w_0 \sqrt{1 + (z/z_R)^2}$ est la distance à l'axe z où l'amplitude du champ diminue à 1/e de sa valeur sur l'axe avec $w_0 = w(0)$, $z_R = \pi w_0^2 / \lambda$ la distance de Rayleigh et λ la longueur d'onde,
- $-k = 2\pi/\lambda$ est le nombre d'onde,
- $-\zeta(z) = \operatorname{atan}(z/z_R)$ est la phase de Gouy pour un champ gaussien,
- $L_p^{|\ell|}$ sont les polynômes de Laguerre généralisés avec $\ell \in \mathbb{Z}$ l'indice azimutal et $p \in \mathbb{N}$ l'indice radial.

Dans la suite de la thèse, nous n'utiliserons que les faisceaux Laguerre-Gauss d'ordre radial p = 0, pour lesquels $L_0^{|\ell|}(x) = 1$ quel que soit ℓ , et dont les profils d'intensité et de phase sont montrés sur la Figure 1 pour $-3 \leq \ell \leq +3$. On note que la singularité de phase est associée à un zéro d'amplitude.



FIGURE 1: Profils transverses d'intensité (haut) et de phase (bas) des faisceaux de Laguerre-Gauss $LG_{p,\ell}$ avec p = 0 et $-3 \leq \ell \leq +3$ à z = 0.

Singularités matérielles

Les cristaux liquides sont caractérisés par l'absence d'ordre positionnel à longue portée, ce qui leur confère leur caractère liquide, mais possèdent un ordre orientationnel auquel est associé leur caractère cristallin. Il existe différentes classes de cristaux liquides et ceux que nous rencontrerons sont de la famille des thermotropes, où c'est la température qui est le paramètre contrôlant l'apparition de différentes mésophases. De manière générale, à une mésophase donnée sont associées certaines symétries et l'importance des orientations est jaugé par ce que l'on appelle le paramètre d'ordre [3, 4]. En phase nématique, les molécules ont tendance à être localement parallèles les unes des autres, et on décrit la structure orientationnelle du matériau à l'aide d'un vecteur unitaire \mathbf{n} , appelé directeur, qui désigne l'orientation moyenne locale des molécules avec l'équivalence $\mathbf{n} \leftrightarrow -\mathbf{n}$.

Les cristaux liquides sont des matériaux de prédilection pour observer les singularités matérielles, et dans certains cas, l'orientation imposée par les conditions aux limites du système rend impossible l'obtention d'un champ de directeur continu. On obtient alors des endroits, appelés défauts topologiques, où le paramètre d'ordre des cristaux liquides chute. On parle alors de défaut topologiques singuliers. On peut aussi obtenir des défauts topologiques non singuliers, où le champ de directeur est bien défini en tout point alors que son orientation dans un plan donné n'est pas définie à ces endroits.

De manière générale, les défauts topologiques dans les cristaux liquides sont soit ponctuels (0D), soit linéaires (1D) et dans ce cas souvent appelés lignes de disinclinaisons. L'observation de défauts est si courante qu'ils sont souvent choisis pour illustrer les ouvrages sur les cristaux liquides, voir Fig. 2.



FIGURE 2: De gauche à droite : Couvertures des livres de Chandrasekhar [5], Oswald et Pieranski [4] et Dierking [6].

Aperçu de la thèse

Partie 1

La première partie de cette thèse sera consacrée à la mise en forme topologique de la lumière à l'aide de défauts matériels via un processus de transfert de singularités de la matière à la lumière. Cette étude est basée sur l'utilisation de défauts topologiques de différentes natures au sein de films de cristaux liquides nématiques en interaction avec un faisceau gaussien pour la génération de faisceaux vortex.

Dans le chapitre 1, nous présenterons le principe de transfert de singularités de la matière à la lumière lorsque celle-ci se propage dans un milieu anisotrope. Celui-ci se fait grâce à l'interaction dite « spin-orbite » de la lumière qui couple son état de polarisation et la distribution spatiale de sa phase. Nous commente-rons le choix des cristaux liquides nématiques et introduirons leur potentiel en terme de miniaturisation.

Nous introduirons ensuite, dans le chapitre 2, les défauts topologiques de type ombilics et nous montrerons leur capacité à transformer un faisceau incident gaussien en un vortex de charge topologique $\ell = \pm 2$, via l'interaction spin-orbite. Nous verrons que la génération de faisceaux vortex est accordable en longueur d'onde et reconfigurable en temps réel grâce à l'application d'un champ électrique quasi-statique.

Dans le chapitre 3, nous lèverons la limitation liée à la charge topologique des vortex générés par des défauts ombilics grâce à l'utilisation de disinclinaisons. Ce faisant, la génération de faisceaux vortex de charge arbitraire sera démontrée expérimentalement.

Dans le chapitre 4, nous discuterons la problématique de la résolution spatiale des deux interfaces spin-orbite « naturelles » (au sens où la structuration matérielle associée résulte d'un processus spontané) présentées dans les chapitres 2 et 3. Nous montrerons à quel point leurs résolutions spatiales surpassent les meilleurs dispositifs basés sur l'utilisation de structuration topologique artificielle de cristaux liquides.

Enfin, dans le chapitre 5 nous aborderons la problématique de la localisation de défauts topologiques, avec la proposition et la réalisation d'une approche originale. Ces résultats nous mèneront au principe de la mise en réseau de défauts localisés pour le contrôle ultra-large-bande (en longueur d'onde) du moment orbital de la lumière.

Partie 2

La deuxième partie de cette thèse sera consacrée à la mise en forme topologique de la matière à l'aide de la lumière. Cette étude est basée sur la génération de structures métastables de défauts dans des films de cristaux liquides cholestériques (i.e. des nématiques chiraux), dont le potentiel d'application pour le stockage de l'information sera discuté.

Plus précisément, dans le chapitre 6, nous étudierons la possibilité de générer différents types de structures chirales de défauts microscopiques à partir de champs (électriques ou optiques) non singuliers. Nous verrons en quoi ces résultats vont au-delà de l'état de l'art associant diversité topologique matérielle induite sous champs à la nécessité de l'utilisation de champs singuliers.

Dans le chapitre 7, nous étendrons les résultats du chapitre précédent à la génération de structures de défauts plus complexes. Nous présenterons différentes approches permettant de contrôler leur apparition à la demande, tout en préservant leur potentiel de reconfigurabilité.

Dans le chapitre 8, nous aborderons la question du coût énergétique quant à la génération de défauts métastables localisés, qui conditionne le potentiel applicatif en terme de stockage massif de données. Nous montrerons qu'il est possible de diminuer de plusieurs ordres de grandeur (par rapport aux situations présentées dans les chapitres 6 et 7) la puissance optique nécessaire à la génération de structures métastables grâce à la proposition d'une activation dite « optomoléculaire ».

Enfin, dans le chapitre 9, nous présenterons un résultat surprenant : la génération optique, de manière contrôlée et robuste, de structures métastables de chiralité supra-moléculaire distinctes au sein d'un matériau de chiralité intrinsèque donnée, et ce, en ne jouant que sur l'hélicité du champ d'écriture. Ceci nous conduira à la mise en place d'un nouveau concept : le stockage de l'information lié à l'hélicité des photons, autrement dit des mémoires spin-optiques à cristaux liquides.

Première partie

Mise en forme topologique de la lumière

Principe du transfert de singularités matière/lumière

Il existe une multitude de techniques permettant de générer des faisceaux vortex. Dans ce chapitre, nous allons présenter les plus classiques d'entre elles en distinguant le cas des matériaux optiquement isotrope et anisotrope.

1.1 Génération de singularités de phase : le cas optique isotrope

1.1.1 Spirale de phase

L'utilisation d'un masque de phase en spirale est probablement la méthode la plus directe pour imprimer à un champ lumineux un profil de phase spiralé. Une option consiste à utiliser une lame diéléctrique transparente dont l'épaisseur h varie linéairement avec l'angle azimutal φ autour d'un point origine selon $h(\varphi) = h_0 + h_1 \varphi/(2\pi)$ avec h_0 la hauteur de la base de la lame et h_1 la hauteur de la marche après une révolution complète. Un champ lumineux passant au travers d'une telle lame va donc acquérir un terme d'amplitude $\exp(i\ell\varphi)$ avec $\ell = h_1(n - n_0)/\lambda$ pour une lame d'indice n dans un milieu d'indice n_0 [7,8], autrement dit on aura la génération d'un vortex optique de charge topologique ℓ . Toutefois de tels masques de phase ne fonctionnent que pour une longueur d'onde et une charge topologique données (un ajustement restant toujours possible a posteriori [9]), et les relativement faibles valeurs de hauteur de marche pour le domaine visible impliquent des technologies de fabrication élaborées.

1.1.2 Conversion de mode

L'utilisation de lentilles cylindriques est aussi un moyen de manipuler la distribution spatiale de la phase d'un champ lumineux. L'idée consiste à convertir un mode d'Hermite-Gauss en un mode de Laguerre-Gauss à l'aide d'une paire de lentilles cylindriques [2, 10]. Cette approche est très efficace, même si la préparation d'un mode d'Hermite-Gauss et les conditions d'alignement des lentilles rendent cette méthode contraignante en pratique. De fait, cette approche n'est pas utilisée si le seul but est l'obtention d'un vortex optique.

1.1.3 Hologrammes générés par ordinateur

La génération d'une singularité de phase peut aussi se faire via la diffraction de la lumière sur un réseau diffractant possédant une singularité. Une telle approche repose le plus souvent sur l'utilisation d'un modulateur de phase spatial qui consiste en une matrice à cristaux liquides où chacun des pixels, adressable électriquement, permet de contrôler localement la phase du masque résultant. Le principe consiste alors à encoder un réseau de phase qui correspond à l'interférence entre un champ référence (en général gaussien) et le champ que l'on veut générer. L'illumination du masque de phase obtenu par le champ de référence va conduire, par diffraction, à la génération du champ souhaité.

Cette technologie a l'intérêt d'offrir une reconfigurabilité, qui reste cependant limitée à un rafraîchissement maximal de l'ordre de la centaine de Hz. De plus, cette méthode dépend de la longueur d'onde, et a ses limites en termes de résolution, dues au nombre fini de pixels (typiquement de l'ordre d'un mégapixel pour les dispositifs commerciaux dont les surfaces sont de l'ordre du cm²). En pratique, c'est la méthode la plus utilisée en laboratoire.

1.2 Génération de singularités de phase : le cas optique anisotrope

1.2.1 Milieux anisotropes et homogènes

De manière générale, la propagation de la lumière dans un milieu optiquement anisotrope conduit à une distribution inhomogène des propriétés du champ. L'apparition de singularités de phase en est une conséquence naturelle. L'utilisation de cristaux uniaxes ou biaxes homogènes se révèle être une approche à la fois simple, robuste et relativement efficace pour structurer la phase d'un champ donné [11]. En particulier, un faisceau gaussien de polarisation circulaire se propageant le long de l'axe optique d'un cristal uniaxe génère un faisceau vortex de polarisation orthogonale et de charge $\ell = \pm 2$ [12,13]. A incidence oblique, un vortex de charge $\ell = \pm 1$ peut aussi être obtenu avec un champ polarisé linéairement [14, 15].

Ces techniques de génération de faisceaux singuliers à l'aide de cristaux solides sont très robustes aux flux lumineux et sont adaptées à une large gamme de longueur d'onde et de champs (continus ou pulsés), ce qui en fait leur intérêt pratique. Cependant, ce type de méthode n'est pas très flexible en termes de reconfigurabilité en temps réel et de diversité topologique. En effet, passer d'une charge 1 à une charge 2 nécessite de modifier l'angle d'incidence et l'état de polarisation du faisceau incident. De plus, il est nécessaire de « cascader » cette approche pour avoir accès à des charges topologiques supérieures. Enfin, l'efficacité de conversion d'un faisceau gaussien incident en un faisceau vortex reste inférieure aux techniques citées précédemment, avec une efficacité maximale de 50% pour le cas $\ell = \pm 2$ [16] et de 75% pour le cas $\ell = \pm 1$ [15]. On note toutefois qu'une mise en forme appropriée du champ incident permet d'atteindre 100% [17].

1.2.2 Milieux anisotropes et inhomogènes

Principe

L'utilisation de milieux à la fois anisotropes et inhomogènes permet un contrôle plus poussé des inhomogénéités du champ résultant de la propagation de la lumière. Concrètement, en 2002, Biener et al. exploitent le fait qu'un réseau périodique sous-longueur d'onde agit comme une lame à retard dont les lignes neutres correspondent aux directions parallèle et perpendiculaire au vecteur d'onde du réseau. En fabriquant une distribution inhomogène appropriée de l'orientation d'un réseau sous-longueur d'onde, ils obtiennent des vortex optiques dont la charge dépend de la distribution choisie [18]. L'apparition de ces vortex optiques résulte de l'interaction spin-orbite pour la lumière, qui correspond à un couplage entre l'état de polarisation (associé au moment angulaire de spin) et la distribution spatiale de la phase (associée au moment angulaire orbital).

Pour en expliquer le principe, considérons une la character et localement uniaxe, dont l'orientation de l'axe optique, dans le plan de la lame, est défini par l'angle ψ formé avec l'axe **x** (voir Fig. 1.1) selon :

$$\psi(\varphi) = s\varphi + \varphi_0 \tag{1.1}$$

où φ est l'angle azimutal, s est la charge topologique demi-entière (en vertu de l'équivalence $\psi \leftrightarrow \psi + \pi$) de la singularité matérielle associée à l'orientation de l'axe optique à l'origine, et φ_0 est une constante. On illumine alors cette lame à incidence normale par une onde plane de fréquence angulaire ω , de vecteur d'onde k et de polarisation circulaire dont le champ complexe est écrit :

$$\mathbf{E}_{\rm in} = E_0 e^{-i(\omega t - kz)} \mathbf{e}_{\sigma} \quad \text{avec} \quad \mathbf{e}_{\sigma} = \frac{\mathbf{x} + i\sigma \mathbf{y}}{\sqrt{2}} \tag{1.2}$$

où $\sigma = \pm 1$ correspond à une polarisation circulaire gauche ou droite, respectivement. Le champ à la sortie de la lame (dont la face d'entrée définit l'origine z = 0) est alors obtenu, en négligeant la diffraction, à partir du formalisme de Jones :

$$\mathbf{E}_{\rm out} = \hat{J} \mathbf{E}_{\rm in} \tag{1.3}$$

où \hat{J} est la matrice de Jones de la lame à retard inhomogène. Celle-ci s'écrit



FIGURE 1.1: Schéma d'une lame constituée d'un matériau biréfringent uniaxe d'épaisseur L dont l'orientation de l'axe optique dans le plan de la lame est défini au point $M(r, \varphi)$ par l'angle $\psi(\varphi) = s\varphi + \varphi_0$.

 $\hat{J} = R(-\psi)\hat{P}\hat{R}(\psi)$ avec

$$\hat{R}(\psi) = \begin{pmatrix} \cos\psi & \sin\psi \\ -\sin\psi & \cos\psi \end{pmatrix}$$
(1.4)

la matrice de rotation autour de l'axe z et

$$\hat{P} = \begin{pmatrix} e^{ikn_{\parallel}L} & 0\\ 0 & e^{ikn_{\perp}L} \end{pmatrix}$$
(1.5)

la matrice de propagation à travers la lame, où n_{\parallel} et n_{\perp} sont respectivement les indices de réfraction parallèle et perpendiculaire à l'axe optique et L est l'épaisseur de la lame traversée. En introduisant le retard de phase associé à la biréfringence, $\Delta = k(n_{\parallel} - n_{\perp})L$, on obtient après calculs :

$$\mathbf{E}_{\text{out}} = E_0 e^{-i\omega t} e^{ikn_\perp L} e^{i\frac{\Delta}{2}} \left[\cos\left(\frac{\Delta}{2}\right) \mathbf{e}_{\sigma} + i\sin\left(\frac{\Delta}{2}\right) e^{i2\sigma\psi} \mathbf{e}_{-\sigma} \right]$$
(1.6)

Le faisceau transmis est donc la somme de deux composantes de polarisation circulaires orthogonales dont les contributions respectives dépendent essentiellement du retard de phase Δ associé à la biréfringence. En particulier, la composante du champ de polarisation orthogonale à celle du faisceau incident (i.e. le terme proportionnel à $\mathbf{e}_{-\sigma}$ dans l'Eq. (1.6)) porte une singularité de phase de charge topologique $\ell = 2\sigma s$. En particulier, lorsque $\Delta = \pi$, on obtient un faisceau vortex « pur » en sortie. On résume cela dans le cas général d'un champ incident polarisé circulairement et portant une singularité de phase de charge ℓ par l'opération suivante :

$$|\sigma,\ell\rangle \xrightarrow{\Delta=\pi} |-\sigma,\ell\pm 2\sigma s\rangle \tag{1.7}$$

Etat de l'art

Les travaux de départ de Biener et al. [18] ont été réalisés pour des longueurs d'onde de l'ordre de 10 μ m, ce qui permettait une fabrication plus aisée des structures sous-longueur d'onde. Si l'extension au domaine visible ne correspond en principe qu'à un développement technologique faisant appel aux techniques de nano-fabrication, on peut aussi s'en affranchir. C'est ce qu'ont montré Marrucci

et al. en 2006 avec la réalisation de lames à retard inhomogènes macroscopiques à base de cristaux liquides [19]. Il s'agit d'utiliser un film de cristal liquide nématique dont les conditions aux limites vont imposer un alignement du directeur satisfaisant à l'équation (1.1). Depuis, les techniques d'alignement inhomogène ont beaucoup progressé [20–23] et de nombreuses interfaces macroscopiques spinorbite à cristaux liquides ont vu le jour. Toutefois, les interfaces macroscopiques résultant d'une structuration artificielle de l'orientation du directeur restent relativement mal définies à l'échelle microscopique, et ce même pour les meilleures technologies développées à ce jour, comme on le verra au chapitre 4.

C'est dans ce contexte que l'utilisation de défauts topologiques de cristaux liquides utilisés comme interfaces spin-orbite optiques prend place. L'idée est que le caractère spontané de la structuration naturelle des cristaux liquides en défauts topologiques offre potentiellement un « court-circuit » à la course à la miniaturisation. C'est tout l'objet de la première partie de cette thèse dont l'élément déclencheur a été le travail de Brasselet et al., en 2009, démontrant qu'une goutte nématique possédant un défaut en son centre peut générer des vortex optiques [24]. On note toutefois que l'utilisation de défauts naturels de cristaux liquides pour générer ce type de faisceaux avait été proposée en 2000 par Voloschenko et Lavrentovich [25] via l'utilisation de dislocations. Cette approche, qui n'est cependant ni très efficace ni flexible, est le pendant microscopique des hologrammes singuliers (voir la section 1.1.3) et ne correspond donc pas à l'approche spin-orbite qui retient notre attention.

Générateurs de vortex optiques à base de défauts ombilics

Comme nous l'avons vu au chapitre précédent, les deux premières démonstrations de l'utilisation de défauts topologiques de cristaux liquides [24, 25] ne permettent pas la génération de vortex optiques avec une efficacité de 100%. C'est dans ce contexte que nous avons initié un travail ayant pour objectif de développer une approche exempte d'une technologie de structuration artificielle et ayant une efficacité optimale.

Dans ce chapitre nous montrons que les défauts topologiques générés électriquement au sein d'un film nématique aligné verticalement et possédant une anisotropie diélectrique négative, les ombilics, peuvent être utilisés comme des encodeurs basés sur l'interaction spin-orbite de la lumière ayant une efficacité de conversion proche de 100%. On montre également que la longueur d'onde et le mode d'opération d'une telle interface spin-orbite peuvent être contrôlés en temps réel en appliquant une faible tension. Enfin, la petite taille des éléments optiques obtenus en fait des candidats intéressants pour des applications concernant le contrôle de l'état orbital de la lumière, comme cela sera discuté au chapitre 5.

2.1 Présentation des ombilics

Lorsqu'un film de cristal liquide nématique homéotrope (i.e. l'orientation du directeur perpendiculaire au plan du film) est soumis à l'action d'un champ électrique normal au plan du film, ceci conduit à la réorientation du directeur si l'anisotropie diélectrique du cristal liquide est négative. En effet, dans ce cas le directeur tend à s'aligner perpendiculairement au champ appliqué, la réorientation ayant lieu au-dessus d'une tension seuil U = V, voir Figure 2.1. Le plan de réorientation étant dégénéré, des défauts peuvent se former spontanément, comme l'a montré Rapini il y a 40 ans [26].

FIGURE 2.1: (a) Vue transverse schématique d'un film de cristal liquide d'épaisseur L orienté perpendiculairement à l'état initial. (b) Apparition de défauts topologiques non singuliers appelés ombilics lorsque l'on applique une tension de fréquence f dont l'amplitude U est supérieure à une valeur seuil notée V lorsque les cristaux liquides présentent une anisotropie diélectrique négative $\varepsilon_a^{(f)}$.

Ces défauts, que Rapini appelle ombilics, correspondent à un profil de réorientation du directeur qu'il suppose de la forme :

$$\mathbf{n} = (\sin\vartheta\cos\psi, \sin\vartheta\sin\psi, \cos\vartheta) \tag{2.1}$$

avec $\psi = s\varphi + \varphi_0$ où φ désigne l'angle azimutal, φ_0 une constante et s la charge topologique telle que $s = \pm 1$ et avec ϑ une fonction de r et z ayant la forme simplifiée suivante :

$$\vartheta(r,z) = \theta(r)\sin\left(\pi\frac{z}{L}\right)$$
 (2.2)

avec *L* l'épaisseur du film, $\theta(0) = 0$ et où la valeur asymptotique $\theta(r \to \infty) = \theta_{\infty}$ est donnée par :

$$\theta_{\infty} = \left[\frac{2(\tilde{U}^2 - 1)}{\frac{K_1}{K_3} - \frac{\varepsilon_a^{(f)}}{\varepsilon_{\parallel}^{(f)}}\tilde{U}^2}\right]^{\frac{1}{2}}$$
(2.3)

où K_1 et K_3 sont les constantes élastiques de Frank associées aux déformations de type éventail et flexion, respectivement [4] et $\varepsilon_a^{(f)} = \varepsilon_{\parallel}^{(f)} - \varepsilon_{\perp}^{(f)}$ l'anisotropie de la permittivité diélectrique relative avec $\varepsilon_{\parallel,\perp}^{(f)}$ la permittivité parallèle et perpendiculaire au directeur **n** à la fréquence f. Enfin, $\tilde{U} = U/V$ est la tension normalisée par la tension seuil de Fréedericksz :

$$V = \pi \left(\frac{K_3}{\varepsilon_0 \mid \varepsilon_a^{(f)} \mid}\right)^{\frac{1}{2}}$$
(2.4)

avec $\varepsilon_0 = 8.85 \times 10^{-12} \text{m}^{-3} \text{kg}^{-1} \text{s}^4 \text{A}^2$ la permittivité du vide. Plus précisément, Rapini a montré qu'une approche bidimensionnelle de ces défauts conduit à une détermination de l'amplitude du tilt normalisée, $a(r) = \theta(r)/\theta_{\infty}$ qui satisfait l'équation différentielle universelle suivante [26] :

$$\frac{d^2a}{d\rho^2} + \frac{1}{\rho}\frac{da}{d\rho} + \left(1 - \frac{1}{\rho^2}\right)a - a^3 = 0$$
(2.5)

où on introduit la coordonnée radiale normalisée $\rho = r/r_c$, avec r_c le rayon de



FIGURE 2.2: Vue équatoriale et méridionale des différentes structures observables pour des ombilies de charges topologiques $s = \pm 1$. On peut distinguer deux cas possibles pour les ombilies de charge s = +1 dépendamment des propriétés du matériau utilisé. K_1 et K_2 désignent les constantes élastiques de Frank liées aux déformations de type éventail et torsion, respectivement. Les flèches représentent le directeur des cristaux liquides, c'est-à-dire l'orientation moyenne locale des molécules. Ce schéma est inspiré de la figure 3 de la référence [26].

coeur du défaut tel que :

$$r_c = \frac{L}{\pi} \left(\frac{K_{\text{eff}}}{K_3}\right)^{\frac{1}{2}} \left(\tilde{U}^2 - 1\right)^{-\frac{1}{2}}$$
(2.6)

avec K_{eff} une constante élastique effective qui dépend des constantes élastiques de Frank, de la charge topologique *s* du défaut et de la constante φ_0 (voir Eq. (1.1) et Fig. 2.2).

La solution de l'équation (2.5) est obtenue numériquement et est présentée sur la Figure 2.3(a). Cette solution est complétée par la dépendance de r_c/L en fonction de \tilde{U} qui est présentée sur la Figure 2.3(b) dans le cas du cristal liquide utilisé en pratique (MLC-2079, produit par Merck) pour lequel $K_{\text{eff}} = K_2 \approx K_3/2$. On constate que lorsque la tension appliquée est de l'ordre de quelques fois la tension seuil, le coeur du défaut est très petit devant l'épaisseur de l'échantillon. De plus, la valeur asymptotique de la solution $a(\rho)$ est atteinte lorsque la distance au centre du défaut est de l'ordre de quelques r_c .



FIGURE 2.3: (a) Solution de l'équation (2.5). (b) Evolution du rayon de coeur du défaut r_c normalisé par l'épaisseur de l'échantillon L en fonction de la tension appliquée U normalisée par la tension seuil V.

2.2 Observation et identification des ombilics

2.2.1 Observation entre polariseurs linéaires croisés

Nous avons utilisé un film de cristal liquide nématique d'épaisseur $L = 15 \ \mu m$, qui définit le plan (x, y), contenu entre deux lames de verre dont la surface est recouverte d'une électrode transparente – de l'oxyde d'indium-étain – et traitée par le surfactant CTAB (cetyl trimethylammonium bromide) qui permet d'obtenir un ancrage homéotrope de sorte que le directeur au repos est perpendiculaire au plan du film. Nous avons choisi d'utiliser le nématique MLC-2079, qui présente une anisotropie diélectrique négative aux basses fréquences, $\epsilon_a^{(f)} = \epsilon_{\parallel}^{(f)} - \epsilon_{\perp}^{(f)} = -6.1$ avec $\epsilon_{\parallel}^{(f)} = 4.1$ et $\epsilon_{\parallel}^{(f)} = 10.2$ à f = 1 kHz. Ainsi, au-dessus d'une tension seuil $V = 1.83 V_{\rm rms}$, définie par l'équation (2.4), on observe l'apparition spontanée d'ombilics facilement observables entre polariseurs croisés sous la forme de croix noires, comme on le voit sur la Figure 2.4. Le centre d'une croix correspond à l'emplacement d'un défaut tandis que les lignes noires correspondent aux endroits où la projection du directeur dans le plan du film est orientée parallèlement à la ligne neutre d'un des deux polariseurs.



100 µm

FIGURE 2.4: Visualisation en lumière blanche de l'apparition spontanée d'ombilics entre polariseurs linéaires croisés sous une tension de $U = 25 V_{\rm rms}$.

2.2.2 Identification de la charge topologique

La simple observation d'ombilics entre polariseurs croisés n'est pas forcément suffisante pour identifier la charge topologique $s = \pm 1$ du défaut, ce qui est illustré sur la Figure 2.4. En effet, cette image correspond à une assemblée de défauts $s = \pm 1$ qu'il n'est pas possible de différencier sans observation complémentaire. Dans ce qui suit, nous présentons plusieurs méthodes pour déterminer leurs charges topologiques.

Observation entre polariseurs linéaires croisés mobiles

La méthode la plus souvent employée, consiste à observer les défauts entre polariseurs linéaires croisés et à faire tourner la paire de polariseurs dans le plan du film. La rotation relative de la croix noire caractérisant le défaut par rapport au sens de rotation de la paire de polariseurs donne accès à la charge topologique du défaut observé. En effet, une rotation dans le sens horaire de la paire de polariseurs conduit à une rotation horaire de la croix noire associée à un ombilic de charge topologique s = +1, tandis qu'elle conduit à une rotation anti-horaire lorsque s = -1. Ceci est illustré en Figure 2.5.



FIGURE 2.5: Identification de la charge topologique d'un ombilic à l'aide d'une paire de polariseurs. (a-b) et (c-d) Défauts de charges $s = \pm 1$, respectivement. Les lignes blanches représentent les lignes de champ du directeur dans le plan du film. Les flèches indiquent la direction des polariseurs croisés, avec une légère rotation de (a) à (b) et de (c) à (d) qui conduit à une rotation de la croix noire dans un sens ou dans l'autre selon le signe de s.

Observation entre polariseurs circulaires croisés

Une autre méthode de détermination consiste à appliquer une tension Uproche de la tension seuil V et à observer les défauts entre polariseurs circulaires croisés. Pour le comprendre, il faut tout d'abord réaliser que dans le cas d'un défaut de charge s = +1, une seule constante élastique est impliquée dans la réorientation transverse des cristaux liquides (voir Fig. 2.2) et le déphasage total Δ associé à la biréfringence subi par le faisceau ne dépend que de la coordonnée radiale r, $\Delta = \Delta(r)$. Dans le cas d'un défaut de charge s = -1, les deux constantes K_1 et K_2 sont impliquées (voir Fig. 2.2) et comme en pratique $K_1 \neq K_2$, le profil de réorientation longitudinal n'est plus axisymétrique¹. Le déphasage total Δ dépend alors des deux coordonnées polaires r et φ , $\Delta = \Delta(r, \varphi)$.

Ensuite, il faut rappeler que l'intensité transmise entre polariseurs circulaires croisés est donnée par le deuxième terme de l'équation (1.6), autrement dit $I \propto \sin^2(\Delta/2)$. Ainsi, on observe une distribution d'intensité axisymétrique si $\Delta = \Delta(r)$, soit s = +1, alors qu'on observe un profil non axisymétrique si $\Delta = \Delta(r, \varphi)$, soit s = -1, voir sur la Figure 2.6. L'intérêt de travailler près du seuil, $U \gtrsim V$, est lié à la divergence du rayon de coeur lorsque $U \rightarrow V$ par valeur supérieure (Eq. (2.6) et Fig. 2.3(b)) ce qui permet une observation aisée.



FIGURE 2.6: Identification de la charge topologique d'un ombilic observé entre polariseurs circulaires croisés lorsque le film nématique est soumis à une tension U proche de la tension seuil V ($U \approx 1.36 V$). La brisure de l'axisymétrie ou non est reminiscente de celle de la distribution transverse d'orientation du directeur **n** présentée en Figure 2.2.

Observation en lumière blanche naturelle

Une troisième méthode consiste à observer un film nématique suffisamment épais afin de voir directement les fluctuations du directeur. En effet, les fluctuations d'orientation du directeur permettent, grâce à la persistence rétinienne, de visualiser les lignes de champ du directeur, mais il est difficile de rendre compte de l'observation par une image statique.

Si ces trois techniques permettent de discriminer $s = \pm 1$, seule la dernière nous donne accès à la nature chirale de l'ombilic s = +1, ce qui est en accord avec le fait que $K_1 > K_2$ pour le cristal liquide utilisé.

^{1.} Cette perte d'axisymétrie n'est pas prise en compte dans la théorie de Rapini. On réfère à un article publié récemment par Clerc et al. pour une étude théorique détaillée de perte d'axisymétrie dans le cas s = -1 [27].

2.3 Un générateur de vortex accordable

2.3.1 Principe

Lorsque l'on éclaire en lumière blanche un ombilic (ici $L = 15 \ \mu m$) placé entre deux polariseurs circulaires croisés, on constate la présence d'une zone sombre associée au coeur du défaut (ici de taille caractéristique $R = 2 \ \mu m$) et entourée par une zone lumineuse plutôt uniforme, voir Figure 2.7. L'intensité de la partie contra-circulaire du faisceau transmis après le second polariseur est $I(r) \propto \sin^2(\Delta(r)/2)$ (voir Eq. (1.6)), ceci signe le fait que Δ devient constant suffisamment loin du centre du faisceau (on verra plus loin que $\Delta(r) \propto \theta^2(r)$). L'idée est donc que, pour un diamètre de faisceau incident suffisamment grand devant r_c , un ombilic est attendu pour se comporter comme une lame à retard inhomogène idéale, décrite en section 1.2.2.

L'optimisation de la génération d'un faisceau purement vortex à partir d'un ombilic dépendra donc de deux paramètres : (i) la tension appliquée U qui contrôle à la fois le déphasage induit Δ et la taille du rayon de coeur r_c et (ii) la taille du rayon du faisceau incident au niveau du film nématique.



FIGURE 2.7: (a) Observation d'un ombilic entre polariseurs circulaires croisés soumis à une illumination large en lumière blanche. (b) Profil d'intensité moyenné azimutalement permettant de mettre en avant la saturation du retard de phase Δ en dehors du coeur de l'ombilic.

2.3.2 Génération de vortex

Une fois un ombilic de charge $s = \pm 1$ formé et identifié, on l'illumine à incidence normale par un faisceau gaussien polarisé circulairement \mathbf{e}_{σ} (voir Eq. (1.2)) de diamètre $w \approx 40 \ \mu$ m. On place en sortie un polariseur circulaire permettant de sélectionner la composante $\mathbf{e}_{-\sigma}$ du champ transmis. On obtient un même profil annulaire quel que soit $\sigma = \pm 1$, voir Figure 2.8(a). Une telle observation n'est toutefois pas suffisante pour affirmer qu'il s'agit d'un faisceau vortex de charge topologique $\ell = 2\sigma s$ comme l'indique l'équation (1.6). Pour cela, on fait interférer la composante polarisée $\mathbf{e}_{-\sigma}$ avec un faisceau référence de même polarisation circulaire, voir Figure 2.8(b) dans le cas où ces deux ondes se propagent colinéairement. On obtient un profil d'interférences en spirale permettant de déterminer la valeur absolue de la charge topologique en comptant le nombre de bras que contient la spirale, le signe étant donné par le sens d'enroulement des bras spiralés.



FIGURE 2.8: (a) Profil d'intensité de la composante contra-circulaire du faisceau transmis par un ombilic de charge s = +1 illuminé par un faisceau polarisé circulairement. (b) Profil d'interférences obtenu par la superposition cohérente d'un faisceau gaussien référence avec le champ dont le profil d'intensité est montré en (a).

2.3.3 Comportement optimal et accordabilité

Une première approche du comportement d'un ombilic en terme de génération de vortex peut se faire en restant dans le cadre de l'hypothèse $w \gg r_c$. En effet, dans ce cas l'efficacité de conversion d'un faisceau incident gaussien en faisceau transmis vortex est définie à partir de l'équation (1.6) comme :

$$\eta_{\infty} = \sin^2(\Delta_{\infty}/2) \tag{2.7}$$
où Δ_{∞} est la valeur asymptotique (i.e. $r \gg r_c$) du retard de phase associé à la biréfringence défini comme :

$$\Delta_{\infty} = \frac{2\pi}{\lambda} \int_0^L \left[n_e(r \gg r_c, z) - n_{\perp} \right] dz$$
(2.8)

où n_{\perp} est l'indice de réfraction de l'onde ordinaire et $n_e(r \gg r_c, z)$ celui de l'onde extraordinaire,

$$n_e(r \gg r_c, z) = \frac{n_{\parallel} n_{\perp}}{\left[n_{\parallel}^2 \cos^2 \vartheta(r \gg r_c, z) + n_{\perp}^2 \sin^2 \vartheta(r \gg r_c, z)\right]^{\frac{1}{2}}}$$
(2.9)

avec n_{\parallel} et n_{\perp} les composantes de l'indice de réfraction parallèle et perpendiculaire à l'axe optique des cristaux liquides. Dans le cas de l'hypothèse monomodale où $\vartheta(r \gg r_c, z) = \theta_{\infty} \sin(\pi z/L)$, voir Eq. (2.2), on obtient à l'ordre le plus bas en θ_{∞}^2 :

$$\Delta_{\infty} = \frac{\pi}{2} \left(\frac{n_{\parallel}^2 - n_{\perp}^2}{n_{\parallel}^2} \right) n_{\perp} \frac{L}{\lambda} \ \theta_{\infty}^2 \tag{2.10}$$

Comme θ_{∞} dépend de la tension U appliquée au film (voir Eq. (2.3)), l'efficacité de conversion η est donc électriquement contrôlable. En pratique, la dépendance expérimentale de l'efficacité de génération de vortex en fonction de la tension appliquée $\eta(U)$, est mesurée en utilisant un faisceau laser gaussien de longueur d'onde $\lambda = 633$ nm et de waist $w_0 \approx 20 \ \mu$ m centré sur le défaut, les résultats sont présentés en Figure 2.9(a). Comme $\eta = 0$ en l'absence de réorientation, η ne varie qu'au-dessus de la tension seuil qui, en pratique vaut 1.9 V_{rms}. Durant nos expériences, nous avons utilisé une tension de fréquence f = 2 kHz. La valeur trouvée est en accord avec celle attendue de V = 1.83 V_{rms} en utilisant les valeurs tabulées de l'anisotropie diélectrique $\epsilon_a^{(f)} = -6.1$ à f = 1 kHz et de la constante élastique de flexion de Frank $K_3 = 18.3$ pN (voir Eq. (2.4)). On note que la saturation observée et prédite pour $\tilde{U} \gg 1$ correspond à une saturation de l'orientation au sein du cristal liquide (i.e. $\vartheta \to \pi/2$).

A titre de comparaison, on trace l'efficacité de génération de vortex dans la limite de l'approche simple présentée ci-dessus, c'est-à-dire $\eta_{\infty}(U)$ qui s'obtient en combinant les équations (2.7), (2.10) et (2.3), voir Fig. 2.9 (b). L'idée n'est pas ici de faire une comparaison quantitative entre les efficacités de conversion obtenues expérimentalement (Fig. 2.9(a)) mais simplement d'illustrer (i) le comportement oscillant de η et (ii) la possibilité d'obtenir des extrema proches de 0 et 1. En particulier, on remarque qu'en pratique la valeur des extrema évolue avec la tension : la valeur des maxima tend en effet à augmenter vers 1 tandis que celle des minima tend à diminuer vers 0 (voir insets Fig. 2.9(a)). Ceci s'explique par le fait que lorsque la tension appliquée augmente, la taille du coeur diminue (voir l'équation (2.6)) et on a donc un comportement de plus en plus proche de celui de η_{∞} quant aux extrema. En ce qui concerne le nombre d'oscillations, la comparaison ne tient plus car l'expression utilisée pour η_{∞} suppose un comportement monomodal pour le profil de réorientation du directeur selon z, ce qui est évidemment valable uniquement pour des faibles réorientations.

Une conséquence directe des observations précédentes est qu'il est possible d'obtenir une conversion proche de 100% quelle que soit la longueur d'onde. En effet, l'efficacité de conversion η dépend du déphasage Δ qui est par définition inversement proportionnel à la longueur d'onde λ du faisceau incident (Eq. (2.10)). Pour cela, il faut ajuster la tension de manière à avoir un déphasage $\Delta_{\infty} = \pi [2\pi]$ pour la longueur d'onde de travail. La démonstration expérimentale est effectuée pour les trois longueurs d'onde suivantes :

- $-\lambda_{\rm R} = 633$ nm. La source choisie est un laser He-Ne (rouge).
- $-\lambda_{\rm V} = 532$ nm. La source choisie est un laser Ar⁺ (vert).
- $-\lambda_{\rm B} = 488$ nm. La source choisie est un laser Ar⁺ (bleu).



FIGURE 2.9: (a) Mesure de l'efficacité de conversion $\eta(U)$ pour un faisceau gaussien incident de longueur d'onde $\lambda = 633$ nm. Les labels A et B font respectivement référence aux valeurs $\eta_{\min} \approx 0$ et $\eta_{\max} \approx 1$. (b) Profil simulé de l'efficacité de conversion η_{∞} . Les zooms permettent de mettre en valeur l'évolution de la valeur des extrema.

Les maxima de conversion obtenus ont ainsi été de $\eta_{\max,R} = 99.48\%$ pour le rouge situé à environ $U_R \approx 8.2 V_{\rm rms}$, de $\eta_{\max,V} = 99.60\%$ pour le vert situé à environ $U_V \approx 9.4 V_{\rm rms}$ et de $\eta_{\max,B} = 99.20\%$ pour le bleu situé à environ $U_B \approx 13.2 V_{\rm rms}$, voir Figure 2.10. De manière générale, on mesure un écart de moins de 1% par rapport aux cas idéaux $\eta_{\rm min} = 0$ et $\eta_{\rm max} = 1$, et ce quelle que soit la longueur d'onde utilisée.



FIGURE 2.10: On montre expérimentalement la possibilité d'atteindre une efficacité de conversion optimale η proche de 100% pour des faisceaux monochromatiques à $\lambda_{\rm R} = 633$ nm, $\lambda_{\rm V} = 532$ nm et $\lambda_{\rm B} = 488$ nm.

2.3.4 Contrôle en temps réel du mode d'opération

L'accordabilité d'un ombilic concerne non seulement la longueur d'onde mais aussi, son mode d'opération. En effet, à une longueur d'onde donnée, on peut choisir d'activer ou non l'interface spin-orbite. Ceci est illustré Figure 2.11 où un contrôle en temps réel est effectué en commutant entre deux tensions $U_{\rm A}$ et $U_{\rm B}$ (voir Figure 2.9(a)) à une fréquence de 0.5 Hz. Dans ce cas, on passe de la génération d'un faisceau purement gaussien (générateur de vortex en mode « off ») à la génération d'un faisceau purement vortex (générateur de vortex en mode « on »).

On peut aussi contrôler en temps réel la mise en forme de l'état orbital du champ à la sortie du système dans le cas $\Delta_{\infty} = \pi [2\pi]$, soit $U = U_{\rm B}$. En effet, dans ce cas, l'état de polarisation du faisceau incident permet d'adresser la partie or-



FIGURE 2.11: Mesure du profil d'intensité du faisceau total transmis en commutant entre deux tensions $U_{\rm A}$ et $U_{\rm B}$ (voir Figure 2.9(a)) à une fréquence de 0.5 Hz. Les données présentées ici correspondent à un moyennage azimutal des profils d'intensité obtenus (voir les encarts).

bitale du champ dans le sous-espace orbital à deux dimensions qui correspondent à $\ell = \pm 2$. On peut résumer cela par l'opération suivante :

$$a|-1,0\rangle + b|+1,0\rangle \xrightarrow{\Lambda=\pi} a|+1,-2\rangle + b|-1,+2\rangle \tag{2.11}$$

avec a et b des constantes ($|a|^2 + |b|^2 = 1$) et où les termes à gauche de la flèche décrivent l'état des photons incidents et ceux de droite l'état des photons transmis, qui correspondent à des superpositions d'états $|\sigma, \ell\rangle$ où $\sigma = \pm 1$ désigne l'état de polarisation respectivement circulaire gauche et droite et où $\ell = 0, \pm 2$ décrit l'état orbital du champ.

Sur les Figures 2.12(a-c), on montre que quel que soit l'état de polarisation circulaire (a = 0 ou b = 0) ou linéaire ($a = b = 1/\sqrt{2}$) du faisceau incident, les profils d'intensité obtenus sont identiques mais correspondent bien à des contenus orbitaux distincts que l'on identifie en les faisant interférer avec un faisceau de référence de polarisation circulaire droite ou gauche. Les figures d'interférences obtenues sont présentées Fig. 2.12. Comme une onde polarisée circulairement gauche ou droite ne peut donner une figure d'interférence qu'avec un champ de polarisation identique, les Figures 2.12(d,g) et (e,h) démontrent un contenu orbital $\ell = +2$ et $\ell = -2$, respectivement, comme prévu par l'équation (2.11). Le cas d'un faisceau incident polarisé linéairement s'interprète quant à lui en se rappelant qu'un faisceau de polarisation linéaire peut se décomposer en deux composantes de polarisations circulaires orthogonales. Chacune de ces composantes du champ incident génère alors des faisceaux vortex de charges opposées et de polarisations orthogonales, comme le montrent les profils d'interférences montrés en Figure 2.12(f) et (i) où on peut même noter qualitativement un contraste moindre que dans le cas d'un champ incident circulaire.



Polarisation du faisceau incident

FIGURE 2.12: Encodage spin-orbite de la lumière dans le cas $\eta = 1$, ici à $\lambda = 633$ nm. Le premier rang montre le profil d'intensité transmis pour différents états de polarisation du faisceau incident : circulaire gauche, circulaire droit et linéaire. Les deuxième et troisième rangs montrent les différents profils d'interférences obtenus avec un faisceau gaussien référence dont l'état de polarisation est respectivement circulaire droit et gauche.

2.4 Conclusions

Nous avons démontré dans ce chapitre que les défauts topologiques de type ombilic au sein d'un film de cristal liquide nématique se comportent comme des encodeurs spin-orbite optiques de haute efficacité et dont la longueur d'onde de fonctionnement et le mode d'opération peuvent être ajustés et modifiés en temps réel grâce à l'utilisation d'un champ électrique quasi-statique associé à des tensions de l'ordre de quelques volts.

L'étude présentée dans ce chapitre fait l'objet d'une publication [28] et a permis de confirmer le potentiel de la première approche proposée en 2009 à l'aide de gouttes de cristaux liquides nématiques radiale [24]. Depuis, plusieurs travaux indépendants de ce travail de thèse ont été effectués quant à l'utilisation des capacités d'auto-organisation des cristaux liquides en vue de mettre en forme la topologie de la lumière. On peut mentionner la démonstration par Brasselet, en 2012, de la génération contrôlée de réseaux de singularités à partir d'un seul ombilic [29]. En 2012, Barboza et al. ont quant à eux montré qu'il était possible de générer un défaut de type ombilic par voie électro-optique grâce à l'utilisation d'un substrat photo-conducteur. Bien qu'élégante, cette méthode n'offre pas une génération optimale à faible tension, des tensions de l'ordre d'une centaine de volts étant requises [30]. En 2013, Yang et Brasselet ont montré que l'utilisation de structures de défauts métastables (qui fait l'objet de la Partie 2 de cette thèse) dans un film de cristal liquide cholestérique permet l'obtention de vortex optiques de charge $\ell = \pm 2$ à partir d'un faisceau gaussien, cependant avec une efficacité de conversion qui ne dépasse pas 30% [31]. Enfin, Son et al. ont exploré le cas de défauts dans des cristaux liquides smectiques A, qui conduisent cependant à des efficacités inférieures à 50% [32].

Autrement dit, l'approche à base d'ombilics présentée dans ce chapitre reste à ce jour la meilleure alternative à base de défauts topologiques de cristaux liquides, à la fois en efficacité, accordabilité et reconfigurabilité.

Diversité topologique et génération de vortex à l'aide de défauts

Comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent, les défauts ombilics dans les cristaux liquides nématiques permettent d'obtenir des interfaces spin-orbite optiques à la fois efficaces, accordables en longueur d'onde et reconfigurables en terme de mode d'opération, et tout cela, à l'échelle microscopique. Cependant, les ombilics étant restreints à des charges topologiques $s = \pm 1$, la manipulation de l'état orbital d'un champ lumineux est limitée à des modifications $\Delta \ell = 2\sigma s = \pm 2$, ce qui peut être résumé par l'opération suivante :

$$|\sigma, \ell\rangle \xrightarrow{\text{ombilic}}_{\Delta=\pi} |-\sigma, \ell \pm 2\rangle$$
 (3.1)

L'objet de ce chapitre est de lever la contrainte sur $\Delta \ell$ tout en préservant l'efficacité, l'accordabilité et la reconfigurabilité. Pour cela, notre proposition consiste à utiliser une texture dite Schlieren qui apparaît spontanément dans un film de cristal liquide nématique présentant des conditions d'ancrage planaire dégénéré. L'idée principale est donc de réaliser l'opération suivante, où $\Delta \ell \in \mathbb{Z}$:

$$|\sigma, \ell\rangle \xrightarrow{\text{Schlieren}}_{\Delta=\pi} |-\sigma, \ell + \Delta\ell\rangle$$
 (3.2)

3.1 Présentation de la texture Schlieren

Dans une cellule de verre non traitée, les conditions aux bords imposent un ancrage planaire dégénéré, autrement dit, au niveau des substrats, le directeur est parallèle au plan du film, sans aucune préférence d'orientation. Pour des films suffisamment minces (typiquement < 100 μ m), il en résulte une distribution spatiale du directeur dans le plan du film associé à de singularités que Friedel nomma initialement « noyaux » [33]. Ce type de distribution sera plus tard appelée texture Schlieren [3].

Ces singularités matérielles (où le paramètre d'ordre chute) correspondent à une orientation locale du directeur dans le plan du film de la forme $\psi = s\varphi + \varphi_0$ où φ_0 est une constante et s est un demi-entier, voir la Figure 3.1 dans le cas où $\varphi_0 = 0$. Lorsque $\varphi_0 \neq 0$, seul le cas s = +1 conduit à des géométries différentes, voir Figure 3.2. En effet pour $s \neq +1$, φ_0 n'entraîne qu'une rotation globale de la structure dans le plan (x, y). En pratique, pour les cristaux liquides apolaires purs, il n'est pas possible d'obtenir des défauts topologiques de charge supérieure à l'unité car l'énergie libre élastique nécessaire à la formation de telles structures est trop importante [5]. Toutefois, comme l'ont montré Madhusudana et Pratibha [34], il est aussi possible d'observer des défauts d'ordres supérieurs en ajoutant à des cristaux liquides nématiques un dopant non-mésogène ; plusieurs travaux expérimentaux s'en sont suivis, traitant de l'obtention de défauts d'ordres supérieurs [35–38]. Du point de vue théorique, leur apparition a fait débat et le problème reste apparemment ouvert [39, 40].



FIGURE 3.1: Champs de directeur de plusieurs défauts définis par l'équation $\psi(r, \varphi) = s\varphi + \varphi_0$ en fonction de l'angle azimutal φ pour différentes valeurs de s dans le cas $\varphi_0 = 0$.



FIGURE 3.2: Exemples de champs de directeur possibles pour un défaut de charge topologique s = +1, qui correspond à différentes valeurs de φ_0 .

3.2 Observation et identification

Dans le but d'obtenir la plus grande diversité topologique possible, nous nous sommes inspirés des travaux de Madhusudana et Pratibha [34]. Cependant, nous avons choisi un autre type de cristal liquide, ce qui nous a permis d'obtenir des défauts d'ordres supérieurs à température ambiante contrairement à Madhusudana et Pratibha qui devaient travailler à des températures supérieures. Pour cela, nous avons utilisé le cristal liquide nématique 4'-n-pentyl-4-cyanobiphenyl (5CB) dopé avec 1%wt¹ de leucoquinizarin². La préparation de ce mélange consiste à lui faire subir plusieurs cycles chauffage/refroidissement afin de faire passer plusieurs fois les cristaux liquides de la phase nématique à la phase isotrope, suivis d'une sonication. Un film de ce mélange est obtenu en l'insérant en phase isotrope par capillarité entre deux lames de d'ITO préalablement nettoyées sans frottement avec de l'éthanol et de l'eau distillée puis séchées pendant 15 minutes à 80°C. L'épaisseur du film est contrôlée à l'aide de morceaux de film de Mylar de 6 μ m d'épaisseur et la cellule est finalement scellée avant utilisation. Il est possible de « renouveler » la texture générée dans le film via un cycle de chauffage-refroidissement. La caractérisation structurelle de l'échantillon est systématiquement effectuée à température ambiante.

Les profils d'intensité entre polariseurs croisés des défauts de charges -3/2, -1, -1/2, +1/2, +1 et +3/2 sont présentés en Figure 3.3 où on note la présence de 4|s| bandes noires autour de la singularité. Le signe de la charge topologique *s* est quant à lui déterminé en utilisant une des procédures décrites en section 2.2, i.e. en faisant tourner la paire de polariseurs.

^{1.} Le pourcentage massique.

^{2.} CAS No. 17648-03-2 produit par Sigma-Aldrich.



FIGURE 3.3: En haut : Observation de disinclinaisons de charge s = m/2 où $-3 \le m \le 3$ entre polariseurs croisés orientés le long des axes x et y. En bas : Reconstruction expérimentale des champs de directeur $\psi(\varphi) - \psi(0)$ dont l'orientation locale est représentée par des segments. Barre d'échelle : 10 μ m.

Plus quantitativement, la distribution spatiale du champ de directeur $\psi(\varphi)$ autour de la singularité est obtenue via la détermination de l'angle de l'axe de l'ellipse de polarisation appelé azimuth et noté Ψ . Pour cela on mesure les paramètres de Stokes (s_1 et s_2) du faisceau transmis en utilisant la méthodologie décrite dans l'Annexe B ce qui donne accès à l'azimuth Ψ :

$$\Psi = \frac{1}{2}\arctan\frac{s_2}{s_1} \tag{3.3}$$

Pour comprendre la connection entre Ψ et ψ , supposons, sans perte de généralité, que $\Delta = \pi/2$. Autrement dit, le film de cristal liquide se comporte comme une lame quart d'onde dont l'orientation de l'axe lent est de la forme $\Psi(\varphi)$. Dans ce cas, on peut trouver, par simple analyse de Jones, que le champ de sortie pour une onde incidente polarisée circulairement ($\sigma = \pm 1$, voir Eq. (1.2)) et s'exprime localement comme :

$$\mathbf{E}_{\text{out}} \propto \cos\left[\psi(\varphi) + \sigma \frac{\pi}{4}\right] \mathbf{x} + \sin\left[\psi(\varphi) + \sigma \frac{\pi}{4}\right] \mathbf{y}$$
(3.4)

La mesure de l'azimuth du champ de sortie Ψ est donc égal à ψ à une constante près. Les cartes d'orientation du directeur dans le plan du film ainsi obtenues sont présentées en Figure 3.3 et confirment une orientation de type $\psi = s\varphi + \varphi_0$ sur une région d'aire 50 μ m × 50 μ m au minimum.

3.3 Génération de faisceaux vortex scalaires de charge topologique arbitraire

On appelle faisceau vortex scalaire d'ordre ℓ , un faisceau lumineux de polarisation donnée possédant sur son axe une singularité de phase de charge topologique ℓ . Dans le cas général d'une onde polarisée elliptiquement, cela correspond à une superposition d'état de la forme :

$$a|-1,\ell\rangle + b|+1,\ell\rangle \tag{3.5}$$

avec a et b constants et $|a|^2 + |b|^2 = 1$. Puisqu'il est simple de contrôler l'état de polarisation d'un faisceau à l'aide d'éléments optiques polarisants on se propose de restreindre notre démonstration à (a,b) = (1,0) ou (0,1), autrement dit, réaliser le processus décrit par l'équation (3.2). En pratique, ceci est fait en partant d'un faisceau gaussien polarisé circulairement.

De manière générale, la condition imposée par l'équation (3.2) sur le retard de phase total Δ associé à la biréfringence n'est pas a priori satisfaite lorsque l'échantillon est au repos. Néanmoins, il est possible d'ajuster électriquement Δ pour une longueur d'onde donnée. Dans le cas présent, où le cristal liquide possède une anisotropie diélectrique positive, il suffit d'appliquer un champ perpendiculairement au plan du film. En effet, au dessus d'une valeur seuil, cela conduit à



FIGURE 3.4: (a) Vue transverse schématique d'un film de cristal liquide d'épaisseur L orienté parallèlement dans le plan du film à l'état initial. On observe l'apparition de défauts topologiques singuliers appelés Schlieren. (b) Pour une anisotropie diélectrique positive à la fréquence f il est possible de contrôler l'orientation du champ de directeur pour une tension dont l'amplitude est supérieure à une valeur seuil notée V. L'épaisse ligne noire représente le coeur de la disinclinaison.

une réorientation le long du champ électrique, ce qui entraîne une diminution de Δ . Ceci est illustré sur la Figure 3.4 où l'épaisse ligne noire représente le coeur de la disinclinaison, où le paramètre d'ordre chute³.

La réalisation expérimentale d'une génération de vortex optimale est effectuée en utilisant un faisceau gaussien issu d'un laser He-Ne opérant à $\lambda = 633$ nm, de divergence $\theta_0 \simeq 0.7^\circ$ à incidence normale sur le film et dont la taille de l'extension spatiale du faisceau au niveau de l'échantillon est de l'ordre de 10 – 100 μ m, cette valeur étant contrôlable en variant la position de l'échantillon le long de l'axe z. La détermination de l'efficacité de génération de vortex en fonction de la tension appliquée est effectuée de manière similaire à ce qui a été fait avec les ombilics en section 2.3.3. Les résultats pour les six différents défauts montrés sur la Figure 3.3 sont présentés en Figure 3.5, où on a introduit la valeur optimale de conversion $\eta_{\text{max}} = \eta(U = U_{\text{max}})$, ce qui permet une comparaison aisée. Les valeurs optimales sont exposées dans la Table 3.1, ce qui permet de conclure à une excellente efficacité de conversion quel que soit la charge topologique s du défaut utilisé.

s	-3/2	-1	-1/2	+1/2	+1	+3/2
$\eta_{\rm max}$	94.5%	98.9%	99.1%	99.0%	99.2%	94.2%

TABLE 3.1: Valeurs optimales de l'efficacité η_{max} pour les six défauts étudiés.

La structure du vortex optique généré dans la configuration optimale est quant à elle étudiée via l'observation des profils d'intensité et de phase du champ transmis. Les profils d'intensité sont présentés en Figure 3.6(a-f) et présentent une distribution annulaire, à l'exception du cas s = -3/2 où l'axisymétrie est brisée de manière significative. La tendance qu'a le rayon R_{ℓ} , qui correspond au maximum du profil radial d'intensité moyenné azimutalement, à augmenter avec la charge topologique s du défaut vérifie globalement (excepté le cas s = -3/2) une loi du type $R_{\ell} \propto |\ell|^{1/2}$, voir la Figure 3.6(g), qui correspond aux modes de Laguerre-Gauss $LG_{0\ell}$ (voir Introduction Générale Eq. (1)).

^{3.} Typiquement le coeur d'un disinclinaison est de l'ordre de quelques longueurs moléculaires [4]. En pratique, on peut montrer que la représentation « tubulaire » du défaut de la figure 3.4 n'est pas la configuration de moindre énergie [41] et qu'un « échappement dans la troisième dimension » prend place. On aura l'occasion de revenir sur ce point de détail au chapitre 4.



FIGURE 3.5: Efficacité de la génération de vortex η normalisée par sa valeur optimale $\eta_{\text{max}} = \eta(U = U_{\text{max}})$ en fonction du champ électrique appliqué, pour les six défauts étudiés. Dans tous les cas : $U_{\text{max}} \approx 1 V_{\text{rms}}$.

D'autre part, l'enroulement attendu de la distribution spatiale de la phase, $\Phi(\varphi) = \ell \varphi$, peut se visualiser directement de manière qualitative par interférence pour les six disinclinaisons étudiées, voir la Figure 3.7(a-f). Ces profils présentent des franges spiralées à $|\ell|$ bras dont le sens d'enroulement est lié au signe de ℓ . Plus quantitativement, on a accès à la dépendance azimutale de la phase autour du coeur du vortex scalaire par analyse polarimétrique. En effet, on peut montrer que l'azimuth Ψ de l'ellipse de polarisation du champ de sortie pour une onde incidente polarisée linéairement vérifie $\Psi = \frac{\sigma}{2} \Phi$, où Φ est associé à la distribution spatiale de la phase du vortex généré (voir Eq. (1.6)), sachant que $\Psi = \psi$ à une constante près comme on l'a vu dans la section précédente). Les résultats sont présentés Figure 3.7(g) où $\Phi(\varphi) = \ell \varphi$ (à une constante près) est tracé en lignes continues. On conclut à un bon accord avec le comportement attendu dans tous les cas.



FIGURE 3.7: (a-f)Profils d'interférence résultant de la superposition cohérente coaxiale du faisceau vortex généré et d'un faisceau gaussien référence de même polarisation pour les six défauts étudiés. (g) Comportement azimutal des profils de phase, où les droites font référence à la dépendance linéaire attendue pour la phase, $\Phi(\varphi) - \Phi(0) = \ell \varphi$.

3.4 Génération de faisceaux vectoriels d'ordre arbitraire

Par « faisceau vectoriel » on entend une solution vectorielle des équations de Maxwell [42]. Un exemple typique correspond à un faisceau polarisé linéairement dont l'azimuth Φ varie azimutalement selon $\Phi = \ell \varphi$, avec ℓ un entier. De tels faisceaux correspondent à la superposition cohérente coaxiale de deux faisceaux vortex scalaires de charges topologiques opposées et contra-circulairement polarisés. Autrement dit, ils sont décrits par la superposition d'états suivante :

$$\frac{|-1,\ell\rangle + |+1,-\ell\rangle}{\sqrt{2}} \tag{3.6}$$

Ces champs correspondent à une généralisation de l'intrication optimale rencontrée dans le cas des ombilics pour le sous-espace orbital correspondant à $\ell = \pm 2$ au sous-espace orbital associé à $\ell = \pm |\ell|$. De manière analogue, ils sont obtenus en illuminant un défaut de charge $s = \ell/2$ ajusté à $\Delta = \pi$ par un faisceau gaussien polarisé linéairement. Autrement dit, cela correspond à l'opération suivante :

$$\frac{|+1,0\rangle + |-1,0\rangle}{\sqrt{2}} \xrightarrow{\text{Schlieren}}_{\Delta=\pi} \frac{|-1,2s\rangle + |+1,-2s\rangle}{\sqrt{2}}$$
(3.7)

Le cas $s = \pm 1$ est présenté en Figure 3.8, où on peut voir les profils caractéristiques d'intensité et de phase (par interférométrie) des états $|-1,2\rangle$ et $|+1,-2\rangle$ formant le champ total transmis. La contribution égale de chacune de ces composantes polarisées respectivement droite ($\sigma = -1$) et gauche ($\sigma = \pm 1$) est illustrée en Figure 3.8(a-c) alors que leurs charges topologiques opposées, $\ell = \pm 2$, sont identifiées par interférences, voir Fig. 3.8(d,e).

Expérimentalement, la distribution spatiale de l'azimuth de l'état de polarisation linéaire inhomogène est obtenue par analyse polarimétrique et les résultats de cette étude sont présentés sur la Figure 3.9 pour les six différentes disinclinaisons. Dans cette figure, l'orientation locale de l'azimuth de l'ellipse de polarisation au niveau du rayon correspondant au maximum d'intensité est représentée en surimpression sur le profil d'intensité totale⁴.

^{4.} Sur la Figure 3.9, l'azimuth local de polarisation (en jaune) a été décalé radialement par rapport au maximum d'intensité du profil d'intensité totale pour une meilleure lecture.



FIGURE 3.8: Analyse qualitative des profils d'intensité et de phase des états $|-1,2\rangle$ et $|+1,-2\rangle$ formant le champ total transmis dans le cas s = +1, voir équation (3.7). A gauche : Moyenne azimutale du profil d'intensité total et profils d'intensité des composantes circulaires droite et gauche du champ optique transmis, I_{tot} et $I_{\sigma=\pm1}$, respectivement. A droite : Les images de la partie supérieure montrent les distributions spatiales d'intensité $I_{\sigma=\pm1}$ tandis que les images inférieures montrent les interférogrammes obtenus lors de la superposition coaxiale des composantes circulaires gauche et droite du faisceau vectoriel avec un faisceau gaussien de référence de même polarisation.

Plus précisément, afin de rendre compte quantitativement de la qualité globale du champ obtenu, on introduit une mesure globale de l'excentricité de l'ellipse de polarisation du faisceau transmis, sachant qu'on attend e = 0 en tout point du faisceau. Pour cela, on évalue $\langle e \rangle$, la moyenne pondérée (sur l'intensité totale) du rapport entre le grand et le petit axe de l'ellipse de polarisation ($0 \le e \le 1$) : sachant que $s_3 = \pm 2e/(1+e^2)$ où s_3 est le troisième paramètre de Stokes réduit s_3 (voir Annexe B) et où le signe \pm désigne la circularité gauche ou droite de l'ellipse de polarisation. On a accès à $\langle e \rangle$ à l'aide des profils d'intensité des composantes circulaires du champ de sortie :

$$\langle e \rangle = \frac{\iint e(x,y)I_{\text{tot}}(x,y)dxdy}{\iint I_{\text{tot}}(x,y)dxdy}$$
(3.8)

Les valeurs expérimentales mesurées sont présentées dans la Table 3.2 et on

conclut à la génération des faisceaux vortex vectoriels de relativement bonne qualité.



FIGURE 3.9: Génération de faisceaux vectoriels en utilisant les différentes disinclinaisons présentées sur la Figure 3.3 pour un faisceau incident gaussien polarisé linéairement le long de l'axe x. Les segments en surimpression sur les profils d'intensités totales font référence à l'orientation locale de l'azimuth de polarisation pour le rayon d'intensité moyenne maximale.

s	-3/2	-1	-1/2	+1/2	+1	+3/2
$\langle e \rangle$	0.15	0.07	0.11	0.12	0.10	0.14

TABLE 3.2: Moyenne pondérée sur l'intensité totale de l'ellipticité $\langle e \rangle$ (voir Eq. (3.8)), pour les faisceaux vectoriels obtenus pour les six disinclinaisons étudiées.

3.5 Conclusions

Dans ce chapitre nous avons démontré expérimentalement que la contrainte sur la charge topologique des singularités optiques obtenues en utilisant des ombilics peut être levée grâce à l'utilisation d'un autre type de défaut naturel, les Schlierens. Concrètement, nous avons montré la génération de vortex optiques scalaires et de faisceaux vectoriels, associés à des états orbitaux $-3 \leq \ell \leq +3$, grâce à six défauts distincts de charges $s = \ell/2$. Un point clé de cette extension de la manipulation de l'état orbital d'un champ lumineux via l'interaction spin-orbite de la lumière en utilisant des défauts naturels est qu'elle conserve la souplesse d'un contrôle électrique permettant d'envisager un processus d'une efficacité proche de 100%, à la fois accordable en longueur d'onde et reconfigurable dans le temps.

Si les résultats présentés dans ce chapitre, qui font l'objet d'une publication [43], se limitent à des défauts de charges maximales |s| = 3/2, nous avons également pu obtenir des défauts d'ordres supérieurs. Toutefois, ceux-ci ne sont stables que durant une dizaine de secondes et une exploitation sérieuse de ces défauts n'est pour l'instant pas envisageable. A titre d'exemple, une disinclinaison de charge s = -2 comportant 8 branches est présentée sur la Figure 3.10.



FIGURE 3.10: Observation d'une disinclinaison de charge s = -2 entre polariseurs croisés.

L'élaboration et le contrôle d'une plus grande diversité de défauts topologiques au sein des cristaux liquides constitue un réel défi pour la génération de faisceaux portant des singularités de phase de charges topologiques toujours plus grandes. Une des continuations possibles de ce chapitre et du précédent pourrait être l'utilisation de défauts topologiques au sein de cristaux liquides photopolymérisables. En effet, cela permettrait de réaliser des éléments optiques singuliers à l'échelle du micron de manière pérenne, tout en conservant le contrôle électrique des propriétés de mise en forme topologique de la lumière.

Problématique de la résolution spatiale

La proposition d'utiliser des défauts topologiques de cristaux liquides a permis d'envisager la conception d'interfaces spin-orbite optiques à l'échelle microscopique, sans avoir recours aux techniques de micro-/nano-fabrication. Les développements présentés dans les chapitres 2 et 3 ont établi qu'un choix judicieux de défauts en phase nématique permettait un contrôle optimal de la manipulation de l'état orbital de la lumière à l'échelle microscopique. A cela s'ajoute un potentiel d'accordabilité en longueur d'onde et de reconfigurabilité en mode d'opération. Nous n'avons cependant pas abordé quantitativement la problématique de la résolution spatiale de telles interfaces. Ceci fait l'objet de ce chapitre, qui vise à montrer expérimentalement à quel point le caractère microscopique des défauts topologiques de cristaux liquides offre une résolution spatiale structurelle surpassant les approches high-tech basées sur la structuration artificielle de systèmes à cristaux liquides.

Pour illustrer le contexte dans lequel le travail présenté dans ce chapitre a été fait, il est instructif de comparer les échelles spatiales mises en jeu entre les approches naturelles et artificielles. Ceci est résumé dans la Figure 4.1 où on observe une perte totale de la topologie de la structuration d'un film de cristal liquide nématique au-dessous d'un rayon de plusieurs dizaines de microns dans le cas artificiel [20,44]. Au contraire, si on prend l'exemple de l'approche basée sur l'utilisation des ombilics, celle-ci semble irréprochable jusqu'à des distances au moins de l'ordre du micron, à la fois quant à la structuration matérielle et à la mise en forme topologique de la lumière.

Cependant, les progrès techniques ayant été significatifs ces dernières années et dans le souci d'une évaluation pertinente de la problématique de la résolution spatiale, nous avons mené une étude comparative de notre approche avec la meilleure technologie actuelle, dont les caractéristiques ont été publiées en 2013 [45]. Il s'agit de films photo-structurés réalisés à base de cristaux liquides polymérisables, disponibles commercialement auprès de la compagnie BeamCo.

En pratique nous avons donc comparé trois interfaces spin-orbite de charges identiques s = +1: l'une provenant de BeamCo, les deux autres étant des défauts de type Schlieren et ombilic.



FIGURE 4.1: Illustration du potentiel d'intégration de générateurs de vortex optiques à cristaux liquides en (a) une approche de photo-alignement typique [20, 44] et (b) notre approche. Les parties gauches de (a) et (b) correspondent à l'observation des défauts entre polariseurs linéaires croisés permettant de caractériser la distribution spatiale du directeur dans le plan du film. La topologie est complètement perdue à l'échelle du micron dans le cas artificiel (a) alors qu'elle est parfaite dans notre cas (b). Les parties droites de (a) et (b) montrent la distribution d'intensité du faisceau vortex généré à partir d'un faisceau incident de diamètre 1 cm (a) et 40 μ m (b).

4.1 Principe de l'étude

4.1.1 Approche théorique

Afin d'estimer quantitativement la problématique de la résolution spatiale, nous proposons d'évaluer la structure du champ transmis par différentes interfaces spin-orbite en fonction de la taille d'un faisceau gaussien polarisé circulairement à incidence normale et centrée sur le dispositif, pour cela nous allons considérer la géométrie présentée en Figure 4.2.

Dans un premier temps on définit le champ optique incident gaussien polarisé



FIGURE 4.2: Géométrie considérée pour l'évaluation du champ diffracté par un masque de phase (x, y) situé à une distance z du col du faisceau gaussien incident w_0 . Le plan d'observation (X, Y) se situe à une distance D du plan du masque de phase. Tout point M du masque de phase (x, y) est défini par ses coordonnées polaires (r, ϕ) et tout point M' du plan d'observation par ses coordonnées polaires (ρ, θ) .

circulairement comme $\mathbf{E}_{in}^{\sigma} = E_{in}^{\sigma} \mathbf{e}_{\sigma}$ avec $\mathbf{e}_{\sigma} = (\mathbf{x} + i\sigma \mathbf{y})/\sqrt{2}$ et :

$$E_{\rm in}^{\sigma}(r,z) = E_0 \frac{w_0}{w(z)} \exp\left(-\frac{r^2}{w^2(z)} + \frac{ikr^2}{2R(z)} - i\zeta(z)\right)$$
(4.1)

où w_0 est le rayon du faisceau au niveau du plan focal et w(z) sa valeur lorsqu'il en est distant de $z, k = 2\pi/\lambda$ est le vecteur d'onde et avec λ est la longueur d'onde du faisceau incident, $R(z) = z(1 + z_R^2/z^2)$ définit le rayon de courbure des fronts d'ondes du faisceau avec $z_R = \pi w_0^2/\lambda$ la longueur de Rayleigh et enfin $\zeta(z) = \operatorname{atan}(z/z_R)$ est la phase de Gouy.

Puisque nous nous intéressons à la capacité qu'a une interface spin-orbite à transformer un faisceau incident gaussien en faisceau vortex, on ne considèrera que la composante vortex transmise par l'interface. Notre étude portera donc sur la composante contra-circulaire du champ transmis, de polarisation $\mathbf{e}_{-\sigma}$. Pour cela on introduit la transmittance complexe $\tau(r, \varphi)$ associée à l'état de polarisation $\mathbf{e}_{-\sigma}$ et dont l'expression se déduit de l'équation (1.6), qui correspond au champ juste après l'interface spin-orbite supposée infiniment mince. A un terme de phase

près on a donc :

$$\tau(r,\varphi) = \sin\left[\frac{\Delta(r,\varphi)}{2}\right] \exp\left[i\frac{\Delta(r,\varphi)}{2} + 2i\sigma\psi(r,\varphi)\right]$$
(4.2)

Le champ diffracté recherché dans le plan situé à une distance D du plan du masque de phase, $E_{out}^{-\sigma}(\rho, \theta, z, D)$, s'exprime alors dans la limite où $w(z) \ll D$ et $\rho \ll D$, comme :

$$E_{\text{out}}^{-\sigma}(\rho,\theta,z,D) \propto \int_{0}^{2\pi} \int_{0}^{+\infty} E_{\text{in}}^{\sigma}(r,z) \ \tau(r,\varphi) \\ \exp\left[\frac{i\pi}{\lambda D} \left(r^{2} + \rho^{2} - 2r\rho\cos(\theta - \varphi)\right)\right] r dr d\varphi \quad (4.3)$$

4.1.2 Approche expérimentale

Un faisceau collimé de longueur d'onde $\lambda = 633$ nm issu d'un laser He-Ne est focalisé à l'aide d'un objectif ×10 d'ouverture numérique NA = 0.25 sur les différentes interfaces spin-orbite. Ainsi, le rayon w(z) du faisceau gaussien incident au niveau de l'échantillon est contrôlé par le déplacement de ce dernier le long de la direction de propagation de la lumière z. Expérimentalement on mesure une divergence $\theta_0 = 0.15$ rad et on en déduit le rayon du faisceau dans le plan focal de l'objectif $w_0 = \lambda/\pi\theta_0 = 1.3 \ \mu\text{m}$, ce qui donne une longueur de Rayleigh $z_R = \pi w_0^2/\lambda = 8.9 \ \mu\text{m}$. Le montage est présenté en Figure 4.3. Afin d'étudier la résolution de ces interfaces, on explore la gamme -500 $\mu\text{m} < z < +500 \ \mu\text{m}$ qui donne accès à des rayons du faisceau incident allant de $w_0 \approx 1.34 \ \mu\text{m}$ à $w(|z| = 500 \ \mu\text{m})$ $\approx 75 \ \mu\text{m}$. Les profils d'intensité sont ensuite enregistrés à une distance fixe de $D = 17 \ \text{cm}$ entre l'interface et le plan d'observation.

On note que la comparaison entre les résultats expérimentaux et les simulations pour les différents générateurs spin-orbite de vortex impliquera d'identifier les distributions spatiales (i) de l'axe lent dans le plan (x, y), $\psi(r, \varphi)$ et (ii) du retard de phase total associé à la biréfringence subi par l'onde incidente à la traversée du système, $\Delta(r, \varphi)$.



FIGURE 4.3: Schéma du montage expérimental mis en place pour la mesure du profil d'intensité pour chacune des trois interfaces spin-orbite considérées. On focalise un faisceau incident polarisé circulairement (E_{in}^{σ}) à l'aide d'un objectif dont le plan focal se trouve en z = 0. Une fois ce faisceau passé à travers l'interface considérée située à une distance z, il est filtré à l'aide d'un polariseur circulaire afin de ne garder que la partie contra-circulaire du faisceau transmis $(E_{out}^{-\sigma})$. On photographie le profil d'intensité visible sur l'écran placé à une distance D de l'interface.

4.2 Interface spin-orbite idéale

Dans le cas d'une interface spin-orbite idéale de charge s = 1, le profil d'orientation de l'axe optique et défini par son azimuth tel que $\psi_{idéal}(\varphi) = \varphi$ induisant un retard homogène à travers la lame de $\Delta_{idéal} = \pi$. Dans ces conditions, on a, à une constante près :

$$\tau_{\rm idéal}(\varphi) = \exp\left(2i\sigma\varphi\right) \tag{4.4}$$

Le champ diffracté recherché s'exprime alors, après intégration selon φ , comme :

$$E_{\text{out, idéal}}^{-\sigma}(\tilde{\rho}, \bar{z}, \bar{D}) \propto \int_{0}^{+\infty} J_2\left(\frac{2\tilde{r}\tilde{\rho}}{\bar{D}}\right) \exp\left(-\frac{\tilde{r}^2}{1+\bar{z}^2} + \frac{i\tilde{r}^2\bar{z}}{1+\bar{z}^2} + \frac{i\tilde{r}^2}{\bar{D}}\right) \tilde{r}d\tilde{r} \qquad (4.5)$$

où on a introduit les distances transverses réduites $\tilde{\rho} = \rho/w_0$ et $\tilde{r} = r/w_0$, et les distance longitudinales réduites $\bar{z} = z/z_R$ et $\bar{D} = D/z_R$ et où J_2 est la fonction de Bessel d'ordre 2. Le profil d'intensité $|E_{\text{out, idéal}}^{-\sigma}(\tilde{\rho}, \bar{z}, \bar{D})|^2$ obtenu est axisymétrique et on observe un profil annulaire quel que soit z, ceci est illustré sur la Figure 4.4.



FIGURE 4.4: Profil d'intensité théorique d'une interface spin-orbite idéale de charge s = 1 pour une distance au plan focal z allant de $-500 \ \mu\text{m}$ à $+500 \ \mu\text{m}$. Les profils obtenus pour z = -300, -20, 0, +20 et $+300 \ \mu\text{m}$ et donc respectivement pour w(z) = 45.1, 3.3, 1.34, 3.3 et $45.1 \ \mu\text{m}$ sont également présentés.

4.3 Interface spin-orbite BeamCo

4.3.1 Modélisation

Dans un premier temps, une caractérisation structurelle de la lame BeamCo est effectuée par analyse polarimétrique. Pour cela, elle est tout d'abord placée entre deux polariseurs linéaires croisés, puis entre deux polariseurs circulaires croisés.

Lorsque la lame est placée entre deux polariseurs linéaires croisés, on observe bien à grande échelle le profil d'intensité caractéristique d'un défaut de charge s = 1, à savoir une croix noire (Figure 4.5). Cependant l'observation à plus petite échelle permet de révéler la séparation de la charge s = 1 en deux charges s = 1/2séparées d'une distance $d \approx 3 \ \mu$ m. Ceci est confirmé par l'observation de la lame entre polariseurs circulaires croisés, qui met en évidence la présence de deux taches noires sur un fond lumineux plutôt uniforme. Autrement dit, en dehors des deux singularités s = 1/2, on pourra considérer Δ_{BeamCo} comme étant constante. On décrira donc la lame BeamCo par la transmittance complexe suivante, à une constante près, telle que :

$$\tau_{\text{BeamCo}}(r,\varphi) = \exp\left[2i\sigma\psi_{\text{BeamCo}}(r,\varphi)\right]$$
(4.6)

où

$$\psi_{\text{BeamCo}}(r,\varphi) = \frac{1}{2} \operatorname{atan}\left(\frac{r\cos\varphi + d/2}{r\sin\varphi + d/2}\right) + \frac{1}{2} \operatorname{atan}\left(\frac{r\cos\varphi - d/2}{r\sin\varphi - d/2}\right)$$
(4.7)

La carte de l'orientation du directeur comme définie dans l'équation (4.7) est présentée sur la Figure 4.6(a) et, afin de juger de la pertinence de notre modélisation, on présente en Figure 4.6(b), le calcul de la distribution d'intensité associée à une observation entre polariseurs linéaires croisés sous illumination uniforme, soit $I = \sin^2[2\psi_{\text{BeamCo}}(r,\varphi)]$.



FIGURE 4.5: Observation polarimétrique (polariseurs croisés x et y) de l'interface spin-orbite BeamCo. (a) A grande échelle on observe le profil en croix caractéristique d'une interface spinorbite s = 1. (b) A petite échelle l'axisymétrie est brisée. (c) L'observation entre polariseurs circulaires croisés révèle la présence de deux défauts de charges s = 1/2 visualisés par la présence de deux taches noires séparées d'une distance $d \approx 3 \mu m$.



FIGURE 4.6: (a) Carte d'orientation de l'axe optique local $\psi_{\text{BeamCo}}(r, \varphi)$ et (b) visualisation du profil d'intensité entre polariseurs croisés d'une interface dont le champ de directeur est décrit par (a).

4.3.2 Expérience et confrontation aux simulations

En suivant l'approche décrite dans la section 4.1.2 on mesure les profils d'intensité obtenus par diffraction pour différentes tailles de faisceau incident sur la lame. Les profils d'intensités sont ensuite moyennés azimutalement et compilés pour obtenir une carte des profils en fonction de la distance au plan focal z, voir Figure 4.7(f). Ces résultats sont comparés aux simulations en Figure 4.7(l) obtenus à partir de :

$$E_{\text{out,BeamCo}}^{-\sigma}(\rho,\theta,z,D) \propto \int_{0}^{2\pi} \int_{0}^{+\infty} \frac{w_{0}}{w(z)} \exp\left(-\frac{r^{2}}{w^{2}(z)} + \frac{ikr^{2}}{2R(z)} - i\zeta(z)\right) \exp\left[2i\sigma\psi_{\text{BeamCo}}(r,\varphi)\right] \\ \exp\left[\frac{i\pi}{\lambda D}\left(r^{2} + \rho^{2} - 2r\rho\cos(\theta - \varphi)\right)\right] r dr d\varphi$$

$$(4.8)$$

On constate que les résultats expérimentaux (voir Fig. 4.7(a-f)) sont très proches de la modélisation (voir Fig. 4.7(g-l)), justifiant a posteriori les hypothèses faites en section 4.3.1 pour $\psi_{\text{BeamCo}}(r,\varphi)$ et Δ_{BeamCo} . On constate également que l'axisymétrie des profils d'intensités obtenus expérimentalement est perdue pour des diamètres de faisceaux $2w(z) \leq 20 \ \mu\text{m}$ comme on peut le voir sur les Figures 4.7(b-d), en accord avec les simulations (Fig. 4.7(h-j)).



FIGURE 4.7: Résultats expérimentaux et des simulations obtenus pour l'interface spin-orbite BeamCo pour une distance au plan focal z allant de $-500 \ \mu\text{m}$ à $+500 \ \mu\text{m}$. Les profils obtenus pour z = -300, -20, 0, +20 et $+300 \ \mu\text{m}$ et donc respectivement pour w(z) = 45.1, 3.3, 1.34, 3.3et $45.1 \ \mu\text{m}$ sont également présentés.

4.4 Interface spin-orbite Schlieren

4.4.1 Modélisation

L'analyse polarimétrique d'un défaut de type Schlieren ne permet pas de mettre en évidence une brisure de l'axisymétrie même en utilisant une ouverture numérique de 0.8, que ce soit entre polariseurs linéaires ou circulaires croisés, voir Figure 4.8. Nous retiendrons donc une distribution de l'orientation du directeur dans le plan du film de type $\psi_{\text{Schlieren}}(\varphi) = \varphi$.



FIGURE 4.8: Observation polarimétrique de l'interface spin-orbite Schlieren (stratégie naturelle). (a,b) A grande et petite échelles on retrouve le profil en croix caractéristique d'une lame idéale avec s = 1. (c) Observation entre polariseurs circulaires croisés révélant la présence d'une unique tache noire.

L'axisymétrie de l'observation entre polariseurs circulaires (voir Figure 4.8(c)), indique que le retard de phase est axisymétrique, on prendra donc une expression de la forme $\Delta_{\text{Schlieren}}(r)$. L'expression du profil radial est quant à lui extrait des travaux de Chiccoli et al. [41] qui ont montré que les défauts Schlieren de charge topologique s = 1 présentent un échappement tridimensionnel conduisant à abandonner la description présentée dans le chapitre 3 par souci de simplicité (voir Fig. 3.4). Plus précisément, l'angle du tilt du directeur par rapport à l'axe z dépend en effet de $\vartheta_{\text{Schlieren}}(r, z)$, ce qui conduit à une expression pour le déphasage total associé à la biréfringence :

$$\Delta_{\text{Schlieren}}(r) = \frac{2\pi L}{\lambda} \int_0^1 \left[\frac{n_{\parallel} n_{\perp}}{\left[n_{\parallel}^2 \cos^2 \vartheta(r,\zeta) + n_{\perp} \sin^2 \vartheta(r,\zeta) \right]^{1/2}} - n_{\perp} \right] d\zeta \qquad (4.9)$$

avec :

$$\vartheta_{\text{Schlieren}}(r,\zeta) = \arctan\left[\frac{\beta \ r \exp(r/L\alpha)}{L\zeta(1-\zeta)}\right]$$
(4.10)

où $0 \leq \zeta \leq 1$, $\alpha = 0.7105$ et $\beta = 0.8181$ [41] et L est l'épaisseur de l'échantillon. La dépendance radiale du déphasage $\Delta_{\text{Schlieren}}(r)$ normalisé par sa valeur asymptotique $\Delta_{\text{Schlieren},\infty}$ en fonction de la coordonnée radiale r normalisée par l'épaisseur de l'échantillon L est présentée en Figure 4.9. Au final on a donc :

$$\tau_{\text{Schlieren}}(r,\varphi) = \sin\left[\frac{\Delta_{\text{Schlieren}}(r)}{2}\right] \exp\left[i\frac{\Delta_{\text{Schlieren}}(r)}{2} + 2i\sigma\varphi\right]$$
(4.11)

et on déduit après intégration selon φ :

$$E_{\text{out, Schlieren}}^{-\sigma}(\tilde{\rho}, \bar{z}, \bar{D}) \propto \int_{0}^{+\infty} \sin\left[\frac{\Delta_{\text{Schlieren}}(r)}{2}\right] \exp\left[i\frac{\Delta_{\text{Schlieren}}(r)}{2}\right] \\ J_2\left(\frac{2\tilde{r}\tilde{\rho}}{\bar{D}}\right) \exp\left(-\frac{\tilde{r}^2}{1+\bar{z}^2} + \frac{i\tilde{r}^2\bar{z}}{1+\bar{z}^2} + \frac{i\tilde{r}^2}{\bar{D}}\right)\tilde{r}d\tilde{r} \quad (4.12)$$

On définit un rayon de coeur caractéristique du défaut associé au déphasage $\Delta_{\text{Schlieren}}(r)$ comme la distance à l'axe où celui-ci égale la moitié de sa valeur asymptotique $\Delta_{\text{Schlieren},\infty}(r)$, on trouve une valeur de l'ordre de 1 μ m, ce qui est cohérent avec l'extension spatiale de la tache noire, voir Figure 4.9.



FIGURE 4.9: Evolution du déphasage total associé à la biréfringence normalisé par sa valeur asymptotique $\Delta_{\text{Schlieren}}(r)/\Delta_{\text{Schlieren},\infty}$ en fonction de la coordonnée radiale normalisée par l'épaisseur de l'échantillon r/L.



FIGURE 4.10: Résultats expérimentaux et des simulations obtenus pour l'interface spin-orbite Schlieren pour une distance au plan focal z allant de $-500 \ \mu\text{m}$ à $+500 \ \mu\text{m}$. Les profils obtenus pour z = -300, -20, 0, +20 et $+300 \ \mu\text{m}$ et donc respectivement pour w(z) = 45.1, 3.3, 1.34, 3.3et $45.1 \ \mu\text{m}$ sont également présentés.

4.4.2 Expérience et confrontation aux simulations

On utilise ici un film mince de cristal liquide 5CB pur (voir chapitre 3 pour la préparation) d'épaisseur $L = 6 \ \mu m$. On observe les profils d'intensité transmis, avec le même protocole que pour le cas BeamCo, dont la compilation est présentée en Figure 4.10. Ce comportement est qualitativement retrouvé par les simulations présentées en Figure 4.10(l). En particulier, la légère non invariance par le changement $z \leftrightarrow -z$ est retrouvée. En ce qui concerne les distributions d'intensités, quelques exemples sont présentés en Figure 4.10(a-e) dont la comparaison avec les profils simulés en Figure 4.10(g-k) met en évidence une légère brisure de l'axisymétrie en pratique. Ceci peut s'expliquer par le caractère nonidéal de la structure tridimensionnelle du défaut. En effet, si on décrit théoriquement l'échappement dans la troisième dimension par deux défauts ponctuels exactement l'un au-dessus de l'autre, toute imperfection résiduelle conduira en pratique à l'éclatement de la singularité de phase de charge 2 en deux singularités de charge 1.

4.5 Interface spin-orbite ombilic

4.5.1 Modélisation

A l'instar d'un défaut Schlieren, l'analyse polarimétrique d'un défaut ombilic ne permet pas d'observer une brisure de l'axisymétrie (voir Fig. 4.11) ce qui nous conduit à décrire la distribution de l'orientation du directeur dans le plan du film par $\psi_{\text{Ombilic}}(\varphi) = \varphi$. Le profil radial du déphasage associé à la biréfringence est obtenu en utilisant l'approche de Rapini (voir chapitre 2 et [26]). On trouve après calcul :

$$\Delta_{\text{Ombilic}}(r) = a^2(r)\Delta_{\infty}^2 \tag{4.13}$$

avec a(r), Δ_{∞} respectivement définis par les équations (2.5) et (2.10). Au final on a donc :

$$\tau_{\text{Ombilic}}(r,\varphi) = \sin\left[\frac{\Delta_{\text{Ombilic}}(r)}{2}\right] \exp\left[i\frac{\Delta_{\text{Ombilic}}(r)}{2} + 2i\sigma\varphi\right]$$
(4.14)

et on déduit après intégration selon φ :

$$E_{\text{out, Ombilic}}^{-\sigma}(\tilde{\rho}, \bar{z}, \bar{D}) \propto \int_{0}^{+\infty} \sin\left[\frac{\Delta_{\text{Ombilic}}(r)}{2}\right] \exp\left[i\frac{\Delta_{\text{Ombilic}}(r)}{2}\right] \\ J_2\left(\frac{2\tilde{r}\tilde{\rho}}{\bar{D}}\right) \exp\left(-\frac{\tilde{r}^2}{1+\bar{z}^2} + \frac{i\tilde{r}^2\bar{z}}{1+\bar{z}^2} + \frac{i\tilde{r}^2}{\bar{D}}\right) \tilde{r}d\tilde{r} \quad (4.15)$$

Comme nous l'avions fait pour un défaut Schlieren, on définit un rayon de coeur caractéristique du défaut ombilic associé au déphasage $\Delta_{\text{Ombilic}}(r)$ comme la distance à l'axe où celui-ci égale la moitié de sa valeur asymptotique $\Delta_{\text{Ombilic},\infty}(r)$, on trouve une valeur de l'ordre de 0.4 μ m (voir Fig. 4.12), ce qui est cohérent avec l'extension spatiale de la tache noire, voir Fig. 4.11.



FIGURE 4.11: Observation polarimétrique de l'interface spin-orbite ombilic (stratégie électrique) (a,b) Le profil caractéristique en croix est observé à toute échelle. (c) Observation entre polariseurs circulaires croisés révélant la présence d'une unique tache noire.



FIGURE 4.12: Evolution du déphasage total associé à la biréfringence normalisé par sa valeur asymptotique $\Delta_{\text{Ombilic}}(r)/\Delta_{\text{Ombilic},\infty}$ en fonction de la coordonnée radiale normalisée par le rayon de coeur du défaut r/r_c défini par la modélisation de Rapini [26] voir Eq. (2.6).



FIGURE 4.13: Résultats expérimentaux et des simulations obtenus pour l'interface spin-orbite Ombilic pour une distance au plan focal $-500 \ \mu m \le z \le +500 \ \mu m$. Les profils non-moyennés pour z = -300, -40, 0, +40 et $+300 \ \mu m$ et donc respectivement pour w(z) = 45.1, 6.2, 1.34, 6.2 et $45.1 \ \mu m$ sont également présentés.

4.5.2 Expérience et confrontation aux simulations

On utilise ici un film mince de cristal liquide nématique MLC-2048 d'épaisseur $L = 10 \ \mu m$ (se reporter au chapitre 2 pour la fabrication de l'échantillon).

Comme nous l'avions fait pour les interfaces BeamCo et Schlieren, les profils d'intensité simulés obtenus à partir de l'équation (4.15) sont compilés et présentés en Figure 4.13(l). Les profils simulés pour un z donné et présentés en Figure 4.13(g-k) sont très proches des résultats expérimentaux présentés en Figure 4.13(a-e). On retrouve ici une légère signature de la non-invariance $z \leftrightarrow -z$, toutefois moins visible que pour l'interface Schlieren tandis que les distributions d'intensité sont cette fois-ci quasiment asymétriques quel que soit z.

4.6 Conclusions

La proposition faite dans ce chapitre d'aborder la problématique de la résolution spatiale d'interfaces spin-orbite optiques pour la génération de vortex à petite échelle à l'aide d'un faisceau incident de taille variable s'est révélée efficace pour mettre en avant les qualités des interfaces considérées. En effet, l'étude du profil d'intensité du champ transmis dépend à la fois du déphasage total subi par l'onde au travers de l'interface et de l'orientation de l'axe optique en tout point de la lame qui sont les deux paramètres essentiels.

En ce qui concerne les approches naturelles Schlieren et ombilic, le déphasage dépend de la coordonnée radiale et comme nous l'avons vu dans le chapitre 2 cet aspect affecte l'efficacité de conversion mais préserve le transfert d'information topologique de la matière à la lumière. Quant à l'orientation de l'axe optique, c'est la clé de voûte de la génération de vortex et les performances des défauts ombilics sont supérieures au cas d'un défaut Schlieren, ce dernier surclassant déjà la meilleure solution commerciale disponible à ce jour. En effet, l'interface BeamCo devient obsolète pour des faisceaux de diamètres $2w(z) < 20 \ \mu m$ alors que nous n'avons pas pu mettre à jour de limitation dans le cas d'un ombilic. Ces résultats, qui font l'objet d'un publication en cours de préparation, nous permettent d'affirmer que notre approche naturelle est à ce jour la seule option à base de cristaux liquides à même de traiter l'état orbital de la lumière à l'échelle du micron. L'intérêt d'une telle possibilité prend son sens dès lors qu'on envisage

l'utilisation d'une collection d'interfaces spin-orbite optiques pour le traitement de l'information de nature orbitale à large bande spectrale, ce qu'on abordera dans le chapitre suivant.
Problématique de la localisation spatiale d'interfaces spin-orbite microscopiques

Dans les premiers chapitres de cette thèse nous avons décrit différents systèmes naturels permettant d'obtenir une conversion spin-orbite optimale proche de 100%, accordable en longueur d'onde et reconfigurable en temps réel (chapitre 2, [28]), de charges topologiques diverses (chapitre 3, [43]) et de tailles microscopiques (chapitre 4). Cependant, bien que prometteurs quant à l'utilisation des défauts topologiques des cristaux liquides pour le traitement de l'information optique de nature orbitale, ces résultats restent limités à des défauts dont la localisation spatiale n'est pas contrôlée. Concrètement, cela limite évidemment leur potentiel applicatif.

Ce chapitre vise à traiter du problème de la localisation des interfaces spinorbite optiques à base de défauts de cristaux liquides. Pour cela on propose une solution basée sur l'utilisation d'ombilics générés électriquement à des endroits prédéterminés. On en présentera tout d'abord le principe puis une étude théorique du concept proposé. Dans un deuxième temps on discutera la réalisation expérimentale en la confrontant aux simulations. Enfin, on généralisera les résultats obtenus pour un défaut à l'obtention d'un réseau d'interfaces spin-orbite.

Dans ce chapitre, nous nous intéressons à la réalisation d'un réseau microscopique d'interfaces spin-orbites de type ombilics (voir chapitre 2) générées et contrôlées électriquement. La démonstration expérimentale est confortée par un modèle analytique dont les simulations sont comparées aux observations.

5.1 Ombilic localisé : principe et analyse

5.1.1 Présentation de la proposition

Plutôt qu'une électrode uniforme donnant lieu à des ombilics dont on ne contrôle pas le lieu d'apparition, comme c'était le cas dans le chapitre 2 (Fig. 2.1(a) et (b)), nous proposons ici l'utilisation d'une électrode localisée afin de forcer l'apparition d'un ombilic à un endroit prédéterminé. Un schéma de principe est présenté en Figure 5.1(c) et (d). L'idée consiste à utiliser un film nématique entre deux substrats de verre recouverts d'ITO, dont l'un est structuré afin de définir deux régions indépendantes que l'on peut associer à deux tensions U_1 et U_2 de fréquences respectives f_1 et f_2 .



FIGURE 5.1: (a) Film nématique homéotrope au repos. (b) Situation rencontrée au chapitre 3, qui correspond à l'utilisation d'électrodes uniformes : un ombilic se forme aléatoirement pour $\varepsilon^{(f)} < 0$ et U > V. (c,d) Configuration à deux électrodes indépendantes associées à des tensions U_1 et U_2 de fréquences f_1 et f_2 avec $\varepsilon_a^{(f_1)} < 0$ et $\varepsilon_a^{(f_2)} > 0$, qui permet de localiser un ombilic au centre de l'électrode de la région 1. Lorsque $U_2 \neq 0$, la traîne de réorientation dans la région 2 peut être électriquement amortie ($\xi \to 0$).

Considérons par exemple le cas où $U_1 \neq 0$ et $U_2 = 0$. Si $\varepsilon_a^{(f_1)} < 0$ on s'attend à une possible génération d'un ombilic dans la région 1 lorsque, typiquement, $U_1 > V_1$ où V_1 est la tension seuil de réorientation dans le cas uniforme (voir chapitre 2). Toutefois, bien que $U_2 = 0$, la région 2 sera elle aussi associée à une réorientation du cristal liquide à cause des effets de réalignement à longue portée. Cela est illustré sur Figure 5.1(c) par la distance caractéristique ξ . Si on considère maintenant $U_2 \neq 0$ et $\varepsilon_a^{(f_2)} > 0$ (on note que $\varepsilon_a^{(f_1)} < 0$ et $\varepsilon_a^{(f_2)} > 0$ impliquent l'utilisation de cristaux liquides particuliers, dits « double-fréquence »), le cristal liquide en région 2 aura tendance à être réaligné selon la normale au film. Autrement dit on a la possibilité de confiner électriquement la réorientation en région 1, comme cela est illustré en Figure 5.1(d). Comme on le verra à la fin de ce chapitre, cela permet d'envisager la mise en réseaux denses d'interfaces spin-orbite de type ombilic.

5.1.2 Etude théorique structurelle

Une analyse théorique de la proposition est effectuée en considérant la région 1 comme étant un disque de rayon R entouré par la région 2. Dans ce cas, l'axisymétrie du système permet une extension directe de l'approche faite par Rapini [26] et décrite dans le chapitre 2, où le directeur est paramétré par $\mathbf{n} = (\sin \vartheta \cos \psi, \sin \vartheta \sin \psi, \cos \vartheta)$ avec $\psi = s\varphi + \varphi_0, s = \pm 1$ et $\vartheta(r, z) = \theta(r) \sin(\pi z/L)$. Dans le cas où $\varepsilon_a^{(f_1)} < 0$ et $\varepsilon_a^{(f_2)} > 0$ on obtient alors que $\theta(r)$ satisfait l'équation différentielle non-linéaire du second ordre :

$$\frac{\partial^2 \theta}{\partial \rho^2} + \frac{1}{\rho} \frac{\partial \theta}{\partial \rho} + \left(\frac{1}{\rho_i^2} - \frac{1}{\rho^2}\right) \theta - \frac{1}{\rho_i^2 \Theta_i^2} \theta^3 = 0$$
(5.1)

où $\rho = r/R$ est la coordonnée radiale normalisée. De plus on a introduit les carrés des distances normalisées ρ_i^2 , et des amplitudes normalisées Θ_i^2 , où l'indice i = (1, 2) fait référence à la région considérée dépendamment de la valeur de ρ , telles que :

$$\rho_i^2 = \left(\frac{L}{\pi R}\right)^2 \left(\frac{K_3}{K_{\text{eff}}} \left[(-1)^{i+1} \tilde{U}_i^2 - 1 \right] \right)^{-1}$$
(5.2)

$$\Theta_i^2 = 2 \; \frac{(-1)^{i+1} \tilde{U}_i^2 - 1}{\frac{K_1}{K_3} + (-1)^i \; \frac{\varepsilon_a^{(f_i)}}{\varepsilon_{\parallel}^{(f_i)}} \; \tilde{U}_i^2} \tag{5.3}$$

où \tilde{U}_i est la tension appliquée à la zone *i* normalisée par la tension seuil associée $V_i = \pi [K_3/(\varepsilon_0 | \varepsilon_a^{(f_i)} |)]^{\frac{1}{2}}$. L'équation (5.1) est associée aux conditions aux bords $\theta(0) = 0$ et $\theta(r \gg R) = 0$.

La structure de tels ombilics localisés est analysée en résolvant l'équation (5.1) en utilisant les paramètres du cristal liquide nématique double-fréquence MLC-2048 utilisé dans les expériences, à savoir $\varepsilon_a^{(f_1)} = -3.4$ à la fréquence $f_1 = 100$ kHz, $\varepsilon_a^{(f_2)} = 3.22$ à la fréquence $f_2 = 1$ kHz, $K_1 = 17.3$ pN, $K_2 = 12.7$ pN et $K_3 = 30.3$ pN [46] et on obtient ainsi les tensions seuils $V_1 = 3.15$ V_{rms} et $V_2 = 3.24$ V_{rms}. De plus, on restreint les simulations au cas s = +1 car, comme on le verra par la suite, seuls les ombilics de charge +1 ont été observés en pratique. Aussi, comme $K_2 < K_1$ pour le cristal liquide choisi, on prendra $K_{\text{eff}} = K_2$, voir section 2.1. Enfin, nous avons choisi un film d'épaisseur $L = 13 \ \mu\text{m}$ et un rayon $R = 30 \ \mu\text{m}$ pour le disque de l'électrode définissant la région 1 qui correspondent aux paramètres utilisés pour les expériences qui seront comparées aux résultats des simulations.

Les résultats pour le profil radial $\theta(\rho)$ sont présentés en Figure 5.2(a) pour différentes valeurs de la tension normalisée \tilde{U}_1 lorsque la tension appliquée sur l'électrode dans la région 2 est nulle. Comme on peut le voir sur cette figure, le profil de réorientation dans la région ne diffère que peu de la solution trouvée dans le cas d'une électrode uniforme lorsque U_1 est suffisamment grande devant 1, voir la Figure 2.4 du chapitre 2. En effet, dans ce cas, le rayon de coeur est suffisamment petit devant R pour que le système soit insensible à ce qui se passe dans la région 2. Au contraire, lorsque $\tilde{U}_1 \gtrsim 1$, l'influence de la région 2 se fait clairement sentir, ce qui se traduit par une absence complète de saturation de l'amplitude dans la région 1. L'influence de la tension appliquée U_2 en région 2 sur l'amortissement de la réorientation pour une valeur \tilde{U}_1 fixée est quant à elle présentée sur la Figure 5.2(b). L'efficacité de la stratégie de confinement électrique d'un ombilic peut être jaugée via la dépendance de la longueur caractéristique de la relaxation élastique définie ξ comme $\theta(R+\xi) = 0.1 \max_r [\theta(r)]$ en fonction de U_2 , voir Figure 5.2(c). On remarque sur la Figure 5.2(b) que le confinement du défaut se fait au prix d'un « rognage » de la région 1, ce que l'on observe également en pratique lorsque l'on applique une tension \tilde{U}_2 élevée.



FIGURE 5.2: (a) Simulation de l'amplitude de réorientation θ en fonction de la coordonnée radiale normalisée $\rho = r/R$ pour une tension \tilde{U}_1 donnée lorsque $\tilde{U}_2 = 0$. (b) Effet de l'application d'un champ électrique \tilde{U}_2 dans la région 2 sur l'amortissement de la réorientation θ aux grands r pour différentes valeurs de \tilde{U}_2 avec $\tilde{U}_1 = 1.27$. (c) Dépendance de la longueur caractéristique ξ (voir Figure 5.1) en fonction de \tilde{U}_2 .

5.1.3 Etude théorique de la génération de vortex

Comme nous l'avons vu à plusieurs reprises dans les chapitres précédents, la capacité qu'a un défaut topologique de transformer un faisceau incident gaussien polarisé circulairement en faisceau vortex est évaluée par le rapport η de la puissance de la composante du champ transmis polarisée contra-circulairement sur la puissance totale transmise. Le taux de conversion de polarisation étant localement donné par sin²[$\Delta(r)/2$] (voir l'équation (1.6)), l'expression de η s'obtient en faisant la moyenne pondérée par le profil d'intensité du faisceau gaussien incident de waist w au niveau du plan du film, soit :

$$\eta = \frac{4}{w^2} \int_0^\infty \exp\left(-2r^2/w^2\right) \sin^2\left[\Delta(r)/2\right] r dr$$
(5.4)

La dépendance de η en fonction de w/R et \tilde{U}_1 lorsque $\tilde{U}_2 = 0$ est présentée en

Figure 5.3(a). On obtient une efficacité de conversion $\eta_{\text{max}} = 0.89$ lorsque w/R = 0.69 et $\tilde{U}_1 = 1.92$ (voir le point sur la figure). La dépendance de η en fonction (i) de la tension \tilde{U}_1 lorsque le ratio w/R = 0.69 est fixé et (ii) du waist normalisé lorsque la tension appliquée dans région 1 est fixée à $\tilde{U}_1 = 1.92$ sont montrés sur la Figure 5.3(a) et reproduites indépendamment sur les Figures 5.3(b) et (c) respectivement.

Le comportement oscillant de η en fonction de la tension appliquée est similaire à celui du cas d'une électrode uniforme (voir la Figure 2.9 du chapitre 2). La spécificité du cas localisé est la dépendance en w/R qui est associée à une valeur optimale qui ne tend pas vers 100% mais qui reste élevée malgré tout. En particulier, la sensibilité en w/R est illustrée par la zone grisée, qui correspond à une variation de 10% par rapport à η_{max} , soit typiquement R/2 < w < R.



FIGURE 5.3: (a) Carte de l'efficacité de conversion spin-orbite η en fonction du waist normalisé w/R et de la tension appliquée dans la région 1 \tilde{U}_1 lorsque $\tilde{U}_2 = 0$. Le disque jaune indique la valeur maximale η_{\max} obtenue pour w/R = 0.69 et $\tilde{U}_1 = 1.92$. (b,c) La dépendance de η selon les lignes en pointillés sur la figure (a) est montrée sur les figures (b) et (c), où la zone grisée représente la variation de la valeur de l'efficacité de conversion à 10% de la valeur maximale η_{\max} .

5.2 Etude expérimentale d'une interface spinorbite localisée

5.2.1 Choix des paramètres expérimentaux

Le design de l'électrode est réalisé par ablation laser directe réalisée avant l'assemblage des lames pour la fabrication de la cellule (voir par exemple [47]). Une image typique des traits d'ablation obtenus est effectuée au microscope électronique à balayage est présentée en Figure 5.4(a). On choisit pour la région 1 un carré de côté 2*R* dont la taille varie entre 20 μ m et 140 μ m par pas de 10 μ m avec une largeur d'ablation $e = 5 \ \mu$ m, suffisante pour isoler les deux régions.

L'échantillon est observé entre polariseurs linéaires croisés, Figure 5.4(b), et entre polariseurs circulaires croisés, Figure 5.4(c). On constate dans les deux cas que la région 2 est sombre, démontrant que l'amortissement de la réorientation des cristaux liquides est effectif dans cette région et ce malgré l'application d'un champ dans la région 1, qui conduit à l'apparition spontanée d'un défaut de type ombilic. On vérifie que cet ombilic est de charge s = +1 en suivant la méthodologie présentée dans le chapitre 2.

L'observation entre polariseurs linéaires croisés d'un grand nombre de défauts indépendants localisés au niveau d'électrodes de différentes tailles nous a permis de constater un décentrage de l'ombilic d'autant plus important que la surface de l'électrode est grande. Ceci est résumé par l'histogramme présenté en Figure 5.5(a). Si un centrage du défaut représente un atout pratique certain, on note que



FIGURE 5.4: (a) Observation au microscope électronique d'un réseau de lignes d'ablation d'ITO. (b) Observation d'un défaut ombilic centré sur l'électrode carrée soumise à une tension $\tilde{U}_1 = 3$ avec $\tilde{U}_2 = 7.72$, lorsque l'échantillon est placé entre deux polariseurs linéaires croisés et illuminé en lumière blanche. (c) Observation entre deux polariseurs circulaires croisés sous illumination monochromatique ($\lambda = 633$ nm).

l'utilisation d'un défaut confiné dans une trop petite zone implique une influence dommageable du rayon de coeur sur l'efficacité de conversion η . En effet, pour une tension donnée, tous les défauts confinés présentent des rayons de coeur typiquement identiques alors que la surface exploitable de l'interface dépend de la taille de l'électrode. C'est pourquoi le choix de la taille de l'électrode repose sur un compromis entre optimisation de l'efficacité de conversion et centrage de la structure. C'est ce compromis qui nous a fait choisir une électrode de diamètre $2R = 60 \ \mu$ m.



FIGURE 5.5: (a) Histogramme du décalage (on mesure la distance e au centre de l'électrode) de la singularité pour une trentaine de défauts confinés par une électrode de diamètre 2R. (b) Illustration des paramètres utilisés pour quantifier le décalage de la singularité.

5.2.2 Mesure de l'efficacité de conversion

Le montage permettant de mesurer l'efficacité de conversion η d'un faisceau incident de longueur d'onde $\lambda = 532$ nm, est illustré en Figure 5.6(a) où le profil d'intensité annulaire du champ vortex généré est montré Figure 5.6(b). Le profil de la phase associé est obtenu en suivant la procédure présentée dans le Chapitre 3, qui permet d'identifier une charge topologique $|\ell| = 2$ caractérisé par un enroulement de la phase de 4π autour de la singularité. La dépendance de η en fonction de la tension appliquée \tilde{U}_1 est quant à elle présentée en Figure 5.7(a) qui montre un maximum de conversion $\eta_{\text{max}} = 0.96$ pour $\tilde{U}_1 = 3$. Nous avons aussi étudié la dépendance de η en fonction du diamètre du faisceau au niveau de l'échantillon pour une tension de $\tilde{U}_1 = 3$ et $\tilde{U}_2 = 0$, voir Figure 5.7(b). On constate que l'efficacité varie peu de la valeur optimisée en tension $\eta_{\text{max}} = 0.96$



FIGURE 5.6: (a) Montage expérimental pour la mesure de l'efficacité de conversion spin-orbite η , où E_{in}^{σ} fait référence au faisceau gaussien incident d'état de polarisation circulaire de waist $w_0 = 1.3 \ \mu\text{m}$. (b) et (c) Distributions d'intensité et de phase du champ vortex transmis $E_{\text{out}}^{-\sigma}$.



FIGURE 5.7: (a) Dépendance de η en fonction de la tension appliquée \tilde{U}_1 pour $\tilde{U}_2 = 7.72$ et w/R = 1. On obtient un maximum pour l'efficacité de conversion de $\eta_{\text{max}} = 0.96$. (b) Dépendance de l'efficacité de conversion en fonction de la largeur du faisceau normalisée pour $\tilde{U}_1 = 3$ et $\tilde{U}_2 = 0$.

pour une gamme de waist R/2 < w(z) < 3R/2. On parvient à un bon compromis en ce qui concerne l'efficacité de conversion en utilisant un faisceau dont le waist est de l'ordre de w = R/2; ce résultat est qualitativement en accord avec les résultats prédits, voir Figure 5.3. La diffèrence quantitative entre les résultats expérimentaux et les simulations s'explique par (i) le fait que la simulation est réalisée avec un électrode circulaire, alors qu'elle est carrée en réalité, (ii) le fait que la perturbation de la réorientation des cristaux liquides au niveau de la ligne de contact entre les régions 1 et 2 n'est pas prise en compte par notre modèle et enfin (iii) que les effets de bords pour le champ électrique au voisinage de la frontière entre les régions 1 et 2 sont négligés dans notre modèle.

5.3 Mise en réseaux : vers le traitement ultralarge-bande du moment orbital

5.3.1 Principe

Dans cette section nous allons étendre le concept d'un ombilic localisé à une barrette de M ombilics localisés et alimentés indépendamment par une tension U_j , où j correspond à l'emplacement du défaut dans la barrette. L'intérêt de passer de 1 à M interfaces spin-orbite réside dans la possibilité de pouvoir manipuler de manière optimale l'état orbital d'un champ lumineux polychromatique, longueur d'onde par longueur d'onde. Ceci est en effet impossible à réaliser avec une seule interface à cause de sa sensibilité intrinsèque en longueur d'onde dû



FIGURE 5.8: Principe du traitement large-bande de l'information optique de nature orbitale via l'utilisation d'un réseau d'interfaces spin-orbite.

au fait que $\Delta \propto 1/\lambda$. L'idée est de disperser un rayonnement polychromatique de longueur d'onde $\Delta\lambda$ en M bandes spectrales de longueurs d'onde $\delta\lambda = \Delta\lambda/M$ qui seront traitées indépendemment par M interfaces spin-orbite optimisées, voir Figure 5.8.

Nous l'avons vu dans la section précédente, le confinement d'un ombilic ne change en rien sa capacité à générer un faisceau vortex avec une bonne efficacité de conversion. En pratique, la mise en réseau d'ombilics à l'aide d'un réseau d'électrodes localisées, voir Figure 5.9(a) est une généralisation aisée. L'échantillon est observé entre polariseurs linéaires croisés, Fig. 5.9(b), et entre polariseurs circulaires croisés, Figure 5.9(c). On observe en effet l'apparition de défauts ombilics s = +1 centrés sur chacune des électrodes carrées. Les profils de phase des faisceaux vortex générés à la sortie de l'interface, de charge $|\ell| = 2$, sont quant à eux montrés Figures 5.9(d).

Puisque la réalisation expérimentale de réseaux d'ombilics est possible et que ceux-ci ont un potentiel prometteur en terme de mise en forme topologique de la lumière à petite échelle, nous allons procéder dans ce qui suit à une analyse théorique quantitative du principe proposé.



FIGURE 5.9: (a) Schéma du design des électrodes utilisées dans nos expériences, ici avec un contrôle électrique global. (b) Réseau d'ombilics centrés sur les électrodes carrées soumises à une tension $\tilde{U}_1 = 3$ et $\tilde{U}_2 = 7.72$, observés entre deux polariseurs linéaires croisés en lumière blanche. (c) Observation entre deux polariseurs circulaires croisés à $\lambda = 633$ nm. (d) Profil de phase du champ transmis juste après la barrette de défauts ombilics. Barre d'échelle : 60 μ m.

5.3.2 Analyse théorique générique

Cas d'une interface

Nous allons dans un premier temps étudier l'effet de la largueur spectrale $\Delta\lambda$ du faisceau incident sur la génération de vortex dans le cas d'une interface. Pour cela on suppose que l'on remplit la condition de conversion optimale pour la longueur d'onde centrale Λ , pour laquelle $\Delta(\Lambda) = \pi$, soit $\eta(\Lambda) = 1$. Le déphasage associé à la longueur d'onde λ sera donc $\Delta(\lambda) = \pi\Lambda/\lambda$. L'efficacité de conversion moyenne sur la gamme $\Delta\lambda$ s'obtient alors en faisant la moyenne des efficacités de chacune des longueurs d'onde :

$$\langle \eta \rangle = \frac{1}{\Delta \lambda} \int_{\Lambda - \Delta \lambda/2}^{\Lambda + \Delta \lambda/2} \sin^2 \left(\frac{\pi}{2} \frac{\Lambda}{\lambda}\right) d\lambda \tag{5.5}$$

On calcule l'efficacité de conversion moyenne $\langle \eta \rangle$ pour des valeurs de gamme spectrale s'étalant de 0 à 400 nm, ce qui correspond approximativement à la taille du spectre visible, voir Figure 5.10. On remarque que lorsque $\Delta \lambda \rightarrow 0$, ce qui correspond à un faisceau incident monochromatique, on retrouve $\langle \eta \rangle \rightarrow 1$ et lorsque $\Delta \lambda$ augmente cela induit une diminution du $\langle \eta \rangle$.

Si on retient comme critère optimal une efficacité de conversion supérieure à 99%, on constate sur la Figure 5.10 que cela correspond à une largeur de bande



FIGURE 5.10: Efficacité de conversion moyenne $\langle \eta \rangle$ pour une interface spin-orbite en fonction de la largeur spectrale $\Delta \lambda$ du rayonnement incident. Les pointillés désignent le maximum de largeur spectrale viable pour une conversion supérieure à 99%.

spectrale limite de $\Delta \lambda \approx 130$ nm. Autrement dit, lorsque l'on utilise une seule interface spin-orbite, il n'est pas possible d'obtenir une efficacité de conversion supérieure à 99% pour un faisceau incident dont la largeur spectrale est supérieure ou égale 130 nm, matérialisée par les pointillés sur la Figure 5.10. Pour des faisceaux à large-bande spectrale il est donc nécessaire d'augmenter le nombre d'interfaces, ce que l'on traite dans la section suivante.

Cas de M interfaces

On considère un faisceau de lumière dispersé selon l'axe x de largeur spectrale totale $\Delta\lambda$ centrée sur la longueur d'onde Λ illuminant une barrette de M = 2N + 1 interfaces spin-orbite centrées sur des zones carrées accolées de coté a, voir Figure 5.11. Les interfaces sont supposées être idéales et de charge s = +1, et chacune d'entre elles est éclairée par un pinceau de lumière de largeur spectrale $\delta\lambda = \Delta\lambda/M$ et de longueur d'onde centrale λ_j . En considérant cette fois-ci $\eta(\lambda_j) = 1$, l'efficacité de conversion η_j de l'interface j s'écrit :

$$\eta_j = \frac{1}{\delta\lambda} \int_{\lambda_j - \frac{\delta\lambda}{2}}^{\lambda_j + \frac{\delta\lambda}{2}} \sin^2\left(\frac{\pi}{2}\frac{\lambda_j}{\lambda}\right) d\lambda \tag{5.6}$$



FIGURE 5.11: Principe d'une barrette contenant 2N + 1 interfaces spin-orbite carrées de côté a, à même de traiter la mise en forme topologique d'un rayonnement de largeur spectrale en longueur d'onde $\Delta\lambda$, centré sur la longueur d'onde Λ .

et l'efficacité de conversion obtenue pour la barrette dans son ensemble s'écrit donc :

$$\langle \eta \rangle = \frac{1}{M} \sum_{j=1}^{M} \eta_j \tag{5.7}$$

L'évolution de la valeur de l'efficacité de conversion moyenne $\langle \eta \rangle$ en fonction du nombre M d'interfaces spin-orbite dans la barrette et de la largeur spectrale totale normalisée par la longueur d'onde centrale $\Delta\lambda/\Lambda$ est tracée pour différentes valeurs limites $\langle \eta \rangle = 94\%$, 96%, 98%, 99%, 99.5%, 99.9% et 99.99%. Ces données sont désignées sur la Figure 5.12 respectivement par la numérotation de 1 à 7 des courbes. On constate qu'une barrette comportant 10 interfaces est suffisante pour obtenir une efficacité de génération de vortex supérieure à 99.5% à partir d'un faisceau ayant une largeur spectrale $\Delta\lambda = 500$ nm centrée sur une longueur d'onde $\Lambda = 600$ nm.



FIGURE 5.12: Evolution de la valeur de l'efficacité de conversion moyenne $\langle \eta \rangle$ en fonction du nombre M de interfaces spin-orbites dans la barrette et de la largeur spectrale totale normalisée par la longueur d'onde centrale $\Delta \lambda / \Lambda$ tracée pour différentes valeurs limites $\langle \eta \rangle$.

5.3.3 Analyse théorique : le cas des réseaux d'ombilics

Bien que le contrôle électrique individuel nécessite la mise en place d'un autre design d'électrodes que celui présenté en section 5.3.1 (qui correspond à un contrôle global), le modèle discuté en section 5.1 permet d'évaluer le potentiel de ces nouveaux dispositifs photoniques pour le traitement hyperspectral du moment orbital de la lumière. Pour cela, on calcule l'efficacité de génération de vortex en fonction de \tilde{U}_1 , à $U_2 = 0$, le domaine visible, dans la configuration optimale d'un faisceau gaussien caractérisé par w = 0.69 (voir section 5.1.3).

On extrait les valeurs de $\eta^{(p)}$ correspondant aux extrema notés p de la courbe $\eta(\tilde{U}_1)$ représentée en Figure 5.3(b) pour différentes valeurs de la longueur d'onde λ , voir Figure 5.13(a). Les valeurs correspondantes de $\tilde{U}_1^{(p)}$ sont reportées sur la Figure 5.13(b). Les lignes en pointillés représentent les valeurs limites des maxima locaux de η ; les valeurs optimales de l'efficacité de conversion pour chaque longueur d'onde – autrement dit le maximum des quatre pics – sont surlignées et on constate qu'une valeur de η supérieure à 85% sur la totalité du domaine visible est accessible.



FIGURE 5.13: (a) Valeurs de $\eta^{(p)}$ correspondant aux extrema notés p de la courbe $\eta(\tilde{U}_1)$ représenté en Figure 5.3(b) en fonction de la longueur d'onde λ . (b) Valeurs correspondantes de $\tilde{U}_1^{(p)}$. Les lignes en pointillés représentent les valeurs limites des maxima locaux de η et les valeurs optimales de η en fonction de la longueur d'onde sont surlignées.

5.4 Conclusions

Nous avons présenté le premier réseau microscopique d'interfaces spin-orbite optiques contrôlables électriquement grâce à l'utilisation de défauts ombilics formés spontanément dans un film de cristaux liquides nématiques via un réseau d'électrodes approprié. Afin d'appuyer nos observations, nous avons étendu le modèle de génération d'ombilics contenus entre deux électrodes uniformes proposé par Rapini [26] au cas d'électrodes localisées. Cette étude, qui a fait l'objet d'une publication [48], ouvre des perspectives d'utilisation de défauts naturels de cristaux liquides pour la mise en forme et le contrôle hyperspectral du moment angulaire orbital de la lumière.

Dans cette voie, il s'agit maintenant de passer expérimentalement au cas d'une barrette d'interfaces spin-orbite individuellement accordables dont l'étude s'est limitée ici à une investigation théorique. Dans ce but, nous avons entamé un travail basé sur un design proche de celui présenté en Figure 5.9 mais qui permet d'appliquer une tension indépendante sur chaque électrode carrée permettant de générer et de localiser un ombilic. Le premier prototype comportant 10 interfaces indépendantes est à ce jour en cours d'élaboration et son étude sera effectuée dans la continuation de cette thèse.

Deuxième partie

Mise en forme topologique de la matière

Structures topologiques induites sous champs dans des films cholestériques frustrés

6.1 Films cholestériques frustrés

6.1.1 Présentation des cristaux liquides cholestériques

Les cristaux liquides cholestériques sont généralement obtenus en dissolvant un dopant chiral dans un cristal liquide nématique. L'orientation locale moyenne des molécules est alors caractérisée par un ordre hélicoïdal comme cela est décrit sur la Figure 6.1 [4]. Cet ordre hélicoïdal se décrit par un enroulement du directeur **n** autour d'un axe donné, disons z, dont la forme s'écrit **n** = $(\cos qz, \sin qz, 0)$ avec $q = \pm 2\pi/p$ avec p le pas de l'hélice et le signe \pm rendant compte de la nature droite ou gauche de l'arrangement supramoléculaire chiral. Le passage de la phase nématique à la phase cholestérique étant continu en fonction de la valeur de la concentration du dopant chiral utilisé, les cristaux liquides cholestériques ne sont pas une mésophase en tant que telle mais correspondent simplement à une phase nématique chirale [33]. De manière analogue aux nématiques, les cholestériques présentent donc un ordre orientationnel à longue portée pouvant donner lieu à différents types de défauts topologiques, en particulier, en fonction de la forme et de l'épaisseur de l'échantillon, des conditions d'ancrage à la surface du substrat, de la concentration en dopant chiral ou de l'application de champs externes (magnétique, électrique, optique...).

6.1.2 Frustration géométrique

Lorsque l'ordre hélicoïdal intrinsèque illustré sur la Figure 6.1 est incompatible avec les conditions orientationnelles aux limites du système, on parle de frustration géométrique [49]. En effet, l'ordre hélicoïdal régulier ne peut alors pas s'exprimer partout au sein du système. Un exemple classique est celui d'un film cholestérique auquel on impose des conditions d'ancrage homéotrope aux bords. Dans ce cas, même en l'absence de champ extérieur, le champ de directeur au repos peut être complètement déroulé si le pas p est suffisamment grand devant l'épaisseur L du film.



FIGURE 6.1: (a) Schéma de l'orientation des molécules au sein d'un cristal liquide cholestérique gauche. Les plans représentés ne sont là que pour illustrer l'enroulement. (b) Définition du pas p. Cette illustration est tirée de la référence [4].

En pratique, on distingue trois cas pour l'état orientationnel fondamental, dépendamment de la valeur du rapport C = L/p, visibles sur la Figure 6.2, où un échantillon en coin est observé entre deux polariseurs linéaires croisés [50] :

– lorsque $C < C_c$, les cristaux liquides s'orientent perpendiculairement au plan du film et le champ de directeur correspond à celui d'un film nématique (achiral) homéotrope. Toutefois, le caractère chiral subsiste à l'échelle moléculaire : on parlera de phase pseudo-nématique. On peut montrer que $C_c = K_3/(2K_2)$ [51], qui correspond typiquement à un pas caractéristique $p_c \approx L$ car on a généralement $K_2/K_3 = 1/2$ pour un cristal liquide nématique.

- lorsque $C_c < C < C^*$, la phase cholestérique présente une texture « en empreinte digitale » avec apparition de doigts cholestériques séparés par une phase homéotrope pseudo-nématique. La valeur C^* est en général de l'ordre de 1.5.
- lorsque $C > C^*$, les doigts cholestériques sont en contact, donnant lieu à une texture chirale inhomogène.

Dans cette partie du manuscrit, nous nous intéresserons exclusivement à de tels films géométriquement frustrés au repos et à leur comportement en présence d'un champ extérieur (électrique ou optique).



FIGURE 6.2: Coin de cristal liquide cholestérique formé par deux lames de verres traitées pour présenter un ancrage homéotrope et formant un angle α (ici exagéré). Trois régions apparaissent entre polariseurs linéaires croisés. (i) Une zone noire, pour un rapport $C = L/p < C_c$, correspondant à une épaisseur où l'ordre hélicoïdal cholestérique est complètement déroulé. (ii) Une zone intermédiaire, pour $C_c < C < C^*$, où l'on constate l'apparition de doigts cholestériques séparés par une phase déroulée et (iii) une région où les doigts sont au contact les uns des autres, pour $C > C^*$. L'illustration est inspirée de la référence [50].

6.2 Structures topologiques localisées induites sous champs

Lorsque C est suffisamment proche, par valeur inférieure, de la valeur critique C_c , il est possible d'enrouler localement le cholestérique par application d'un champ extérieur. En pratique cela correspond à des valeurs telles que $0.8 \leq C \leq 1$ [52]. Nous allons décrire ici deux cas de figure distincts : (i) l'application d'un champ électrique uniforme et (ii) l'application d'un champ optique localisé.

6.2.1 Cas d'un champ électrique quasi-statique

Déstabiliser électriquement l'état fondamental d'un film frustré où le directeur est perpendiculaire au plan du film implique en pratique d'appliquer (i) soit un champ électrique contenu dans le plan si l'anisotropie diélectrique du cristal liquide est positive $\varepsilon_a > 0$, (ii) soit un champ perpendiculaire au plan du film si l'anisotropie diélectrique est négative $\varepsilon_a < 0$. Le deuxième cas est plus facile à mettre en oeuvre et permet d'appliquer un couple dégénéré azimutalement donnant naturellement accès à la génération de défauts, comme cela a été abordé dans la première partie de cette thèse dans le cas des nématiques purs. L'application d'un tel champ électrique dans cette configuration donne lieu à une grande variété de structures, en particulier des doigts cholestériques dont une description complète est présentée dans la référence [50], et des structures localisées appelées sphérulites de manière générique. Ces dernières ont été identifiées en 1974, indépendamment par Kawachi et al. et par Haas et Adams sous la forme de réseaux de structures topologiques localisées métastables [53–55]. Une image tirée de la référence [55] est présentée en Figure 6.3. Les structures observées possèdent une taille caractéristique de l'ordre du pas cholestérique et sont composées de deux défauts singuliers chacun situé près d'une des deux surfaces internes de la cellule [52].



FIGURE 6.3: Structures topologiques localisées métastables obtenues via l'application d'un champ électrique quasi-statique uniforme à un film de cristal liquide cholestérique satisfaisant à la condition $C \leq C_c$. Cette image est tirée de la référence [55]. Barre d'échelle : 100 μ m.

6.2.2 Cas d'un champ lumineux

En 2010, Smalyukh et al. démontrent qu'un faisceau laser très focalisé permet de générer des structures topologiques métastables localisées de manière contrôlée [56]. De plus, ils montrent la possibilité d'obtenir trois structures métastables distinctes, qu'ils nomment *triple twisted torons* (T3-n, avec n = 1, 2, 3) en référence aux structures triplement enroulées prédites numériquement. Ces structures sont décrites comme un enroulement en tore non singulier dans le plan du film, associé à deux singularités de nature ponctuelle et/ou linéaire, voir Figure 6.4(a) [56].

Un point clé de ces travaux est que Smalyukh et al. ont avancé que la génération de ces différents états métastables est associée à l'utilisation de vortex optiques fortement focalisés comme champ d'excitation. Plus précisément, il a été montré que des faisceaux vortex de charges topologiques $0 \leq |\ell| \leq 4$ permettent de générer des torons de type T3-1 tandis que des torons de type T3-2 sont générés pour $4 \leq |\ell| \leq 8$ et que le type T3-3 est obtenu pour $|\ell| > 8$, voir Figure 6.4(b). Enfin, on note que l'utilisation d'un faisceau laser très focalisé n'est en fait pas une condition nécessaire à l'obtention de structures localisées, comme cela a été montré plus récemment [31, 57].



FIGURE 6.4: (a) Illustration du champ de directeur 3D pour les trois types de structures topologiques métastables localisées prédites et observées dans la référence [56]. (b) Les trois structures correspondantes observées entre polariseurs linéaires croisés. Figure adaptée de la référence [56].

6.2.3 Potentiel applicatif

Comme cela a été clairement remarqué par Haas et Adams dès 1974 pour l'approche électrique [54, 55], la génération contrôlée de structures de défauts métastables microscopiques permet d'envisager des applications en termes de stockage de l'information ou d'écriture de masques de phase. L'extension bien plus récente au cas optique offre non seulement une diversité topologique mais aussi la possibilité d'enregistrer des assemblées arbitraires de structures individuelles, périodiques ou non, en 2D [58, 59] ou en 3D [60].

Un exemple de masque de phase obtenu à l'aide d'assemblées de structures métastables générées optiquement, ayant retenu une attention particulière, correspond à des réseaux « singuliers », tels que ceux montrés en Figure 6.5 [58,59]. Dans les deux cas présentés dans cette figure, où le réseau singulier est constitué de structures ponctuelles (Fig. 6.5(a)) ou linéaires (Fig. 6.5(b)), le champ diffracté permet d'obtenir des vortex optiques (voir la section 1.1.3 du chapitre 1).

Bien qu'attractive en termes de génération de vortex, l'approche précédente nécessite la fabrication contrôlée d'une super-structure. En fait, Yang et Brasselet ont montré qu'une seule structure se comporte comme un générateur de vortex pour peu que l'on exploite ses propriétés de couplage spin-orbite optique [31], de manière analogue à ce qu'on a vu dans la première partie du manuscrit pour des défauts de type ombilic et Schlieren de charge s = +1. Ceci est illustré sur la Figure 6.6. La mise en réseau d'un grand nombre de générateurs de vortex spinorbite réinscriptibles devient alors aisément accessible, comme cela est illustré Fig.6.6(d) [31].

6.3 Diversité topologique sous champ gaussien

Comme nous l'avons présenté dans la section précédente, la génération des structures localisées distinctes nécessite l'utilisation de faisceaux vortex. Toutefois, on note qu'il n'y a pas de relation bijective entre topologies matérielle et lumineuse. Partant de ce fait, notre proposition consiste à postuler que l'utilisation d'un vortex optique comme champ excitateur n'est pas une condition nécessaire à l'obtention d'une diversité topologique structurelle. Notre démonstration expé-



FIGURE 6.5: (a) Dislocation au sein d'un réseau de structures de type T3-1 permettant de générer des faisceaux vortex dont la charge dépend de la nature de la charge topologique de la dislocation. Les distributions d'intensité et de phase du faisceau vortex obtenu sont montrés en (b) et (c) respectivement. (d) Dislocation à base de doigts cholestériques. Le champ diffracté pour un faisceau gaussien incident centré sur la dislocation est présenté en (e). Les images (a-c) sont tirées de la référence [58] et les images (d) et (e) de la référence [59].

rimentale a été faite en deux temps : d'abord à l'aide d'un excitation électrique étendue, puis dans le cas d'un faisceau laser gaussien polarisé linéairement et focalisé modérément.

6.3.1 Présentation du système choisi

L'échantillon utilisé consiste en un film de cristal liquide cholestérique d'épaisseur $L = 10\mu$ m confiné entre deux lames de verres recouvertes d'une électrode transparente (de l'ITO) et préparées afin de présenter un ancrage homéotrope des molécules. Le cholestérique est préparé en ajoutant un dopant chiral nonmésogène S-811 (fabriqué par Merck) à un cristal liquide nématique pur, en l'occurrence le composé double-fréquence MLC-2048 que nous avions utilisé dans les chapitres 4 et 5. Il reste donc à déterminer la concentration à utiliser pour avoir $p \sim L$ afin d'obtenir un film frustré complètement déroulé dans l'état fondamental. Pour cela on s'appuie sur une étude effectuée par Hsiao et al. où est obtenue





une longueur d'onde pour la réflexion de Bragg¹ $\lambda_{\rm B} = p(n_{\parallel} + n_{\perp})/2 = 875$ nm pour une concentration massique c = 15.5%wt de S-811 dans du MLC-2048 [61] sachant que $n_{\parallel} = 1.6864$ et $n_{\perp} = 1.4610$ [46] et, en supposant un comportement linéaire entre c et 1/p, on trouve une concentration de 0.86%wt pour obtenir un pas $p \approx 10 \ \mu$ m. Afin de contrôler la valeur réelle du pas de la solution obtenue, on utilise une cellule-coin calibrée et on mesure un pas expérimental de $p_{\rm exp} = 10.4 \ \mu$ m, valeur qui convient pour nos expériences.

6.3.2 Résultats expérimentaux

Dans cette partie on se propose de montrer la possibilité d'utiliser (i) un champ électrique quasi-statique et (ii) un faisceau gaussien polarisé linéairement afin de générer des structures topologiques métastables, avec un haut degré de diversité topologique.

^{1.} Ce phénomène correspond à la réflexion sélective d'une onde polarisée circulairement se propageant le long de l'axe de l'hélice cholestérique.

Cas électrique

Dans un premier temps, on utilise un champ électrique quasi-statique comme élément déclencheur de l'enroulement de l'orientation du directeur. En pratique, on applique au film cholestérique un champ électrique de faible tension et de fréquence $f_2 = 100$ kHz pour laquelle le matériau présente une anisotropie diélectrique négative $\varepsilon_a = -3.4$ [46]. Le champ appliqué réoriente donc le cristal liquide dans le plan du film au-delà d'une tension seuil, avec apparition d'un grand nombre de structures de défauts reparties aléatoirement.

On recense trois types de structures, présentées sur la Figure 6.7, que l'on notera S_1 (a), S_2 (b) et S_3 (c). Ces structures électro-induites sont similaires à celles obtenues par Smalyukh et al. sous champ vortex très focalisé et de charge topologique croissante [56], voir Fig. 6.4. Bien que la correspondance $S_n \leftrightarrow T3-n$ soit fort probablement correcte, nous n'avons pas pu la vérifier grâce à une reconstruction 3D du champ de directeur (par manque d'accès à une telle technique d'imagerie); nous nous contenterons par la suite de nommer ces structures distinctes S_n (avec n=1,2,3).

Ces observations constituent en soi un résultat remarquable puisque cela démontre que l'utilisation de faisceaux structurés tels que ceux de type Laguerre-Gauss n'est pas une condition nécessaire pour la génération d'une multitude de structures topologiques distinctes [31,56–60,62,63]. Fort de ces résultats, un dernier verrou reste à lever : la localisation spatiale de structures S_n générées sous champs non singuliers. Pour cela, une approche optique basée sur l'utilisation d'un simple faisceau gaussien est présentée dans la section suivante.



FIGURE 6.7: Génération spontanée de structures topologiques au sein d'un film de cristal liquide cholestérique frustré à partir d'une excitation électrique uniforme, voir le texte pour les détails. Les images ont été prises entre polariseurs linéaires croisés. Barre d'échelle 10 μ m.

Cas optique

Dans un second temps on utilise un faisceau gaussien de longueur d'onde $\lambda = 532$ nm polarisé linéairement et focalisé modérément à l'aide d'un objectif de microscope ×20 d'ouverture numérique NA = 0.4, à incidence normale sur le film présenté précédemment, voir Figure 6.8. Cela correspond à un faisceau ayant un waist $w_0 = 0.61\lambda/\text{NA} = 0.8 \ \mu\text{m}$ au plan focal de l'objectif défini par z = 0, qui correspond à une divergence dans l'échantillon $\theta = \theta_0/n_{\perp}$ avec $\theta_0 = \lambda/(\pi w_0)$, soit $\theta = 0.17$ rad. En variant la position de l'échantillon le long de l'axe z à divergence constante, on peut choisir la taille du spot lumineux sur le film cholestérique dont le rayon est noté w(z).



FIGURE 6.8: Montage expérimental : champ optique gaussien polarisé linéairement à incidence normale sur un film de cholestérique frustré d'épaisseur L. L'échantillon est placé à une distance z du plan focal de l'objectif où le rayon du faisceau est noté w_0 et avec le rayon du faisceau w(z) au niveau du plan de l'échantillon.

Lorsque le film cholestérique est placé à z = 0, on observe l'apparition de structures métastables de type S_1 au-delà d'une puissance $P \approx 70$ mW, voir Fig. 6.9(d). Lorsque l'on déplace progressivement l'échantillon selon z, on obtient deux autres structures métastables distinctes, S_2 puis S_3 , voir les Fig. 6.9(e) et (f). Typiquement, les valeurs minimales de z et de P au-delà desquelles on observe la formation des structures S_2 et S_3 sont respectivement $z \approx 30 \ \mu m$ et $z \approx 80 \ \mu m$ pour des puissances $P \approx 300 \ mW$ et $P \approx 600 \ mW$.

Afin de démontrer le caractère reproductible de la génération de ces trois structures S_n (avec n = 1, 2, 3), on effectue une moyenne des images obtenues



FIGURE 6.9: Observation des trois types distincts d'états topologiques chiraux notés S_1 (d) et (g), S_2 (e) et (h) et S_3 (f) et (i) générés par des faisceaux gaussiens d'extensions spatiales croissantes (a-c). Le rang d'images (d-f) fait référence au profil d'intensité entre polariseurs linéaires croisés de structures S_n individuelles tandis que le rang d'images (g-i) présente des images moyennes sur plus de dix structures indépendantes.

pour au moins 10 événements indépendants dans les mêmes conditions expérimentales. Les résultats sont présentés sur les Figures 6.9(g-i). On constate que le profil d'intensité d'une seule structure S_n est très proche de celui obtenu lors du moyennage, ce qui nous permet de conclure à une excellente reproductibilité.

Ces résultats démontrent que le paramètre important pour la génération de diverses structures topologiques métastables localisées par voie optique n'est pas tant le caractère structuré, tel que l'état de l'art l'indiquait, que la taille caractéristique de la sollicitation lumineuse. A l'aune de ces résultats on peut maintenant comprendre la relation non bijective entre topologie matérielle et lumineuse établie auparavant ainsi que l'apparition de structure T3-*n* avec *n* croissant pour des valeurs de $|\ell|$ croissantes. En effet, à divergence et position du film fixées, ce qui était le cas dans la référence [56], la taille caractéristique d'un faisceau vortex incident de type Laguerre-Gauss croît avec $|\ell|$.

6.4 Reconfigurabilité topologique

Puisque les structures S_n correspondent à un champ de directeur ayant une composante non nulle dans le plan du film, il est possible de les modifier aisément par application d'un champ électrique quasi-statique perpendiculairement au plan du film. En particulier, si on choisit une fréquence f_1 telle que $\epsilon_a(f_1) > 0$, ce qui est le cas pour $f_1 = 1$ kHz pour le cristal liquide choisi, le directeur tend à s'aligner le long de la direction du champ électrique ce qui permet de dérouler progressivement les structures enroulées dépendamment de la valeur de la tension appliquée. S'il est clair que pour des tensions suffisamment grandes on retrouve l'état fondamental associé à un ordre pseudo-nématique homéotrope, des valeurs intermédiaires donnent a priori accès à des états réorientés intermédiaires. Afin de caractériser l'aspect reconfigurable des structures S_n (n = 1, 2, 3), on étudie l'évolution de le ur diamètre en fonction de la tension appliquée U de fréquence f_1 par pas de $0.05V_{\rm rms}$. Les résultats sont présentés sur la Figure 6.10, où le diamètre des structures est déterminé par la mesure du diamètre de l'anneau le plus lumineux sur les images obtenues entre polariseurs circulaires croisés pour une illumination monochromatique de longueur d'onde $\lambda = 532$ nm. En effet, l'image d'un



FIGURE 6.10: Evolution du diamètre des trois types de structures S_n (avec n = 1, 2, 3) en fonction du champ électrique appliqué U de fréquence $f_1 = 1$ kHz pour laquelle $\varepsilon_a > 0$. Les diamètres sont normalisés par le diamètre de S_1 à tension nulle. Barre d'échelle : 5 μ m.

6.5 Conclusions

système inhomogène, biréfringent et axisymétrique entre polariseurs circulaires croisés mène à un profil d'intensité axisymétrique dont la taille caractéristique peut être évaluée de manière fiable.

On constate que le déroulement induit électriquement implique une contraction des structures au fur et à mesure que le champ augmente. Cette évolution monotone est toutefois caractérisée par la présence de variations brutales du diamètre des structures. Ceci met en avant à la fois la nature hiérarchique des structures S_n et la barrière d'énergie (associée au déformations élastiques) entre deux types de structures. Concrètement, lorsque le champ électrique appliqué augmente, on identifie les séquences $S_3 \rightarrow S_2 \rightarrow S_1 \rightarrow S_0$, $S_2 \rightarrow S_1 \rightarrow S_0$ et $S_1 \rightarrow S_0$ où S_0 désigne l'état fondamental non réorienté. De plus, on observe des transitions entre structures : la première entre S_3 et S_2 à $U \approx 0.5$ V_{rms}, la deuxième entre S_2 et S_1 à $U \approx 1.25$ V_{rms} et enfin la dernière entre S_1 et S_0 à U = 3.5 V_{rms}.

Enfin, on note qu'à l'inverse, l'application d'un champ électrique de fréquence $f_2 = 100$ kHz, pour laquelle $\varepsilon_a < 0$, tend à réaligner le directeur dans le plan du film et par conséquent à augmenter la taille des structures. Il est ainsi possible de passer d'une structure S_2 à S_3 mais nous n'avons jamais observé le passage d'une structure S_1 à S_2 . Dans ce dernier cas de figure, la structure S_1 forme un doigt cholestérique qui grandit jusqu'à former des motifs de fleurs ou d'empreintes digitales mentionnés dans la référence [50].

6.5 Conclusions

Le résultat principal de ce chapitre concerne la démonstration expérimentale de la possibilité d'accéder, à la demande et par voie optique, à une diversité topologique de structures à défauts métastables localisées dans des films cholestériques frustrés, et ce, sans avoir recours à l'utilisation de faisceaux lumineux structurés. Ceci pose un nouveau standard eu égard à l'état de l'art dans ce domaine de recherche qui a débuté il y a cinq ans [56]. Un autre point important est d'offrir tout un jeu de données expérimentales concernant les structures S_2 et S_3 mentionnées uniquement dans le travail initial de 2010 [56] bien que de nombreux travaux ont été publiés depuis sur les structures localisées induites optiquement [31, 56–60, 62, 63]. Enfin, on mentionne que l'étude présentée dans ce chapitre a fait l'objet d'une publication [64].

Topologies exotiques sous champs

Dans le chapitre précédent nous avons démontré qu'un simple faisceau gaussien ou un champ électrique uniforme est à même d'induire, de façon contrôlée, des structures topologiques distinctes qui jusqu'alors avaient été obtenues en utilisant des faisceaux structurés (de type Laguerre-Gauss). La diversité topologique observée reste cependant limitée à quelques structures, ce qui ne préjuge en rien de l'existence d'une plus large gamme de structures potentiellement observables. Si une approche numérique d'identification de nouvelles structures topologiques est une option à considérer afin de promouvoir la mise en place d'une campagne de mesures ciblées, nous proposons ici une démarche purement expérimentale. Plus précisément, nous avons expérimentalement mis à jour une variété de nouvelles structures et de super-structures topologiques induites sous champ optique et électro-optique, de manière spontanée ou contrôlée.

7.1 Génération spontanée par voie optique

Jusqu'à présent nous avons réussi à induire optiquement trois types de structures localisées S_n (avec n = 1, 2, 3) dépendamment du diamètre et de la puissance d'un faisceau gaussien incident de polarisation linéaire. Dans cette section, nous explorons expérimentalement ce qui se produit lorsque l'on augmente la taille et la puissance au-delà de ce qui est nécessaire pour générer ces structures.

7.1.1 Montage expérimental

Les différentes structures présentées dans ce chapitre sont obtenues et observées suivant le montage présenté en Fig. 7.1. La partie « écriture » optique est la même que celle utilisée au chapitre précédent. Il en va de même pour l'échantillon utilisé auquel on peut appliquer un champ électrique quasi-statique, de fréquence contrôlée. Un contrôle en temps réel de la génération de structures est effectué à l'aide d'un faisceau sonde de lumière blanche polarisée introduit par le biais d'un cube non-polarisant (voir montage). En supprimant la lumière pompe en sortie du film cholestérique à l'aide d'un filtre coloré on peut suivre sur une caméra CCD l'apparition et l'évolution des structures induites entre polariseurs croisés, donc sur fond noir.



FIGURE 7.1: Montage experimental. P_x : polariseur orienté selon l'axe des x, P_y : polariseur orienté selon l'axe des y, CS: cube polarisant, L_1 et L_2 : lentilles, F: filtre coupant la longueur d'onde $\lambda = 532$ nm. CCD: caméra. Voir le texte pour le détail.

7.1.2 Structures de type multimère

De manière inattendue, en utilisant un faisceau de diamètre et de puissance suffisamment élevés (ici $2w(z) = 330 \ \mu m$ et $P \approx 3$ W) on observe la formation de structures topologiques dont les images entre polariseurs linéaires croisés à $\lambda = 532$ nm sont présentées sur la Figure 7.2(a), (b) et (c). En effet, en plus de retrouver la structure « simple » S_1 , on observe aussi une structure « dimère » notée $(S_1)_2$ et une structure « trimère » notée $(S_1)_3$. Une structure $(S_1)_m$, m entier, correspond à un multimère composé de plusieurs blocs fondamentaux S_1 qui se retrouvent soudés via une structure complexe de défauts topologiques formant un squelette à m bras que l'on visualise qualitativement par une observation en lumière naturelle, voir Fig. 7.2(d-f). De plus, la visualisation de ces structures en dehors de la mise au point optimale révèle les propriétés de focalisation de chacun des blocs élémentaires de types S_1 mettant ainsi en évidence le caractère multimère des structures $(S_1)_m$, ainsi qu'un possible intérêt en terme de micro-éléments optiques (ici des micro-lentilles), voir Fig. 7.3.

L'existence de ces structures exotiques n'ayant jamais été rapportée expérimentalement et théoriquement, ces résultats ouvrent donc clairement la voie à une étude plus approfondie. En particulier, il est raisonnable de penser qu'une modification de l'état de surface peut jouer un rôle, bien que nous ne soyons pas en mesure d'en apporter une preuve expérimentale à ce jour. En effet, les struc-



FIGURE 7.2: Structures métastables : (a,d) simple S_1 , (b,e) dimère $(S_1)_2$ et (c,f) trimère $(S_1)_3$, voir le texte pour les détails. En haut : images obtenues lorsque les structures sont placées entre deux polariseurs linéaires croisés et éclairées par un faisceau monochromatique de longueur d'onde $\lambda = 532$ nm. En bas : Visualisation à la mise au point en lumière blanche naturelle, on observe une structure de défaut relativement complexe. Barre d'échelle : 5 μ m.



FIGURE 7.3: Visualisation hors mise au point, en lumière blanche naturelle des structures présentées sur la Fig. 7.2. L'effet lentille de chacune des m sous-structures de type S_1 est clairement identifié. Barre d'échelle : 5 μ m.
tures $(S_1)_{m\geq 2}$ ne sont pas déplaçables par manipulation optique, contrairement au cas S_1 ce qui laisse à penser à un couplage entre effet de volume et de surface. Enfin, il n'y a pas de raison de penser que des structures $(S_1)_m$, $m \geq 4$, ne puissent pas être observées. La question de multimères de types $(S_2)_m$ et $(S_3)_m$ reste elle aussi ouverte.

7.1.3 Auto-assemblage de structures individuelles

Un autre type de structures topologiques est observé dans les mêmes conditions expérimentales que la section 7.1.2. Il s'agit d'un assemblage de structures S_1 confinées dans une boucle formée par ce qui semble être un doigt cholestérique du premier type [50]. Ces observations sont résumées sur la Figure 7.4, lorsqu'une telle boucle est remplie de N = 1 (a), N = 2 (b), N = 3 (c), N = 7 (d) et N = 17 (e) structures de type S_1 . Ces observations mettent en évidence que les structures S_1 se comportent comme des quasi-particules élastiques [56], dont la structure topologique a pour conséquence d'écranter les interactions élastiques entre elles. On note que, de ce point de vue, les structures S_n peuvent être de manière générale pensées comme des colloïdes liquides « baignant » dans leur propre liquide.



FIGURE 7.4: Auto-assemblage de N structures de type S_1 à l'intérieur d'une boucle, visualisées entre polariseurs linéaires croisés à $\lambda = 532$ nm, pour N = 1 (a), N = 2 (b), N = 3 (c), N = 7 (d) et N = 17 (e). Barre d'échelle : 15 μ m.

7.2 Génération contrôlée par voie électro-optique

Dans la section précédente, différentes architectures topologiques originales ont été présentées. Toutefois, leurs formations résultent d'un processus spontané non contrôlé. Nous allons ici aborder la question de la génération contrôlée de structures topologiques exotiques. Pour cela, l'idée est de bénéficier à la fois de la possibilité de générer des structures « à la demande » de type S_n par voie optique ou électrique et des capacités de reconfiguration sous champ électrique, comme on a pu le voir dans le chapitre 6.

7.2.1 Structuration « bottom-up »

On propose ici de réaliser, à la demande, les assemblages de structures individuelles présentées Figure 7.4. La démonstration est faite dans le cas particulier de la structure présentée Figure 7.4(a), la généralisation aux autres cas ne représentant pas de difficulté conceptuelle supplémentaire. La procédure consiste en la succession de plusieurs étapes indépendantes, optiques et électriques.

La première étape est la génération d'une structure de type S_3 par un faisceau gaussien avec la méthodologie décrite dans le chapitre 6, voir la Figure 7.5(a). Un champ électrique quasi-statique $E_{\rm ac}(f_2)$ de fréquence f_2 est alors appliqué avec une tension U = 0.45 V_{rms}. Puisque $\varepsilon_a^{(f_2)} < 0$, le champ renforce le réalignement du directeur dans le plan du film. Cette réorientation s'accompagne d'une augmentation du diamètre de la boucle qu'un raisonnement qualitatif permet de comprendre. En effet, supposons d'abord que le réalignement s'effectue à diamètre constant, les gradients élastiques augmentent et le système a tendance à relaxer les gradients en augmentant le volume de réorientation, donc la taille de la boucle, puisque son « épaisseur » reste contrôlée par le pas intrinsèque du cholestérique, voir Fig. 7.5(b).

L'étape suivante consiste à inscrire une structure de type S_1 à l'intérieur de la structure de la boucle agrandie et stabilisée en maintenant la présence du champ électrique $E_{\rm ac}(f_2)$. Le résultat est présenté sur la Figure 7.5(c). En effet, le directeur étant déroulé à l'intérieur de la boucle, le film s'y comporte localement comme s'il était complètement au repos. Si la zone sollicitée optiquement est suffisamment petite devant le diamètre de la boucle, il est donc possible d'écrire une structure S_1 tel que cela a été présenté au chapitre précédent. Enfin, une fois les champs électrique et optique éteints, le système relaxe spontanément vers un état de plus faible énergie élastique qui correspond au confinement de la structure S_1 au centre de la boucle, formant ainsi la structure « cible » présentée en Figure 7.4(a), voir la Figure 7.5(d). Il est également possible de forcer le processus de relaxation élastique en appliquant un champ quasistatique $E_{\rm ac}(f_1)$ tel que $\varepsilon_a^{(f_1)} > 0$, ce qui tend à réaligner globalement le cristal liquide selon la normale au film, avec pour effet de diminuer le volume de la boucle, donc son diamètre.

Le principe d'assemblage électro-optique proposé ci-dessus se généralise sans difficulté à n'importe quel type de super-structures. En particulier, on peut imaginer assembler une population de structures individuelles S_2 et S_3 à la demande, ce qui imposerait toutefois de ne pas passer le seuil électrique de transformation $S_2 \rightarrow S_1$ ou $S_3 \rightarrow S_2$, dans le cas d'une relaxation forcée électriquement (voir chapitre 6).



FIGURE 7.5: Génération d'une structure S_1 dans une boucle basée sur une stratégie optoélectrique. Tout d'abord on génère optiquement une structure de type S_3 (a), cette boucle de défauts est ensuite étirée via l'application d'un champ électrique quasi-statique $E_{\rm ac}(f_2)$ de fréquence f_2 pour laquelle $\varepsilon_a < 0$ (b). Une structure de type S_1 est ensuite induite optiquement à l'intérieur de la boucle alors que l'on maintient le champ électrique $E_{\rm ac}(f_2)$ (c). Enfin, on applique un champ électrique $E_{\rm ac}(f_1)$ de fréquence f_1 pour laquelle $\varepsilon_a > 0$ induisant une contraction de la structure puis on laisse le système relaxer sans appliquer aucun champ (d). Les observations sont ici faites entre polariseurs linéaires croisés. Barre d'échelle : 30 μ m.

7.2.2 Structuration « top-down »

On propose ici une seconde approche, plus facile à mettre en place, mais moins flexible en terme de localisation spatiale. Celle-ci consiste à générer une assemblée aléatoire de structures S_1 (ou S_2) à l'aide d'un champ électrique quasi-statique de fréquence f_2 , puis à induire optiquement un doigt cholestérique que l'on force à former une boucle en faisant parcourir au faisceau gaussien excitateur un circuit fermé. Le résultat de cette étape est montré en Fig. 7.6. On applique ensuite un champ électrique de fréquence f_1 , qui a tendance à diminuer le périmètre de la boucle comme on l'a vu dans la section précédente.



FIGURE 7.6: Principe de l'approche « top-down » pour la formation de structures métastables composées de N structures S_1 confinées dans une boucle. On génère une assemblée aléatoire non-pédiodique de structures de type S_1 puis on induit optiquement un doigt cholestérique que l'on force à former une boucle (a). On applique ensuite un champ électrique quasi-statique $E_{\rm ac}(f_1)$ de fréquence f_1 à laquelle $\varepsilon_a > 0$ ce qui induit la contraction de structures, de la boucle et de son périmètre (b-d). Le temps séparant l'image (a) de l'image (e) est de l'ordre de 50 minutes et l'on obtient finalement une configuration dense de structures de type S_1 confinées à l'intérieur d'une boucle (e).

En pratique, le champ électrique doit être suffisamment élevé pour induire une diminution du diamètre de la boucle, mais pas trop, ce qui entraînerait sa rupture et une évolution vers une structure S_1 . Ainsi, sous l'application d'une tension modérée et après un certain temps (typiquement une heure) l'assemblée de structures individuelles devient compacte, voir Fig. 7.6(e) qui correspond à N = 27.

Une fois un tel assemblage de N structures obtenu, on peut facilement préparer n'importe quelle assemblée compacte de M < N structures. Pour cela, il suffit



FIGURE 7.7: Configurations métastables obtenues en utilisant l'approche « top-down ». Le nombre écrit en blanc dans chacun des cadres correspond au nombre de structures S_1 confinées dans la boucle. Ces géométries auto-assemblées ont été écrites à partir de la même configuration de départ et les structures S_1 contenues dans la boucle ont été effacées une à une via l'application d'un champ électrique (le champ croît donc de N = 41 à N = 0) quasi-statique $E_{ac}(f_1)$, de fréquence f_1 à laquelle $\varepsilon_a > 0$, dont l'amplitude augmente, impliquant la contraction de la boucle.

d'appliquer une tension à la fréquence f_1 . En effet, on observe alors la disparition successive des structures à l'intérieur de la boucle. Le cas N = 41 et $0 \le M \le N$ est résumé par la Figure 7.7. Les structures S_1 et la boucle se comportant comme des sphères dures dans un cerceau, le confinement optimal de M structures S_1 peut être vu comme un analogue du problème de l'arrangement compact de cercles dans un cercle [65]. A titre de comparaison, la Figure 7.8 met en regard la solution théorique optimale [65] et les situations expérimentales M = 1, 7, 19 et 37. Le cas où N est compris entre 1 et 20 est montré dans l'Annexe C. On constate de grandes similitudes même s'il est vrai qu'étant donné que la boucle qui entoure les quasi-particules S_1 n'est pas rigide, elle peut subir des déformations qui l'éloignent du cercle parfait dépendamment du nombre de structures confinées et du champ appliqué. Une bonne correspondance entre le « problème solide » et notre version liquide se limite donc aux géométries présentant des symétries permettant de conserver une boucle quasi-circulaire autour des structures [65], comme cela est montré en Figure 7.8.

En utilisant la même méthodologie, nous avons également été capables d'écrire des boucles concentriques centrées sur une structure de type S_1 , ce qui permet de « bloquer » le système. Les boucles sont écrites optiquement puis resserrées par application d'un champ électrique quasi-statique de fréquence f_2 afin d'obtenir



FIGURE 7.8: Comparaison expérience/théorie en terme d'auto-assemblage optimal lorsque le nombre de structures confinées est de M = 1, 7, 19 et 37. Les images (a-d) sont extraites de la Fig. 7.7 et les images (e-h) de la référence [65].

une géométrie compacte de N boucles concentriques. La Figure 7.9 montre le cas pour N = 10.



FIGURE 7.9: Génération électro-optique de boucles concentriques centrées sur une structure de type S_1 . Barre d'échelle : 50 μ m.

7.3 Conclusions

Dans ce chapitre, nous avons expérimentalement mis en évidence de nouvelles structures topologiques métastables dans les films cholestériques frustrés : des structures multimères et des auto-assemblages compacts de structures indépendantes obtenues par voie optique. Ces observations appellent un développement théorique à la fois quant à la description topologique des objets observés (en particulier les multimères) et à l'existence possible de bien d'autres structures. Suite à ces résultats, nous avons proposé deux approches, qualifiées de « bottomup » et « top-down », permettant de reproduire à la demande les super-structures initialement découvertes, via une apparition spontanée et aléatoire.

Certains des résultats présentés dans ce chapitre ont donné lieu à une publication [64] et une autre est actuellement en préparation concernant les résultats obtenus de la partie 7.2.2. Une ouverture envisagée à ces travaux sur les colloïdes tout-liquide est la mise en place d'une optique intégrée molle. En effet, en regardant un doigt cholestérique comme un guide d'onde et une boucle comme un résonateur optique, on tient là les éléments de base pour une plate-forme photonique intégrée et à la fois accordable et reconfigurable de manière électro-optique. Ceci fera l'objet d'études à venir dans la suite de cette thèse.

Génération de structures topologiques à ultra-faible puissance

Dans les chapitres précédents nous avons montré qu'une grande variété de structures topologiques métastables peut être générée de manière contrôlée à l'aide d'un faisceau gaussien faiblement focalisé. De plus, nous avons montré que l'utilisation d'un champ électrique avant, pendant ou après la génération optique de ces structures offre une grande flexibilité en termes de structuration et de reconfigurabilité. Cependant, les puissances optiques nécessaires pour générer une structure, de l'ordre de 10 – 100 mW, ne permettent pas d'envisager l'écriture parallèle d'un grand nombre de structures, ce qui prendrait par ailleurs un temps déraisonnablement long. Autrement dit, l'exploitation de la nature locale et métastable des structures obtenues pour le stockage d'information ou la réalisation de dispositifs optiques (par exemple des masques de phase) reste limitée du point de vue des applications. De plus, les intensités optiques associées, pouvant aller jusqu'à 1 MW/cm² pour des écritures en régime très focalisé [56,62], sont susceptibles d'altérer les films (principalement l'état de surface). Une approche optique non-énergivore est donc grandement souhaitable pour espérer un développement applicatif. C'est l'objet de ce chapitre.

Avant d'aborder la proposition originale présentée dans ce chapitre, deux commentaires s'imposent. Le premier est associé à l'utilisation de cristaux liquides cholestériques ayant une anisotropie diélectrique négative. En effet, en appliquant une tension juste au-dessous du seuil de réorientation d'un film au repos, le faisceau lumineux d'écriture n'aura qu'à « combler ce qui manque » pour atteindre le seuil de génération d'une structure. Bien qu'élégante, cette approche permet un gain qui reste en pratique modéré, car se rapprocher du seuil de déstabilisation électrique à moins de 1% (qui correspond donc à un gain en puissance nécessaire de l'ordre de 100) devient expérimentalement problématique en terme de reproductibilité. Le deuxième concerne une approche, proposée en 2010, qui repose sur l'utilisation de dopants photo-actifs non-chiraux afin de réduire la demande en puissance pour la génération de structures métastables par un facteur 10^4 , autrement dit, des puissances de travail de l'ordre de 10 μ W. Toutefois, un tel gain est obtenu aux dépens de la réversibilité, les processus photo-chimiques à l'oeuvre étant irréversibles [62].

La capacité à combiner sensibilité optique et réversibilité constituerait un développement majeur pour des applications où l'adressage est de première importance. Ici, nous allons démontrer qu'un gain supérieur à 10⁸ peut être obtenu tout en préservant la réversibilité des processus de génération de structures topologiques. L'idée principale consiste à modifier optiquement la chiralité du matériau à l'échelle moléculaire grâce à l'utilisation d'un dopant chiral photo-actif.

8.1 Présentation de l'approche opto-moléculaire

8.1.1 Présentation du concept

Contrairement aux approches électrique et optique discutées dans les chapitres 6 et 7 où le couple exercé sur le directeur par le champ appliqué oeuvre à l'échelle supra-moléculaire, l'idée est ici de faire travailler le matériau à l'échelle moléculaire. Pour cela on propose d'utiliser un dopant chiral photo-actif qui permet de contrôler optiquement le pas de l'hélice cholestérique. De plus, l'utilisation de tels composés appelés commutateurs moléculaires chiroptiques [66, 67], est connue pour fonctionner de manière réversible et à faible flux lumineux. Ceci en fait une solution attractive pour la génération à grande échelle et à faible de coût d'un grand nombre de structures localisées métastables.

8.1.2 Choix du matériau photo-actif

Notre étude a été menée en collaboration avec l'équipe de Nathalie Katsonis de l'Université de Twente aux Pays-Bas, qui s'est principalement employée à la fabrication des cellules contenant le cristal liquide cholestérique photo-actif. Ce matériau est conçu pour présenter un pas cholestérique $p > p_c$ au repos et $p < p_c$ sous irradiation. Ainsi, la transition d'enroulement peut être contrôlée optiquement de manière locale donnant ainsi naissance à une structuration topologique réversible du film cholestérique.

Pour obtenir le cristal liquide voulu, on utilise le nématique E7 (produit par Merck) que l'on dope avec un commutateur moléculaire **m**, présenté sur la Figure 8.1(a). Cette molécule est connue pour être un moteur moléculaire piloté par la lumière puisqu'elle subit une rotation unidirectionnelle sous une irradiation ultraviolette (UV) [68]. En pratique, sous une irradiation de longueur d'onde $\lambda = 375$ nm, les changements structurels associés à la photo-isomérisation $\mathbf{m} \rightarrow \mathbf{m}^*$ s'expriment à l'échelle supra-moléculaire par une augmentation du pas cholestérique. Puisque notre objectif est de réduire optiquement le pas de l'hélice à partir de la situation initiale $p > p_c$, où le film est complètement déroulé, on adjoint au mélange E7 + \mathbf{m} un dopant moléculaire chiral (non photo-actif) de chiralité opposée à celle de \mathbf{m} et avec une concentration permettant de surcompenser l'effet de \mathbf{m} pour le film au repos. Le dopant choisi est le (R)-2,2'-(1,3propylenedioxy)-1,1'-binaphthalene.

En utilisant des concentrations de 0.8 % wt pour le dopant chiral photo-actif et de 1% wt pour le dopant chiral non photo-actif, nous obtenons un cholestérique ayant un pas au repos $p_0 = 18 \ \mu \text{m}$ et qui s'enroule sous une irradiation UV pour parvenir à un pas de $p_s = 1.7 \ \mu \text{m}$ à l'état stationnaire. Ces valeurs ont été obtenues à l'aide de la méthode de détermination faisant appel à une cellule-coin de Granjean-Cano [4]. Si l'on considère les constantes élastiques du mélange E7, $K_2 = 7.4 \text{ pN}$ et $K_3 = 16.5 \text{ pN}$ à 25°C, on trouve $L/p_c \approx 1.1$. Afin d'obtenir un film frustré à l'état initial tout en étant capable de lever la frustration à l'aide d'une irradiation UV, une cellule d'épaisseur $L = 10 \ \mu \text{m}$ convient. En effet, pour une telle épaisseur, $p_c \approx 9 \ \mu \text{m}$ et l'on se trouve donc dans un état frustré au repos avec $p_0 > p_c$ et la possibilité de lever la frustration sous illumination puisque $p_s < p_c$.



FIGURE 8.1: (a) Structure de la molécule chirale photo-active utilisée et illustration de la photoisomérisation $\mathbf{m} \to \mathbf{m}^*$ à $\lambda = 375$ nm. (b) Spectres d'absorption $A(\lambda)$ des deux isomères pour une concentration molaire de 10^{-4} M dans l'hexane à température ambiante.

8.1.3 Principe de l'expérience

Le montage utilisé est présenté en Figure 8.2. Le champ optique permettant d'écrire les structures est fourni par un laser solide pompé par diode opérant à la longueur d'onde $\lambda = 375$ nm dans le mode fondamental gaussien. Ce champ est combiné à l'aide d'un cube polarisant (CP) à un système d'illumination polychromatique pour l'imagerie émis par une lampe halogène dont la gamme spectrale est volontairement limitée à $\lambda > 600$ nm afin d'éviter son absorption par un des deux composants **m** et **m**^{*}, dont les spectres d'absorption sont présentés en Figure 8.1(b).

La lentille notée L_1 sur la Figure 8.2 permet (i) de focaliser le faisceau pompe sur l'échantillon placé à une distance z de la tache focale de diamètre D, ou (ii) d'imager dans le plan de l'échantillon un masque d'amplitude noté MA placé en amont du cube polarisant (CP). La lentille L_2 permet quant à elle d'imager les structures topologiques photo-induites sur une caméra CCD (pour un suivi en temps réel) devant laquelle sont placés un polariseur linéaire (P) et un filtre coloré (F) permettant de bloquer le rayonnement UV du faisceau d'écriture.



FIGURE 8.2: Montage expérimental. MA : masque d'amplitude, CP : cube polarisant, $L_{1,2}$: lentilles, U : tension basse fréquence (1kHz) appliquée au film cholestérique, P : polariseur, F : filtre pour supprimer le rayonnement UV, CCD : dispositif d'imagerie video.

En pratique, deux régimes d'enroulement photo-induits peuvent prendre place dépendamment du rapport entre le diamètre caractéristique D de la zone d'illumination et l'épaisseur du film L. Le premier se produit lorsque $D \approx L$, pour lequel on observe la génération de micro-structures topologiques alors que le second correspond à $D \gg L$, où la formation de textures est observée. Nous étudierons dans la suite de ce chapitre les deux régimes d'enroulement en se concentrant principalement sur le premier, qui constitue la nouveauté de notre étude. En effet, le second régime a récemment été discuté dans plusieurs études pour des conditions d'ancrage homéotrope [69] et planaire [70].

8.2 Approche opto-moléculaire localisée

Dans cette section nous considérons le cas où l'extension spatiale de l'illumination D est de l'ordre de l'épaisseur de l'échantillon L, et ce pour deux types de faisceaux : un faisceau gaussien et un faisceau vortex ($\ell = 2$). En effet, bien qu'ayant montré au chapitre 6 que l'écriture optique de structures topologiques métastables localisées dans les cholestériques non-dopés ne nécessite pas l'utilisation de faisceaux vortex, il est important de se poser à nouveau la question dans le cas d'un cholestérique photo-actif puisque le mécanisme physique à l'origine de l'enroulement localisé est différent.

8.2.1 Faisceau d'écriture gaussien

La transition vers un état enroulé de l'hélice cholestérique suite à une irradiation par un faisceau gaussien UV est expérimentalement déterminée par l'observation entre polariseurs croisés d'une zone lumineuse sur fond sombre. On constate l'existence de différents types d'états photo-stationnaires dépendamment de la distance z entre le plan de l'échantillon et le plan focal de la lentille L_1 , ces états distincts sont présentés sur les images (a), (b) et (c) de la Figure 8.3 et correspondent respectivement à des irradiations de diamètres D = L (lorsque z = 0), D = 1.1L (lorsque $z = 100 \ \mu$ m) et D = 2.6L (lorsque $z = 500 \ \mu$ m) et des puissances incidentes $P = 0.53 \ n$ W, 0.65 nW et 1.04 nW. Au-delà de ces valeurs les structures finissent par se déstabiliser et se transforment progressivement en une texture d'extension spatiale croissante avec la puissance incidente, voir la Fig.8.4(a). Au contraire, pour des valeurs de puissances plus faibles, les structures disparaissent, voir la Fig.8.4(b) et on retrouve l'état fondamental pseudonématique homéotrope.

L'examen visuel de ces structures stabilisées en maintenant l'irradiation UV suggère qu'il s'agit des structures de défauts notées S_n (avec n = 1, 2, 3) observées

 $\begin{array}{c|c} (a) & S_1 \\ \hline \end{array} & \left(b\right) & S_2 \\ \hline \end{array} & \left(c\right) & S_3 \\ \hline \end{array} & \left(c\right) & S_1 \\ \hline \end{array} & \left(c\right) & S_2 \\ \hline \end{array} & \left(c\right) & S_2 \\ \hline \end{array} & \left(c\right) & S_3 \\ \hline \end{array} & \left(c\right) & S_1 \\ \hline \end{array} & \left(c\right) & S_2 \\ \hline \end{array} & \left(c\right) & S_2 \\ \hline \end{array} & \left(c\right) & S_3 \\ \hline \end{array} & \left(c\right) & \left(c\right) & S_3 \\ \hline \end{array} & \left(c\right) & \left(c\right) & \left(c\right) & \left(c\right) & \left(c\right) \\ \hline \\ & \left(c\right) & \left(c\right) & \left(c\right) & \left(c\right) & \left(c\right) & \left(c\right) \\ \hline \\ & \left(c\right) \\ \hline \\ & \left(c\right) & \left$



Activation optique moléculaire dans un film chiral actif

dans les chapitres précédents. Pour s'en convaincre, les structures obtenues au chapitre 6 dans le cas d'un cholestérique passif sont présentées sur les Fig. 8.3(d-f) dont la comparaison avec Fig. 8.3(a-c) ne prête pas à discussion.

D'un point de vue quantitatif, cette approche opto-moléculaire nous permet de réduire les puissances et intensités seuils nécessaires à la génération de structures topologiques de type S_n de typiquement huit ordres de grandeurs.



FIGURE 8.4: (a) Evolution d'une structure de type S_3 générée par l'approche opto-moléculaire. (b) Relaxation lorsque le champ optique d'écriture est coupé.

8.2.2 Faisceau d'écriture vortex

Nous allons maintenant étudier l'influence de la nature de l'excitation localisée sur la génération de structures métastables. Pour cela on transforme le faisceau gaussien UV en un faisceau vortex grâce à l'utilisation d'un cristal de calcite dont l'axe optique est parallèle à la direction de propagation du faisceau [16], voir chapitre 1 section 1.2.2. En pratique, on polarise circulairement le faisceau gaussien incident sur un cristal de calcite d'épaisseur 8 mm placé dans un télescope 1 : 1 de focale 35 mm. Le faisceau transmis est ensuite filtré à l'aide d'un polariseur circulaire afin de ne conserver que la composante du champ de polarisation contra-circulaire par rapport au faisceau incident. On obtient alors un faisceau vortex de charge topologique $\ell = \pm 2$.

A l'instar d'une excitation gaussienne, on obtient différents types d'états photo-stationnaires dépendamment de la distance z entre le plan de l'échantillon et le plan focal de la lentille L_1 . Ces états sont présentés sur les images en Figure 8.5(a) pour une S_1 , (b) pour une S_2 et (c) pour une S_3 qui correspondent respectivement à des irradiations de diamètre D = L (lorsque z = 0), D = 1.1L (lorsque $z = 100 \ \mu$ m) et D = 1.9L (lorsque $z = 300 \ \mu$ m) et des puissances P = 0.45, 0.74 et 0.84 nW. On conclut à nouveau à la génération sub-nanowatt de structures topologiques variées en notant que le résultat obtenu ne dépend pas de la nature – gaussienne ou non – du champ optique incident. A titre de comparaison, le cas gaussien est rappelé en Fig. 8.5(d-f) dont la similitude avec le cas vortex est sans appel.



FIGURE 8.5: Génération opto-moléculaire de structures topologiques au sein d'un film de cristal liquide cholestérique photo-actif frustré. Premier rang : excitation par un faisceau vortex UV. Deuxième rang : excitation par un faisceau gaussien UV.

8.2.3 Reversibilité

L'utilisation d'un cristal liquide cholestérique photo-actif dont le pas au repos est supérieur au pas critique p_c impose une relaxation des structures générées vers l'état pseudo-nématique homéotrope si la réaction de photo-isomérisation relaxe à température de travail, ce qui est notre cas. Il nous est donc nécessaire de conserver l'excitation optique pour maintenir une structure. Autrement dit, bien qu'ayant un système réversible le matériau retenu n'a pas de caractère métastable. Le caractère réversible est illustré Fig. 8.6 où une structure photo-stationnaire S_2 est générée à l'aide d'un faisceau vortex de puissance P = 0.74 nW. Une augmentation progressive de la puissance du faisceau pompe déstabilise progressivement la structure, comme on peut le voir sur la frise (a) de la Figure 8.6. Lorsque l'on réajuste la puissance du faisceau d'écriture à sa valeur initiale, on retrouve le même état stationnaire qu'au départ.



FIGURE 8.6: Caractère réversible de la génération opto-moléculaire de structures topologiques au sein d'un film de cristal liquide cholestérique photo-actif frustré. (a) Effet de la puissance UV incidente sur le régime photo-stationnaire, partant d'une structure de type S_2 à 0.74 nW. (b) Relaxation une fois le champ d'écriture à nouveau réglé à une puissance de 0.74 nW.

8.3 Approche opto-moléculaire étendue

Considérons maintenant le cas où l'extension spatiale de l'illumination est très supérieure à l'épaisseur de l'échantillon, $D \gg L$: la modification de la chiralité à l'échelle moléculaire suite à une irradiation laser UV entraîne une modification de la chiralité à l'échelle supra-moléculaire et donc la transition d'un état initial frustré vers un état enroulé. La taille de l'illumination étant grande devant l'épaisseur de l'échantillon (et donc devant la taille des structures métastables de type S_n) on observe la formation de textures cholestériques étendues qui rappelle les textures en « empreintes digitales » classique des cholestériques [3, 50].

Afin de tester le potentiel d'écriture de motifs arbitraires (de l'ordre du cm^2), on utilise un masque d'amplitude binaire (i.e. transmission nulle ou totale) que l'on image sur l'échantillon. Seules les régions irradiées du film s'enroulent, donnant lieu à la formation de textures, pour des intensités UV de l'ordre de 1 mW/cm². Le processus d'écriture est montré en Figure 8.7 où l'on voit apparaître le motif complet après environ une minute, en l'occurrence la formule chimique de la molécule photo-active **m** à l'origine de la chiralité photo-active du matériau utilisé.



temps

FIGURE 8.7: Suivi en temps réel de l'écriture à la demande de textures macroscopiques au sein d'un film cholestérique photo-actif frustré. L'apparition complète du motif (dont le masque d'amplitude est présenté à droite de la figure) est obtenue après environ 1 min d'irradiation UV d'intensité de l'ordre de 1mW/cm². Barre d'échelle : 1 mm.

Nous l'avons vu dans la section précédente, il est possible de stabiliser optiquement une structure localisée en contrôlant la puissance de l'irradiation UV. Il en va de même pour des structures étendues. Cela est illustré sur la Figure 8.8 où un motif photo-stationnaire en damier est obtenu après une irradiation d'environ une minute et peut être maintenu en l'état pendant plusieurs heures. Expérimentalement nous n'avons constaté aucune modification de la texture présentée en Figure 8.8 après plus de deux heures d'irradiation.



FIGURE 8.8: Génération d'une texture stabilisée optiquement au sein d'un film de cristal liquide photo-actif frustré à partir d'un masque d'amplitude binaire en damier présenté en (a), l'impression est réalisée à l'aide d'une illumination large d'UV d'intensité typiquement égale à 1mW/cm^2 . (a) Masque d'amplitude. (b) Texture imprimée. Le temps d'écriture est d'environ 1 min. Barre d'échelle : 250 μ m.

Ces motifs obtenus mettent en avant le potentiel applicatif en terme de photoinscription d'image, bien que le temps de réponse et la netteté de l'image restent à optimiser. Ces résultats sont concordants avec les observations faites récemment par Gvozdovskyy et al. [69]. On note toutefois que notre système est plus sensible. En effet, l'intensité requise dans notre cas est quelques dizaines de fois inférieure à celle démontrée dans la référence [69]. Enfin, on signale que nous n'avons pas constaté de vieillissement significatif de l'échantillon après plusieurs mois d'utilisation.

8.4 Conclusions

Nous avons démontré qu'il était possible de générer et de mettre en forme des structures topologiques de défauts de manière contrôlée en utilisant des faisceaux laser UV de puissances ultra-faibles de l'ordre du nanowatt. L'approche opto-moléculaire proposée dans ce chapitre repose sur le contrôle optique de la chiralité du matériau à l'échelle moléculaire, qui provoque une réorganisation à l'échelle supra-moléculaire. L'obtention d'une réduction drastique de la puissance nécessaire à la génération de structures topologiques localisées permet d'envisager l'écriture massive et parallèle de microstructures localisées à l'aide d'un faisceau laser de puissance modérée, par exemple en utilisant des éléments optiques diffractants ou par exposition lithographique. De plus, le processus d'écriture optique de notre système est réversible et la cinétique de retour à l'équilibre est déterminée par les propriétés intrinsèques du dopant chiral photo-actif. Ceci permet d'envisager une optimisation des caractéristiques d'inscription et d'effacement de notre procédé opto-moléculaire d'adressage des cristaux liquides par un travail d'ingénierie moléculaire [71]. En particulier, l'utilisation de commutateurs moléculaires chiraux photo-actifs stables thermiquement pourrait permettre de surmonter les limitations actuelles en terme d'inscription pérenne d'états topologiques chiraux localisés [72]. Nous avons également démontré que la transition de déroulement de l'hélice cholestérique peut être induite pour des zones bien plus larges que le pas cholestérique.

Ces résultats, qui ont fait l'objet d'une publication [73], suggèrent également que les expériences menées sur la génération de structures topologiques et de singularités de phase optiques basée sur l'utilisation de cristaux liquides chiraux [31, 56, 64] peuvent être revisitées dans le cadre de l'utilisation de cristaux liquides photo-actifs, enrichissant ainsi les récentes avancées dans le domaine des matériaux sensibles aux stimuli extérieurs [74].

Mémoire spin-optique à cristaux liquides

Dans les chapitres précédents, nous avons montré expérimentalement la possibilité de générer de manière contrôlée et reconfigurable, à la fois dans le temps et dans l'espace, différents types de microstructures topologiques métastables au sein de films minces de cristaux liquides cholestériques. Nous avons également proposé et démontré une approche opto-moléculaire permettant de réduire drastiquement le coût énergétique du processus de photo-inscription. Ces avancées jettent les bases d'un nouveau type de mémoires réinscriptibles, où l'information est stockée grâce à la chiralité du matériau qui confère à la réorientation photoinduite un caractère métastable. La nature de l'information est quant à elle associée à la topologie de l'organisation tridimensionnelle du cristal liquide. Enfin, la taille caractéristique étant de l'ordre de l'épaisseur du film utilisé, on peut aisément concevoir des « bits » de taille microscopique, voire sub-micronique, par l'utilisation d'un pas cholestérique suffisamment petit.

Dans ce chapitre, un pas en avant supplémentaire est proposé. Il s'agit d'exploiter la nature vectorielle d'un champ électromagnétique pour superposer à l'existence d'une structure topologique métastable donnée une information additionnelle provenant de la lumière d'écriture. En l'occurrence, nous avons mis à jour la possibilité d'obtenir, de manière robuste, des structures topologiques dont la chiralité du champ du directeur à l'échelle supra-moléculaire est dictée par la chiralité intrinsèque du champ d'écriture (son hélicité), indépendamment de la chiralité intrinsèque du cristal liquide cholestérique utilisé. Ce faisant, nous apportons la démonstration expérimentale d'un nouveau type de mémoire réinscriptible, contrôlé par le degré de liberté de spin du photon, ce qui est à notre connaissance sans équivalent à ce jour.

9.1 Hélicité du photon

L'hélicité Λ d'un photon est définie comme la projection de son moment angulaire intrinsèque, dit de « spin », sur la direction de son vecteur quantité de mouvement. En unités de \hbar , on a donc $\Lambda = \pm 1$. Une hélicité $\Lambda = \pm 1$ correspond à un champ de polarisation circulaire gauche (Fig. 9.1(a)) tandis qu'une hélicité $\Lambda = -1$ correspond à un champ de polarisation circulaire droite (Fig. 9.1(b)). On note que le caractère gauche ou droit de l'état de polarisation circulaire (i.e. sa circularité) dépend de la convention choisie. La nôtre a été définie au chapitre 1 (Eq. (1.2)) et correspond aux illustrations de la Figure 9.1.



FIGURE 9.1: Illustration de l'hélicité d'un photon (a) $\Lambda = +1$, pour un champ de polarisation circulaire gauche, (b) $\Lambda = -1$, pour un champ de polarisation circulaire droite. La projection du moment de spin sur la direction du vecteur quantité de mouvement **p**, qui définit ici l'axe z, est notée s_z .

9.2 Démonstration expérimentale de principe

9.2.1 Genèse de l'idée

Au cours des expériences présentées dans les chapitres précédents, où la polarisation du champ optique d'écriture était linéaire, nous avons remarqué que pour un type S_n donné (pour n = 2 ou 3), il était en fait possible d'observer deux formes distinctes entre deux polariseurs linéaires croisés : une croix enroulée dans le sens horaire ou anti-horaire, autrement dit, une structuration supra-moléculaire chirale droite ou gauche. On note qu'une telle observation figure aussi dans le travail fondateur de 2010 [56], mais y reste cependant non commentée. Ces observations ont fait naître l'idée que la chiralité de l'onde incidente devrait permettre de lever cette dégénérescence quant à la circularité de l'enroulement de la croix visible entre polariseurs linéaires croisés des structures S_2 et S_3 . Telle est notre proposition, que nous allons démontrer expérimentalement dans ce qui suit.

9.2.2 Résultats

On reproduit ici l'étude présentée dans le chapitre 8 où l'on éclaire en incidence normale un film cholestérique frustré d'épaisseur L constitué d'un mélange de cristal liquide nématique MLC-2048 et de 0.86% wt du dopant chiral non-mésogène S-811, mais en utilisant cette fois-ci un faisceau gaussien polarisé circulairement droit ou gauche.

Dans un premier temps, on focalise un faisceau de longueur d'onde $\lambda = 532$ nm et de puissance $P \approx 600$ mW sur l'échantillon placé à une distance $z = 80 \ \mu m$ du plan focal de l'objectif. Comme prévu, nous observons la génération d'une structure métastable de type S_3 mais cette fois l'enroulement de la croix caractérisant la chiralité supra-moléculaire de la structure est systématiquement la même pour une polarisation circulaire donnée. En effet, un faisceau de polarisation circulaire gauche $\Lambda = +1$ induit systématiquement une structure S_3 dont la croix est enroulée dans un sens donné, voir Fig. 9.2(a) tandis qu'un faisceau de polarisation circulaire droite $\Lambda = -1$ induit systématiquement une structure S_3 dont la croix est enroulée dans le sens opposé, voir Fig. 9.2(d).

Pour vérifier la robustesse d'une telle observation, on génère 100 structures de type S_3 pour les deux cas de figures $\Lambda = \pm 1$, à conditions expérimentales fixées. Les résultats pour $\Lambda = \pm 1$ sont présentés respectivement sur les Figures 9.2(c) et (f). Dans le but d'identifier une éventuelle « dispersion » des images obtenues, on moyenne les profils d'intensité. Les profils moyennés sont présentés sur la Figure 9.2(b) et (e) pour $\Lambda = \pm 1$. L'étroite ressemblance, d'une part entre les Figures 9.2(a) et (b), et d'autre part entre les Figures 9.2(d) et (e) démontre non seulement la relation bijective entre hélicité du champ d'écriture et chiralité supra-moléculaire induite, mais aussi l'extrême reproductibilité de l'écriture d'un « spinbit ».







FIGURE 9.2: Génération de structures de défauts de type S_3 à l'aide d'un faisceau d'hélicité $\Lambda = +1$ (a-c) et $\Lambda = -1$ (d-f). On remarque l'apparition d'une croix enroulée dont le sens d'enroulement dépend de l'hélicité. Cette observation est vérifiée sur un grand nombre d'événements, ici 100 (c, f), dont on fait la moyenne (b,e). La génération de « spinbits » est extrêmement reproductible, aucun contre-exemple n'ayant été observé lors de toutes les expériences que nous avons pu faire.

Nous avons observé le même type de comportement pour les structures de type S_2 , qu'on aura l'occasion de voir dans la suite de ce chapitre. En ce qui concerne les structures de type S_1 , nous n'avons pas pu apporter la preuve expérimentale d'une chiralité supra-moléculaire via la seule observation entre polariseurs croisés.

Enfin, on note que dans les cas $\Lambda = \pm 1$, la chiralité intrinsèque du matériau est bien entendu la même, autrement dit, les structures droites et gauches ne sont a priori pas énantiomorphes stricto sensu (i.e. les champs de directeur 3D ne sont pas exactement images l'un de l'autre dans un miroir). Une telle différence implique des énergies élastiques associées distinctes. Nous avons essayé de mettre cela en évidence via une expérience « d'effacement électrique » du type de celle présentée Fig. 6.10. En effet, on s'attendait à trouver des seuils en tension $S_3 \rightarrow S_2$ ou $S_2 \rightarrow S_1$ légèrement différents, toutefois sans succès. Une différence a cependant été trouvée dans le scenario d'écriture ce que l'on présente dans ce qui suit.

9.2.3 Dynamique d'écriture

Lorsque l'on observe en temps réel la formation de structures de type S_n , et plus particulièrement d'une structure S_2 dans le cas présenté ici, on constate des différences importantes quant au processus d'écriture selon l'hélicité du champ d'écriture :

- Dans le cas Λ = +1, les cristaux liquides se déstabilisent après 2s, puis apparaît un défaut (voir flèche Fig. 9.3(a)). On observe ensuite la formation d'un doigt cholestérique qui tourne autour de l'axe du faisceau pendant une dizaine de secondes avant de former une boucle qui, une fois le faisceau coupé (ici à 14.5s), relaxe élastiquement pour prendre sa forme finale après quelques secondes, ce scenario est résumé sur la frise (a) en Figure 9.3.
- Dans le cas $\Lambda = -1$, les cristaux liquides sont également déstabilisés après environ 2s avec l'apparition d'un défaut après une durée plus longue que dans le cas $\Lambda = +1$, la structure S_3 prend ensuite quasiment instantanément sa forme finale. Le faisceau est ici coupé à 8.2s et la structure relaxe élastiquement pour prendre sa forme finale une vingtaine de secondes plus tard. Ce scenario est présenté sur la frise (b) en Figure 9.3.

De manière générale, le processus de formation de la structure S_2 est associé à une apparition brutale dans le cas $\Lambda = -1$ alors qu'il est associé à une apparition plus progressive dans le cas $\Lambda = +1$. Ce comportement est à rapprocher qualitativement de l'étude théorique du scenario de bifurcation associé à la réorientation d'un film cholestérique frustré excité par une onde plane [75]. En effet, dans ces travaux, Brasselet et al. montrent que pour un cholestérique gauche (comme dans notre cas), le cas $\Lambda = +1$ est associé à un diagramme de bifurcation autorisant un phénomène de rotation à faible amplitude de réorientation, voir Fig. 4(a) de la référence [75] alors que le cas $\Lambda = -1$ correspond à une situation où le système bifurque vers des états fortement réorientés dès le seuil de réorientation optique atteint, voir Fig. 4(b) de la référence [75].



FIGURE 9.3: Scenario de la formation d'une structure de type S_3 en fonction de l'hélicité du champ d'écriture. Le temps t = 0 correspond au moment où le laser est allumé. Une flèche montre la formation du défaut. (a) $\Lambda = +1$; (b) $\Lambda = -1$.

9.3 Influence de l'angle d'incidence d'écriture

Une fois la démonstration de génération de spinbits droits ou gauches par un champ gaussien d'hélicité $\Lambda = \pm 1$ effectuée, nous avons exploré la robustesse du processus d'écriture vis-à-vis de l'angle d'incidence du faisceau. On notera θ l'angle d'incidence extérieur sur le film cholestérique. L'étude est similaire à celle présentée dans la partie 9.2.2, à la différence près que nous allons étudier le comportement de structures S_2 , des résultats similaires étant obtenus dans le cas de structures de type S_3 . L'échantillon est placé à une distance $z = 30 \ \mu \text{m}$ du plan focal de l'objectif et on utilise une puissance $P \approx 300 \text{ mW}$. La gamme d'angle choisie correspond à $0^{\circ} \leq \theta \leq 45^{\circ}$. Les résultats sont présentés sur la Figure 9.4. Pour une hélicité d'écriture donnée on observe la génération de structures identiques, quel que soit l'angle d'incidence, tant concernant la circularité de l'enroulement de leurs images entre polariseurs croisés que leur taille.

Pour des angles $\theta > 45^{\circ}$ on observe la formation de structures de type S_3 , concordant avec les observations faites dans le chapitre 6 sur le lien entre génération de structures topologiques d'ordre supérieur et extension spatiale de l'illumination. En effet, la taille de la tache de l'irradiation augmente avec l'angle d'incidence.

Sachant que la projection du moment angulaire de spin selon z varie avec l'angle d'incidence, l'indépendance en θ observée appuie le discours qui consiste à dire que c'est l'hélicité du photon qui est mémorisée via l'apparition de structures S_2 ou S_3 .



FIGURE 9.4: Génération de structures S_2 pour deux faisceaux d'hélicités opposées $\Lambda = \pm 1$ et pour différents angles d'incidence sur le film de cristal liquide cholestérique. On constate que les images correspondant à une hélicité d'écriture donnée sont identiques.

9.4 Influence du moment angulaire incident

Les observations expérimentales obtenues dans le chapitre 6, nous ont permis de conclure que c'est l'extension spatiale caractéristique du faisceau d'écriture plus que sa structuration spatiale, en l'occurrence son contenu en terme de moment angulaire orbital, qui joue un rôle dans la génération de structures topologiques localisées métastables. Une question reste cependant ouverte, à savoir si le moment angulaire orbital ou total (spin+orbital) d'un faisceau vortex de polarisation circulaire peut avoir un rôle sur la chiralité supra-moléculaire induite (existence et caractère plus ou moins prononcé).

Afin d'étudier l'influence du moment orbital et/ou total du faisceau d'écriture, nous procédons comme dans le cas gaussien (voir partie 9.2.2 de ce chapitre) en utilisant cette fois-ci des faisceaux vortex de charges topologiques ℓ différentes. En l'occurrence on utilise $-3 \leq \ell \leq +3$. De tels faisceaux vortex sont obtenus en pratique par l'utilisation de lames de verre nano-structurées présentant une biréfringence de forme associée à un axe optique ψ variant azimutalement selon $\psi = (\ell/2) \varphi$ avec $-3 \leq \ell \leq +3$. Le comportement de ces lames commerciales (Altechna), qui sont des interfaces spin-orbite optiques, est décrit au chapitre 4. Ces lames donnent accès aux faisceaux vortex utilisés, dont l'hélicité $\Lambda = \pm 1$ peut être ajustée indépendamment via des lames à retard conventionnelles.

Les résultats de cette étude sont présentés sur la Figure 9.5 où l'on constate que le moment angulaire orbital n'a aucun effet sur « le signe et la force » de la chiralité supra-moléculaire de la structure générée ainsi que sur la taille de cette dernière. En effet, à Λ fixé on observe que les images entre polariseurs croisés sont visuellement identiques quel que soit ℓ . A fortiori, les résultats ne sont pas non plus contrôlés par le moment angulaire total caractérisé par $j = \Lambda + \ell$, comme cela est illustré sur la Figure 9.5 avec différentes couleurs selon que j soit négatif, nul ou positif. Comme pour le cas gaussien ($\ell = 0$), seule l'hélicité contrôle la chiralité supra-moléculaire de la structure obtenue.



FIGURE 9.5: Etude de l'influence du moment angulaire orbital et du moment angulaire total sur la chiralité supra-moléculaire des structures de type S_2 générées à partir de deux faisceaux d'hélicités opposées.

9.5 Influence de la chiralité du cholestérique

Jusqu'à présent nous n'avons utilisé que le dopant S-811, gauche, qui correspond à un enroulement du directeur tel que celui montré Fig. 6.1(b). Ici, nous allons analyser l'influence de la chiralité du cholestérique sur la chiralité intrinsèque supra-moléculaire des spinbits générés. Pour cela, on compare le cas du mélange MLC-2048 + S-811 avec le mélange MLC-2048 + R-811, où le dopant chiral R-811 est l'énantiomère droit de S-811. La méthodologie est la même que celle de la section précédente dans le cas $\ell = 0$, et correspond à la génération de structures de type S_2 . Les résultats sont présentés Fig. 9.6. On constate à nouveau que c'est l'hélicité du champ d'écriture qui contrôle la morphologie de la structure obtenue.

La dynamique du processus d'écriture dépend, quant à elle, des chiralités relatives, lumière et matière. Concrètement, les cas GG et DD correspondent à des scenarii identiques avec rotation transitoire d'un doigt cholestérique autour de la normale au film. D'autre part, les cas GD et DG correspondent à un comportement abrupt quant à l'apparition d'une structure. Ces résultats généralisent la discussion faite section 9.2.3 en lien avec l'étude théorique de la réorientation optique d'un film cholestérique frustré dans la limite de l'onde plane [75].



FIGURE 9.6: Etude de l'influence de la chiralité intrinsèque du cholestérique sur la chiralité supra-moléculaire générée par deux faisceaux d'hélicités opposées. Les lettres G et D correspondent au caractère gauche et droite du matériau et du champ optique utilisés.

9.6 Conclusions

Dans ce chapitre, nous avons mis expérimentalement en évidence que l'hélicité du champ optique d'écriture contrôle de manière univoque la chiralité supramoléculaire des structures topologiques métastables localisées dans les films cholestériques frustrés. Ceci est vrai quel que soit le moment angulaire orbital, le moment angulaire total et l'angle d'incidence du champ d'écriture et ce, quelle que soit la chiralité intrinsèque du cholestérique.

Autrement dit, nous avons mis à jour une mémoire spin-optique à cristaux liquides. Ces mémoires sont par nature réinscriptibles puisqu'un champ électrique quasi-statique permet d'effacer toute structure stockée dans le matériau comme nous l'avions vu dans le chapitre 6. Ces résultats, qui font l'objet d'une publication en cours de préparation, peuvent être vus comme un analogue optique des mémoires spintroniques où le spin de l'électron est exploité pour transporter et stocker une information. A ce titre, il serait intéressant de poursuivre cette étude, en particulier concernant le problème inverse, du transfert de la chiralité matérielle photo-inscrite à la lumière, c'est-à-dire, la lecture de ces mémoires spin-optique. Une telle perspective est en effet prévue dans la suite de cette thèse.

Conclusion

Durant ces trois années de thèse, nous nous sommes tout d'abord attachés à lever un certain nombre de verrous concernant la mise en forme topologique de la lumière à partir d'interfaces spin-orbite à base de cristaux liquides. En l'occurrence, nous avons montré que différents systèmes de défauts topologiques naturels permettaient d'obtenir la génération de vortex optiques par l'interaction spin-orbite de la lumière proche de 100%, de manière accordable en longueur d'onde et reconfigurable en temps réel (chapitre 2 [28]), donnant accès à des charges topologiques diverses (chapitre 3 [43]), permettant de travailler à des échelles microscopiques (chapitre 4) et ce, de manière spatialement contrôlée (chapitre 5 [48]). Toutes les conditions sont donc maintenant réunies pour s'attaquer à l'élaboration de dispositifs optiques singuliers à même de réaliser le contrôle hyperspectral du moment angulaire de la lumière. On entend par là la capacité à contrôler l'état orbital de la lumière sur une bande spectrale ultralarge. Les applications escomptées sont nombreuses et incluent la mise en forme topologique d'impulsions ultra-brèves, le développement de l'optique singulière intégrée ou encore le traitement (codage/décodage) du moment angulaire orbital.

Dans le deuxième volet de cette thèse, nous nous sommes intéressés à la mise en forme topologique d'un film de cristal liquide cholestérique dans le cadre du stockage de l'information de nature topologique. Nous avons montré expérimentalement la possibilité de générer de manière contrôlée et reconfigurable, à la fois dans le temps et dans l'espace, différents types de microstructures topologiques métastables au sein de films minces de cristaux liquides cholestériques (chapitres 6 et 7 [64]). Contrairement à l'état de l'art admis, nous avons montré dans un premier temps que la génération contrôlée de structures métastables distinctes par voie optique ne dépendait que de la taille de l'excitation optique. Nous avons également montré qu'une approche opto-moléculaire permettait de réduire considérablement le coût énergétique nécessaire pour la structuration du matériau (chapitre 8 [73]). Ces deux avancées permettent aujourd'hui d'envisager sérieusement le stockage massif de l'information à la fois (i) par l'augmentation du nombre d'états disponibles (associés à la nature de l'information liée à la topologie de l'organisation tridimensionnelle du cristal liquide) pour coder l'information, mais également (ii) en terme de faible budget énergétique requis, ce qui est un paramètre pratique important. Nous avons également montré qu'il était possible d'obtenir, à taille d'irradiation constante, deux états métastables distincts de chiralités opposées, réalisant ainsi un nouveau type de mémoire réinscriptible contrôlé par le degré de liberté « spin » du photon (chapitre 9).

Annexes

ANNEXE A

Table des cristaux liquides utilisés

	MLC-2079	$5\mathrm{CB}$	MLC-2048	$\mathbf{E7}$
$\epsilon_{\parallel}^{(f)}$	4.1 ($f = 1 \text{kHz}$)	18.5 ($f = 1 \text{kHz}$)	11.02 $(f = 1 \text{kHz})$ 4 $(f = 100 \text{kHz})$	19.0 ($f = 1 \text{kHz}$)
$\epsilon_{\perp}^{(f)}$	$10.2 \ (f = 1 \mathrm{kHz})$	7 ($f = 1 \mathrm{kHz}$)	7.8 $(f = 1 \text{kHz})$ 7.4 $(f = 100 \text{kHz})$	5.2 ($f = 1 \text{kHz}$)
$\epsilon_a^{(f)}$	-6.1(f = 1 kHz)	11.5 ($f = 1 \text{kHz}$)	3.22 (f = 1 kHz) - $3.4 (f = 100 \text{kHz})$	13.8 ($f = 1 \text{kHz}$)
$K_1 (\mathrm{pN})$	15.9	10.5	17.3	11.1
$K_2 (\mathrm{pN})$	9.5	5.4	12.7	-
$K_3 (\mathrm{pN})$	18.3	13.8	30.3	17.1
n_{\parallel}	1.64	1.73	1.6864	1.7462
n_{\perp}	1.49	1.54	1.461	1.5216
Δn	0.15	0.19	0.2254	0.2216
$T_{\rm NI}$ (°C)	102	35	106.2	61

TABLE A.1: $\epsilon_a^{(f)}$ est l'anisotropie de la permittivité diélectrique relative avec $\epsilon_{\parallel,\perp}^{(f)}$ les valeurs de la permittivité parallèle et perpendiculaire au directeur, respectivement. K_1, K_2 et K_3 sont les constantes élastiques de Frank associées aux déformations de type éventail, torsion et flexion, respectivement. Δn est la biréfringence du cristal liquide avec $n_{\parallel,\perp}$ les composantes de l'indice de réfraction respectivement parallèle et perpendiculaire à l'axe optique des cristaux liquides. $T_{\rm NI}$ est la température de la transition nématique-isotrope du cristal liquide.

ANNEXE B

Mesure des paramètres de Stokes

Une méthode pratique pour représenter l'état de polarisation de la lumière est d'introduire le vecteur de Stokes quadri-dimensionnel $\mathbf{S} = (S_0, S_1, S_2, S_3)$ défini à l'aide des composantes (E_x, E_y) du champ électrique complexe, tel que :

$$S_0 = |E_x|^2 + |E_y|^2 \tag{B.1}$$

$$S_1 = |E_x|^2 - |E_y|^2 \tag{B.2}$$

$$S_2 = 2\operatorname{Re}(E_x^* E_y) \tag{B.3}$$

$$S_3 = 2\mathrm{Im}(E_x^* E_y) \tag{B.4}$$

Un tel vecteur est accessible expérimentalement via la mesure des intensités, à savoir :

$$S_0 = I_{\mathbf{e}} + I_{\mathbf{e}_\perp} \tag{B.5}$$

$$S_1 = I_{\mathbf{e}_{0^\circ}} - I_{\mathbf{e}_{90^\circ}} \tag{B.6}$$

$$S_2 = I_{\mathbf{e}_{45^\circ}} - I_{\mathbf{e}_{-45^\circ}} \tag{B.7}$$

$$S_3 = I_{e_+} - I_{e_-}$$
(B.8)

où $(\mathbf{e}, \mathbf{e}_{\perp})$ fait référence à n'importe quelle paire d'états de polarisation orthogonaux et \mathbf{e}_{α} fait référence à un état de polarisation linéaire d'angle α par rapport à l'axe x. Il est également pratique d'introduire le vecteur de Stokes réduit, qui s'écrit :

$$\mathbf{s} = (S_1, S_2, S_3) / S_0 \tag{B.9}$$

Il est important de préciser que la représentation faisant appel au vecteur de Stokes permet de décrire l'état de polarisation de n'importe quelle lumière,
qu'elle soit non-polarisée ($\delta = 0$), partiellement polarisée ($0 < \delta < 1$) ou entièrement polarisée ($\delta = 1$), où $\delta = |\mathbf{s}|$ est le degré de polarisation, avec $0 \le \delta \le 1$. Pour illustrer cela, considérons un champ lumineux complètement polarisé, dont l'ellipse de polarisation est, sans ambiguité, caractérisée par un angle d'ellipticité (χ) et un angle d'azimuth (ψ), voir Fig. B.1(a,b). Son vecteur de Stokes réduit peut être exprimé à l'aide de ces angles tel que :

$$s_1 = \cos 2\psi \, \cos 2\chi \tag{B.10}$$

$$s_2 = \sin 2\psi \, \cos 2\chi \tag{B.11}$$

$$s_3 = \sin 2\chi \tag{B.12}$$

Tout état de polarisation distinct peut être représenté par un point unique sur la surface d'une sphère unité appelée sphère de Poincaré, voir Fig. B.1(c).



FIGURE B.1: (a,b) Ellipse de polarisation pour un état de polarisation elliptique gauche ($\chi > 0$) et droit ($\chi > 0$). (c) Représentation d'un faisceau entièrement polarisé caractérisé par un angle d'ellipticité χ et un angle d'azimuth ψ sur la sphère unitaire de Poincaré où les axes représentent les paramètres de Stokes réduits (s_1, s_2, s_3).

ANNEXE C

Configurations métastables de structures opto-induites dans un cristal liquide cholestérique

Dans le chapitre 7 nous avons comparé quelques structures obtenues expérimentalement avec un modèle mathématique décrivant un problème solide de sphères dures contenues dans un anneau. On montre en figures(C.1) et (C.2) les résultats expérimentaux lorsque le nombre de structures confinées est compris entre 1 et 20. Les images de gauche sont prises entre polariseurs croisés tandis que les images de droite sont extraites de la référence [65].

On observe de grandes similitudes même s'il est vrai qu'étant donné que la boucle qui entoure les quasi-particules S_1 n'est pas rigide, elle peut subir des déformations qui l'éloignent du cercle parfait dépendamment du nombre de structures confinées et du champ appliqué. Une bonne correspondance entre le « problème solide » et notre version liquide se limite donc aux géométries présentant des symétries permettant de conserver une boucle circulaire autour des structures [65].

En complément, on mesure expérimentalement le rayon r, défini comme la demi-distance entre les centres des cercles (des quasi-particules) dans le cas d'un modèle de sphères dures contenues dans un cercle de rayon 1, pour chacune des configurations présentant des symétries, en l'occurence pour les cas où N = 1, 7, 19 et 37, voir figure(C.3). En comparant les rayons moyens des quasi-particules obtenues expérimentalement et ceux prédis par son analogue théorique on trouve une bonne correspondance entre ces valeurs puisque la différence relative entre les rayons est de l'ordre de 10 à 15%.



FIGURE C.1: Cas où le nombre de structures métastables M est compris entre 1 et 10 [65]. Voir texte et chapitre 7 pour les détails.



FIGURE C.2: Cas où le nombre de structures métastables M est compris entre 11 et 20 [65]. Voir texte et chapitre 7 pour les détails.



FIGURE C.3: Comparaison des rayons des quasi-particules avec un modèle optimal [65] pour les cas symétriques N = 1, 7, 19 et 37. Les lignes vertes permettent de mieux apprécier les symétries présentes au sein de ces super-structures.

ANNEXE D

Remerciements opto-moléculaires



FIGURE D.1: Génération opto-moléculaire de structures étendues arbitraires dans un film de cristal liquide cholestérique photo-actif frustré. Ici les différents acronymes des organismes prenant part à nos recherches en l'occurrence : le LOMA (Laboratoires Ondes et Matière d'Aquitaine) qui m'a accueilli durant ma thèse, l'UB1 l'Université de Bordeaux 1, récemment devenue Université de Bordeaux, la DGA (Direction Générale de l'Armement) qui a cofinancé ma thèse, le CNRS (Centre National de la Recherche Scientifique) et le NWO (Netherlands Organization for Scientific Research) les organismes de recherche de notre équipe et de celle de Nathalie Katsonis, respectivement.

Bibliographie

- [1] M. Berry, "Making waves in physics," *Nature*, vol. 403, no. 6765, p. 21, 2000.
- [2] L. Allen, M. Beijersbergen, R. Spreeuw, and J. Woerdman, "Orbital angular momentum of light and the transformation of laguerre-gaussian laser modes," *Physical Review A*, vol. 45, no. 11, pp. 8185–8189, 1992.
- [3] P. G. De Gennes, *The physics of liquid crystals*. No. 83, Clarendon Press; Oxford University Press, 2nd ed., 1993.
- [4] P. Oswald and P. Pieranski, Nematic and cholesteric liquid crystals : concepts and physical properties illustrated by experiments. The liquid crystals book series, Taylor & Francis, 2005.
- [5] S. Chandrasekhar, *Liquid crystals*. Cambridge University Press, 2nd ed., 1992.
- [6] I. Dierking, Textures of liquid crystals. Wiley-VCH, 2003.
- [7] S. Khonina, V. Kotlyar, M. Shinkaryev, V. Soifer, and G. Uspleniev, "The phase rotor filter," *Journal of Modern Optics*, vol. 39, no. 5, pp. 1147–1154, 1992.
- [8] S. S. R. Oemrawsingh, J. A. W. Van Houwelingen, E. R. Eliel, J. P. Woerdman, E. J. K. Verstegen, J. G. Kloosterboer, and G. W. t Hooft, "Production and characterization of spiral phase plates for optical wavelengths," *Applied Optics*, vol. 43, no. 3, pp. 688–694, 2004.
- [9] M. W. Beijersbergen, R. P. C. Coerwinkel, M. Kristensen, and J. P. Woerdman, "Helical-wavefront laser beams produced with a spiral phaseplate," *Optics Communications*, vol. 112, no. 5, pp. 321–327, 1994.
- [10] M. W. Beijersbergen, L. Allen, H. Van der Veen, and J. P. Woerdman, "Astigmatic laser mode converters and transfer of orbital angular momentum," *Optics Communications*, vol. 96, no. 1, pp. 123–132, 1993.

- [11] T. A. Fadeyeva, V. G. Shvedov, Y. V. Izdebskaya, A. V. Volyar, E. Brasselet, D. N. Neshev, A. Desyatnikov, W. Krolikowski, and Y. S. Kivshar, "Spatially engineered polarization states and optical vortices in uniaxial crystals," *Optics Express*, vol. 18, no. 10, p. 10848, 2010.
- [12] A. Ciattoni, G. Cincotti, and C. Palma, "Circularly polarized beams and vortex generation in uniaxial media," *Journal of the Optical Society of America* A, vol. 20, no. 1, pp. 163–171, 2003.
- [13] A. V. Volyar and T. A. Fadeeva, "Generation of singular beams in uniaxial crystals," *Optics and Spectroscopy*, vol. 94, no. 2, pp. 235–244, 2003.
- [14] A. Volyar, V. Shvedov, T. Fadeyeva, A. S. Desyatnikov, D. N. Neshev, W. Krolikowski, and Y. S. Kivshar, "Generation of single-charge optical vortices with an uniaxial crystal," *Optics Express*, vol. 14, no. 9, pp. 3724–3729, 2006.
- [15] Y. Izdebskaya, E. Brasselet, V. Shvedov, A. Desyatnikov, W. Krolikowski, and Y. Kivshar, "Dynamics of linear polarization conversion in uniaxial crystals," *Optics Express*, vol. 17, no. 20, pp. 18196–18208, 2009.
- [16] E. Brasselet, Y. Izdebskaya, V. Shvedov, A. S. Desyatnikov, W. Krolikowski, and Y. S. Kivshar, "Dynamics of optical spin-orbit coupling in uniaxial crystals," *Optics Letters*, vol. 34, no. 7, pp. 1021–1023, 2009.
- [17] C. Loussert and E. Brasselet, "Efficient scalar and vectorial singular beam shaping using homogeneous anisotropic media," *Optics Letters*, vol. 35, no. 1, pp. 7–9, 2010.
- [18] G. Biener, A. Niv, V. Kleiner, and E. Hasman, "Formation of helical beams by use of pancharatnam-berry phase optical elements," *Optics Letters*, vol. 27, no. 21, pp. 1875–1877, 2002.
- [19] L. Marrucci, C. Manzo, and D. Paparo, "Optical spin-to-orbital angular momentum conversion in inhomogeneous anisotropic media," *Physical Review Letters*, vol. 96, no. 16, 2006.
- [20] S. C. McEldowney, D. M. Shemo, R. A. Chipman, and P. K. Smith, "Creating vortex retarders using photoaligned liquid crystal polymers," *Optics Letters*, vol. 33, no. 2, pp. 134–136, 2008.

BIBLIOGRAPHIE

- [21] S. Nersisyan, N. Tabiryan, D. M. Steeves, and B. R. Kimball, "Fabrication of liquid crystal polymer axial waveplates for UV-IR wavelengths," *Optics Express*, vol. 17, no. 14, pp. 11926–11934, 2009.
- [22] S.-W. Ko, Y.-Y. Tzeng, C.-L. Ting, A. Y.-G. Fuh, and T.-H. Lin, "Axially symmetric liquid crystal devices based on double-side photo-alignment," *Optics Express*, vol. 16, no. 24, pp. 19643–19648, 2008.
- [23] S. Slussarenko, A. Murauski, T. Du, V. Chigrinov, L. Marrucci, and E. Santamato, "Tunable liquid crystal q-plates with arbitrary topological charge," *Optics Express*, vol. 19, no. 5, pp. 4085–4090, 2011.
- [24] E. Brasselet, N. Murazawa, H. Misawa, and S. Juodkazis, "Optical vortices from liquid crystal droplets," *Physical Review Letters*, vol. 103, no. 10, 2009.
- [25] D. Voloschenko and O. D. Lavrentovich, "Optical vortices generated by dislocations in a cholesteric liquid crystal," *Optics Letters*, vol. 25, no. 5, pp. 317– 319, 2000.
- [26] A. Rapini, "Umbilics : static properties and shear-induced displacements," *Journal de Physique*, vol. 34, no. 7, pp. 629–633, 1973.
- [27] M. G. Clerc, E. Vidal-Henriquez, J. D. Davila, and M. Kowalczyk, "Symmetry breaking of nematic umbilical defects through an amplitude equation," *Physical Review E*, vol. 90, no. 1, 2014.
- [28] E. Brasselet and C. Loussert, "Electrically controlled topological defects in liquid crystals as tunable spin-orbit encoders for photons," *Optics Letters*, vol. 36, no. 5, pp. 719–721, 2011.
- [29] E. Brasselet, "Tunable optical vortex arrays from a single nematic topological defect," *Physical Review Letters*, vol. 108, no. 8, 2012.
- [30] R. Barboza, U. Bortolozzo, G. Assanto, E. Vidal-Henriquez, M. G. Clerc, and S. Residori, "Vortex induction via anisotropy stabilized light-matter interaction," *Physical Review Letters*, vol. 109, no. 14, 2012.
- [31] B. Yang and E. Brasselet, "Arbitrary vortex arrays realized from optical winding of frustrated chiral liquid crystals," *Journal of Optics*, vol. 15, no. 4, p. 044021, 2013.
- [32] B. Son, S. Kim, Y. H. Kim, K. Kalantar, H.-M. Kim, H.-S. Jeong, S. Q. Choi, J. Shin, H.-T. Jung, and Y.-H. Lee, "Optical vortex arrays from smectic liquid crystals," *Optics Express*, vol. 22, no. 4, p. 4699, 2014.

- [33] G. Friedel, "The mesomorphic states of matter," Annales de Physique, vol. 18, pp. 273–474, 1922.
- [34] N. V. Madhusudana and R. Pratibha, "Studies on high strength defects in nematic liquid crystals," *Molecular Crystals and Liquid Crystals*, vol. 103, no. 1-4, pp. 31–47, 1983.
- [35] N. V. Madhusudana, "Some observations on defects in nematic liquid crystals," *Bulletin of Materials Science*, vol. 10, no. 1-2, pp. 53–59, 1988.
- [36] L. Cui, J. Liu, P. Xie, and R. Zhang, "High strength disclinations induced by hydrogen bond dissociation in the nematic phases of p-alkoxycinnamic acids," *Liquid Crystals*, vol. 26, no. 4, pp. 605–608, 1999.
- [37] L. Li, R. Liu, S. Zhang, and Z. Li, "High strength disclinations in the nematic and smectic states of 2,5-bis(4-alkoxybenzoyloxy)- p -benzoquinones," *Liquid Crystals*, vol. 30, no. 2, pp. 259–263, 2003.
- [38] L. Li, S. Zhang, and Z. Li, "High strength disclinations in liquid crystalline polymers with x-shaped two-dimensional mesogenic units," *Polymer*, vol. 45, no. 7, pp. 2309–2312, 2004.
- [39] V. A. Raghunathan, "Coupling between elastic deformation and concentration in a two-component nematic liquid crystal," *Europhysics Letters*, vol. 24, no. 6, p. 479, 1993.
- [40] H. R. Brand and H. Pleiner, "Comment on : Coupling between elastic deformation and concentration in a two-component nematic liquid crystal," *Europhysics Letters*, vol. 26, no. 5, pp. 395–397, 1994.
- [41] C. Chiccoli, I. Feruli, O. D. Lavrentovich, P. Pasini, S. V. Shiyanovskii, and C. Zannoni, "Topological defects in schlieren textures of biaxial and uniaxial nematics," *Physical Review E*, vol. 66, no. 3, p. 030701, 2002.
- [42] D. G. Hall, "Vector-beam solutions of maxwell s wave equation," Optics Letters, vol. 21, no. 1, pp. 9–11, 1996.
- [43] C. Loussert, U. Delabre, and E. Brasselet, "Manipulating the orbital angular momentum of light at the micron scale with nematic disclinations in a liquid crystal film," *Physical Review Letters*, vol. 111, no. 3, 2013.
- [44] D. Mawet, E. Serabyn, K. Liewer, C. Hanot, S. McEldowney, D. Shemo, and N. O'Brien, "Optical vectorial vortex coronagraphs using liquid crystal

polymers : theory, manufacturing and laboratory demonstration," *Optics Express*, vol. 17, no. 3, pp. 1902–1918, 2009.

- [45] S. R. Nersisyan, N. V. Tabiryan, D. Mawet, and E. Serabyn, "Improving vector vortex waveplates for high-contrast coronagraphy," *Optics Express*, vol. 21, no. 7, p. 8205, 2013.
- [46] J.-S. Hsu, B.-J. Liang, and S.-H. Chen, "Dynamic behaviors of dual frequency liquid crystals in bistable chiral tilted-homeotropic nematic liquid crystal cell," *Applied Physics Letters*, vol. 89, no. 5, p. 051920, 2006.
- [47] A. Risch and R. Hellmann, "Picosecond laser patterning of ITO thin films," *Physics Procedia*, vol. 12, pp. 133–140, 2011.
- [48] C. Loussert, K. Kushnir, and E. Brasselet, "Q-plates micro-arrays for parallel processing of the photon orbital angular momentum," *Applied Physics Letters*, vol. 105, no. 12, p. 121108, 2014.
- [49] R. D. Kamien and J. V. Selinger, "Order and frustration in chiral liquid crystals," *Journal of Physics : Condensed Matter*, vol. 13, no. 3, pp. R1– R22, 2001.
- [50] P. Oswald, J. Baudry, and S. Pirkl, "Static and dynamic properties of cholesteric fingers in electric field," *Physics Reports*, vol. 337, no. 1-2, pp. 67–96, 2000.
- [51] B. Zeldovich and N. Tabiryan, "Friedericksz transition in cholesterics in the absence of external fields," *Journal of Experimental and Theoretical Physics*, vol. 34, p. 406, 1981.
- [52] S. Pirkl, P. Ribiere, and P. Oswald, "Forming process and stability of bubble domains in dielectrically positive cholesteric liquid crystals," *Liquid Crystals*, vol. 13, no. 3, pp. 413–425, 1993.
- [53] M. Kawachi, O. Kogure, and Y. Kato, "Bubble domain texture of a liquid crystal," *Japanese Journal of Applied Physics*, vol. 13, no. 9, pp. 1457–1458, 1974.
- [54] W. E. L. Haas and J. E. Adams, "New optical storage mode in liquid crystals," *Applied Physics Letters*, vol. 25, no. 10, p. 535, 1974.
- [55] W. E. L. Haas and J. E. Adams, "Electrically variable diffraction in spherulitic liquid crystals," *Applied Physics Letters*, vol. 25, no. 5, p. 263, 1974.

- [56] I. I. Smalyukh, Y. Lansac, N. A. Clark, and R. P. Trivedi, "Threedimensional structure and multistable optical switching of triple-twisted particle-like excitations in anisotropic fluids," *Nature Materials*, vol. 9, no. 2, pp. 139–145, 2010.
- [57] I. I. Smalyukh, D. Kaputa, A. V. Kachynski, A. N. Kuzmin, P. J. Ackerman, C. W. Twombly, T. Lee, R. P. Trivedi, and P. N. Prasad, "Optically generated reconfigurable photonic structures of elastic quasiparticles in frustrated cholesteric liquid crystals," *Optics Express*, vol. 20, no. 7, pp. 6870–6880, 2012.
- [58] P. J. Ackerman, Z. Qi, and I. I. Smalyukh, "Optical generation of crystalline, quasicrystalline, and arbitrary arrays of torons in confined cholesteric liquid crystals for patterning of optical vortices in laser beams," *Physical Review E*, vol. 86, no. 2, 2012.
- [59] P. J. Ackerman, Z. Qi, Y. Lin, C. W. Twombly, M. J. Laviada, Y. Lansac, and I. I. Smalyukh, "Laser-directed hierarchical assembly of liquid crystal defects and control of optical phase singularities," *Scientific Reports*, vol. 2, 2012.
- [60] J. S. Evans, P. J. Ackerman, D. J. Broer, J. van de Lagemaat, and I. I. Smalyukh, "Optical generation, templating, and polymerization of threedimensional arrays of liquid-crystal defects decorated by plasmonic nanoparticles," *Physical Review E*, vol. 87, no. 3, 2013.
- [61] Y.-C. Hsiao, C.-Y. Tang, and W. Lee, "Fast-switching bistable cholesteric intensity modulator," *Optics Express*, vol. 19, no. 10, pp. 9744–9749, 2011.
- [62] O. Trushkevych, P. Ackerman, W. A. Crossland, and I. I. Smalyukh, "Optically generated adaptive localized structures in confined chiral liquid crystals doped with fullerene," *Applied Physics Letters*, vol. 97, no. 20, p. 201906, 2010.
- [63] B. G.-g. Chen, P. J. Ackerman, G. P. Alexander, R. D. Kamien, and I. I. Smalyukh, "Generating the hopf fibration experimentally in nematic liquid crystals," *Physical Review Letters*, vol. 110, no. 23, 2013.
- [64] C. Loussert and E. Brasselet, "Multiple chiral topological states in liquid crystals from unstructured light beams," *Applied Physics Letters*, vol. 104, no. 5, pp. 051911–051911, 2014.

BIBLIOGRAPHIE

- [65] R. Graham, B. Lubachevsky, K. Nurmela, and P. Ostergard, "Dense packings of congruent circles in a circle," *Discrete Mathematics*, vol. 181, no. 1-3, pp. 139–154, 1998.
- [66] B. L. Feringa, N. P. Huck, and A. M. Schoevaars, "Chiroptical molecular switches," Advanced Materials, vol. 8, no. 8, pp. 681–684, 1996.
- [67] B. L. Feringa and W. R. Browne, eds., *Molecular switches*. Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, 2011.
- [68] J. Vicario, M. Walko, A. Meetsma, and B. L. Feringa, "Fine tuning of the rotary motion by structural modification in light-driven unidirectional molecular motors," *Journal of the American Chemical Society*, vol. 128, no. 15, pp. 5127–5135, 2006.
- [69] I. Gvozdovskyy, O. Yaroshchuk, M. Serbina, and R. Yamaguchi, "Photoinduced helical inversion in cholesteric liquid crystal cells with homeotropic anchoring," *Optics Express*, vol. 20, no. 4, pp. 3499–3508, 2012.
- [70] Q. Li, Y. Li, J. Ma, D.-K. Yang, T. J. White, and T. J. Bunning, "Directing dynamic control of red, green, and blue reflection enabled by a light-driven self-organized helical superstructure," *Advanced Materials*, vol. 23, no. 43, pp. 5069–5073, 2011.
- [71] S. J. Asshoff, S. Iamsaard, A. Bosco, J. J. L. M. Cornelissen, B. L. Feringa, and N. Katsonis, "Time-programmed helix inversion in phototunable liquid crystals," *Chemical Communications*, vol. 49, no. 39, p. 4256, 2013.
- [72] Y. Li, C. Xue, M. Wang, A. Urbas, and Q. Li, "Photodynamic chiral molecular switches with thermal stability : from reflection wavelength tuning to handedness inversion of self-organized helical superstructures," *Angewandte Chemie International Edition*, vol. 52, no. 51, pp. 13703–13707, 2013.
- [73] C. Loussert, S. Iamsaard, N. Katsonis, and E. Brasselet, "Subnanowatt optomolecular generation of localized defects in chiral liquid crystals," *Advanced Materials*, vol. 26, no. 25, pp. 4242–4246, 2014.
- [74] Q. Li, ed., Intelligent stimuli-responsive materials : from well-defined nanostructures to applications. Wiley, 2013.
- [75] E. Brasselet, D. O. Krimer, and L. Kramer, "Light-induced instabilities driven by competing helical patterns in long-pitch cholesterics," *The European Physical Journal E*, vol. 17, no. 4, pp. 403–411, 2005.

Résumé

Ce travail de thèse consiste en l'étude de la mise en forme topologique de la lumière et de la matière et s'articule autour de deux axes de recherche. Le premier concerne la mise en forme topologique de la lumière à partir d'interfaces spin-orbite à base de cristaux liquides. En l'occurrence, nous montrons dans ce manuscrit que différents systèmes de défauts topologiques naturels permettent de générer des vortex optiques par interaction spin-orbite de la lumière, de manière efficace, accordable en longueur d'onde et reconfigurable en temps réel et donnant accès à des charges topologiques diverses. Tout ceci nous a permis de travailler à des échelles microscopiques et de manière spatialement contrôlée. Ces avancées ouvrent la voie au contrôle de l'état orbital de la lumière sur une large bande spectrale. Le second axe concerne la mise en forme topologique d'un film de cristal liquide cholestérique dans le cadre du stockage de l'information de nature topologique. Nous avons démontré la possibilité de générer une grande diversité de défauts topologiques métastables, de manière contrôlée et reconfigurable, à la fois dans le temps et dans l'espace. Nous avons développé une approche permettant de réduire drastiquement le coût énergétique d'écriture de ces défauts. Nous avons également montré qu'il était possible d'obtenir un nouveau type de mémoire réinscriptible contrôlé par le degré de liberté « spin » du photon.

Mots clés

MILIEUX ANISOTROPES - POLARISATION - VORTEX OPTIQUES - CRISTAUX LIQUIDES

Abstract

The enclosed work deals with the study of the topological shaping of light and matter and will be divided into two categories of research. The first focuses on the topological shaping of light from liquid-crystal based spin-orbit interfaces. In particular, we show in this manuscript, that different systems based on the use of natural topological defects behave as highly efficient natural optical spin-orbit encoders, for distinct topological charges, at the micron scale and with spatial control. The operating wavelength and operation mode of such interfaces can be tuned in real-time using low voltage electric fields. This breakthrough opens the path to the ultra-broadband control of the light's orbital state. The second category concerns the topological shaping of a cholesteric liquid crystal film in context of mass data storage. We show the potential to generate metastable topological microstructures in a controlled and reconfigurable way, both in time and space and with a low energy cost. We also demonstrated a new, unique type of rewritable memory, controlled by the « spin » of the laser-generated incident photon.

Keywords

ANISOTROPIC MEDIA - POLARIZATION - OPTICAL VORTICES - LIQUID CRYSTALS