



HAL
open science

Sondes de lumière résonante et traitement des signaux pour le suivi dynamique de processus de la matière molle

Lucas Garnier

► To cite this version:

Lucas Garnier. Sondes de lumière résonante et traitement des signaux pour le suivi dynamique de processus de la matière molle. Optique / photonique. Université Rennes 1, 2020. Français. NNT : 2020REN1S018 . tel-03123617v2

HAL Id: tel-03123617

<https://theses.hal.science/tel-03123617v2>

Submitted on 24 Aug 2021

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.

THESE DE DOCTORAT DE

L'UNIVERSITE DE RENNES 1

ECOLE DOCTORALE N° 596
Matière Molécules et Matériaux
Spécialité : Photonique

Par

Lucas GARNIER

Sondes de lumière résonante et traitement des signaux pour le suivi dynamique de processus de la matière molle

Thèse présentée et soutenue à Rennes, le Vendredi 04 Septembre 2020

Unités de Recherche : Institut de Physique de Rennes (IPR)

Institut d'Électronique et de Technologies numéRiques (IETR)

Rapporteurs avant soutenance :

Pierre VIKTOROVITCH	Directeur de Recherche CNRS Emérite Institut de Nanotechnologies de Lyon - Ecole Centrale de Lyon
Joseph ZYSS	Professeur Emérite Institut Fédératif d'Alembert Laboratoire de Photonique Quantique Moléculaire - LPQM ENS Paris-Saclay

Invités :

Hervé LHERMITE	Maître de Conférences, IETR CNRS, Rennes
Hervé CORMERAIS	Professeur, IETR CNRS, Centrale/Supélec, Rennes
Cécile LE FLOCH-FOUERE	Maître de Conférences, INRA AgroCampus-Ouest, Rennes

Composition du Jury :

Pierre VIKTOROVITCH	Directeur de Recherche CNRS Emérite, INL - ECL Lyon
Joseph ZYSS	Professeur Emérite, LPQM - ENS Paris-Saclay
Benoît BOULANGER	Professeur, Institut Néel CNRS, Grenoble
Etienne GAVIOT	Professeur, LAUM CNRS, Le Mans
France LE-BIHAN	Professeur, IETR CNRS, Rennes
Fabrice MAHE	Maître de Conférences, IRMAR CNRS, Rennes
Directeur de Thèse Bruno BÊCHE	Professeur, IETR CNRS, Rennes
Co-directrice de Thèse Véronique VIE	Maître de Conférences, IPR CNRS, Rennes

Remerciements

Tout d'abord, j'exprime ma profonde gratitude envers le Dr. Pierre Viktorovitch (DR CNRS) et le Pr. Joseph Zyss d'avoir bien voulu effectuer leur rôle de rapporteur de ce manuscrit, le Pr. Etienne Gaviot d'avoir présidé le jury, ainsi que chacun des membres du jury m'ayant fait l'honneur d'assister à cette soutenance : Pr. Benoît Boulanger, Pr. France Le-Bihan et Dr. Fabrice Mahé.

J'exprime mes plus sincères remerciements au Pr. Bruno Bêche et au Dr. Véronique Vié pour leur direction et encadrement de thèse de doctorat. Je remercie Bruno d'avoir partagé avec moi son expertise dans les domaines de l'optique et de la photonique, ainsi que sa bonne humeur qui m'a aidé à rester motivé durant ces trois années. Véronique m'a quant à elle apporté son aide sur des notions propres à la physique de la matière molle ainsi que sur les techniques expérimentales associées ; je la remercie sincèrement.

Je tiens aussi à remercier Dr. Hervé Lhermite, Dr. Arnaud St-Jalmes, Dr. Fabrice Mahé, Pr. Hervé Cormerais, Dr. Rigoberto Castro-Beltrán, Dr. Huriye Akdas-Kilic, ainsi que Mathieu Berges, Vincent Cazin, Octave Pin et Quentin Lidell pour les différentes collaborations que nous avons entrepris et qui ont permis à cette thèse une multidisciplinarité portant sur différents domaines de la photonique, de la physique de la matière molle, de la biologie puis du traitement du signal.

Enfin, je remercie ma famille, mes amis ainsi que mes collègues doctorants pour leur soutien tout au long de ces trois années riches en émotions.

Introduction générale

Le travail effectué au cours de cette thèse et qui est détaillé dans ce manuscrit a été réalisé respectivement à l'Institut de Physique de Rennes (IPR) et à l'Institut d'Électronique et de Télécommunication de Rennes (IETR), dans le cadre d'une collaboration multidisciplinaire regroupant des chercheurs de l'Institut des Sciences Chimiques de Rennes (ISCR), de l'Institut de Recherches MATHématiques de Rennes (IRMAR) et de l'école Centrale/Supelec de Rennes.

Les micro-résonateurs photoniques intégrés ont provoqué un grand intérêt au cours des dernières décennies du fait de leurs nombreuses applications dans le domaine des capteurs et de la détection en métrologie fine. En effet, une telle technologie offre la possibilité de concevoir des laboratoires-sur-puce ('Lab-on-Chip', LoC), c'est à dire des capteurs miniaturisés et transportables. Ce type de composant offre des possibilités d'applications dans la recherche fondamentale en biophysique et biochimie, ainsi que dans des secteurs industriels tels que le suivi de conditions environnementales par la détection de polluants, ou encore dans l'industrie pharmaceutique, dans la cosmétique et dans l'agroalimentaire où ils peuvent être directement intégrés à la chaîne industrielle pour la stabilité des produits en temps réel ('on-line on-live'). La multidisciplinarité du consortium transverse créé durant cette thèse au sein duquel ce travail de thèse a été effectué permet d'étudier ces micro-résonateurs de la fabrication aux applications liées au suivi dynamique de divers processus de la matière molle, en passant par la mise en œuvre expérimentale ainsi que l'acquisition et le traitement automatisé des données spectrales.

Ce manuscrit de thèse contient trois parties, chacune contenant deux chapitres. Le premier chapitre concerne une mise en perspective historique des travaux qui seront présentés dans la suite. En effet, le concept de résonance est apparu dans l'histoire des sciences suite à des siècles d'études des phénomènes périodiques d'origine vi-

bratoire par exemple. Ainsi, le premier chapitre porte sur les différentes avancées scientifiques qui ont permis l'émergence du concept de résonance en science physique. Il est question des lois de l'harmonie telles qu'énoncées par Pythagore, des résonances orbitales introduites par Laplace, des travaux réalisés par Chladni sur les modes de vibrations de plaques métalliques, du résonateur de Helmholtz et de son application à la spectroscopie acoustique, des résonances électromagnétiques s'établissant dans l'espace compris entre la surface de la terre et l'ionosphère appelées résonances de Schumann du nom de leur découvreur, ainsi que des résonances moléculaires et atomiques dont l'étude a permis l'émergence de la spectroscopie optique. Enfin, ce chapitre se clôture par quelques exemples de technologies modernes qui nécessitent la compréhension et la mise en œuvre de dispositifs résonants. Le deuxième chapitre, quant à lui, a pour objectif de donner les principaux outils théoriques minimum nécessaires à la bonne compréhension et utilisation de micro-résonateurs en photoniques. Les bases du formalisme mathématique décrivant la propagation de la lumière (un champ électromagnétique au sens de la théorie de J.C. Maxwell) dans une structure guidante y sont détaillées, suivi de la description du phénomène de couplage évanescent, deux ingrédients constituant la description des résonateurs en photonique intégrée. La fonction de transfert de telles structures résonantes comprenant un guide d'accès et un micro-résonateur est ensuite présentée, ainsi que l'ensemble des différents paramètres physiques que l'on peut extraire de cette fonction de transfert. Enfin, ce deuxième chapitre se clôture par la description des différents modes d'utilisation de ce type de structures résonantes dans le cadre d'applications en détection et en suivi dynamique de processus. La deuxième partie de ce manuscrit est constituée des chapitres 3 et 4; elle porte sur l'ensemble des travaux expérimentaux dédiés aux suivis de processus de la matière molle réalisés au cours de cette thèse de doctorat. Le chapitre 3 porte sur la conception et la fabrication des circuits photoniques sous forme de puce, puis sur l'ensemble de la plateforme expérimentale au sein de laquelle ces circuits sont incorporés, ainsi que sur l'acquisition et le traitement du signal et le développement des codes spécifiques qui y sont associés en sortie de chaîne de mesure. En ce qui concerne la conception et la fabrication, les caractéristiques géométriques des structures sont détaillées, de même que les matériaux utilisés, et la méthode de fabrication en photolithographie

deep-UV en salle blanche est présentée. La suite de ce troisième chapitre est quant à elle consacrée à la plateforme de tests et de caractérisations au sein de laquelle les structures photoniques sont incorporées en tant que micro-sondes résonantes. Cette plateforme permet une injection optimale de lumière à l'intérieur des structures résonantes, ainsi que la mesure des caractéristiques spectrales associées au mode transmis en sortie de circuit. Enfin, la dernière section de ce chapitre est consacrée aux méthodes d'acquisition et de traitement des données spectrales par des codes Matlab qui permettent d'une part d'acquérir les spectres transmis par les circuits, et d'autre part de les interpréter en y extrayant les différents paramètres spectraux utiles. Le chapitre 4, qui clôt la deuxième partie, porte quant à lui sur l'ensemble des résultats expérimentaux obtenus au cours de cette thèse qui concernent le suivi de processus dynamiques de la matière molle par le biais des circuits photoniques présentés dans les chapitres précédents. Différents types de phénomènes y sont ainsi étudiés ; des phénomènes dont l'évolution se fait au cours du temps, et d'autres en fonction de la température. Les processus dont la dynamique est temporelle qui sont ainsi étudiés sont les mécanismes de condensation et d'évaporation de vapeur d'eau sur une surface, d'évaporation d'une goutte d'eau sessile, qui montre d'ailleurs la possibilité de réaliser des micro-balances photoniques, ainsi que la sédimentation de particules de taille nanométrique dans un liquide. Enfin, la dernière section de ce chapitre porte sur la mise en œuvre des capteurs photoniques pour la détection de transition de phase morphologique du premier ordre d'espèces biologiques en fonction de la température, en particulier la transition de gel/fluide de la sphingomyéline puis la transition de structures auto-assemblées d'acides gras en solution aqueuse modifiant leurs agencements structuraux. La troisième et dernière partie de ce manuscrit est exclusivement théorique ; elle porte sur la description du comportement électromagnétique évolutif le long des courbes de dispersion tout d'abord d'un guide d'onde puis d'un micro-résonateur tous deux sujets à des modifications des propriétés opto-géométriques de son environnement. À ce titre, le chapitre 5 se concentre sur la description mathématique d'une formulation intégrant (et intégrale) de toute l'évolution des propriétés de guidage d'un guide plan de 3 et 4 couches dans le cas de modifications temporelles de toutes ses caractéristiques géométriques. Le chapitre 6, quant à lui, propose une ouverture vers la description totale, évolutive et

globale des propriétés spectrales d'un micro-résonateur au cours du temps lorsque son environnement, et donc lui-même en temps que sonde, est soumis à des modifications opto-géométriques de sa structure au cours du temps.

Première partie

Une histoire de la résonance
et
le minimum théorique à savoir.

Chapitre 1

Résonances et résonateurs : histoire du concept et de ses applications

La notion de résonance est prépondérante dans la science contemporaine. En effet, elle est utilisée dans de nombreuses branches de la physique et de l'ingénierie ; de l'acoustique à l'électromagnétisme en passant par l'astronomie, la physique atomique, la mécanique des structures, l'optique etc... Cependant cette notion n'a pas toujours existé et est le fruit de nombreux travaux réalisés à travers l'histoire des sciences, dont les origines remontent à avant notre ère. Les premiers domaines d'étude se concentrant sur des phénomènes liés à la résonance, bien que le mot n'existait pas, sont la musique et l'acoustique musicale. Les premiers instruments de musique, des objets capables de produire, de prolonger ou d'amplifier des sons datent de l'époque paléolithique, et se présentent à l'époque sous forme de cordes, de peaux tendues et de phalanges de rennes sifflantes [1]. L'apparition de ces objets à une époque où ni la physique des ondes, ni le concept de résonance, ni le concept d'harmonie n'existent montre que la première approche des hommes au phénomène de résonance s'est faite de manière intuitive à travers de simples effets sonores. C'est par une étude mathématique plus rigoureuse de ces effets sonores que des premiers travaux mèneront à la création du concept de résonance tel que nous le connaissons aujourd'hui : dès Pythagore au VIème siècle avant notre ère. Dans ce chapitre,

une vision historique et didactique sur l'évolution du concept de résonance sera apportée, à travers les travaux d'éminents scientifiques ainsi qu'à travers différentes applications technologiques.

1.1 De la musique à la cosmologie : l'harmonie de Pythagore

Pythagore était un philosophe et un scientifique grec ayant vécu au VI^{ème} siècle avant notre ère et ayant beaucoup influencé la pensée occidentale. Au sein de son école "pythagoricienne", une confrérie rassemblant des intellectuels, il a notamment travaillé sur l'arithmétique, la géométrie, l'acoustique musicale et l'astronomie. En particulier, Pythagore fut l'un des premiers scientifiques à avoir travaillé sur l'objet "corde vibrante" pour en décrire les caractéristiques musicales et harmoniques. Il a remarqué tout d'abord que la hauteur du son varie en sens inverse de la longueur de la corde, mais surtout que les sons consonants se produisent pour des rapports entiers de longueur de corde. La présence de nombres entiers "naturels" dans la description de ce processus s'avérait déjà exceptionnelle. Ainsi, concernant un son fondamental produit par une corde de taille 1 (ex : un do), une corde de taille $1/2$ ou 2 produit une octave (respectivement un do plus aigu et un do plus grave) par rapport à la fondamentale, une corde de taille $3/4$ ou $3/2$ ($=6/4$) produit respectivement une quarte descendante (sol plus grave) ou une quinte montante (sol plus aigu) et une corde de taille $2/3$ ou $4/3$ produit respectivement une quinte descendante ou une quarte montante (fa), comme indiqué en figure 1.1.

La quinte, la quarte et l'octave sont des intervalles dits "justes" à l'origine de nombreux concepts de théorie musicale encore en vigueur aujourd'hui. Ces relations entre les différents intervalles et les longueurs de cordes sont aujourd'hui parfaitement décrits et compris par la physique des ondes, qui a pris son essor dans la physique plus d'un millénaire après la mort de Pythagore [2].

A partir de ces résultats concernant l'harmonie musicale, Pythagore a développé un modèle cosmologique basé sur cette gamme, modèle nommé "Musica Universalis". Dans ce modèle géocentrique, les différents objets célestes composant le système solaire suivent des trajectoires circulaires autour de la terre et les rayons de leurs

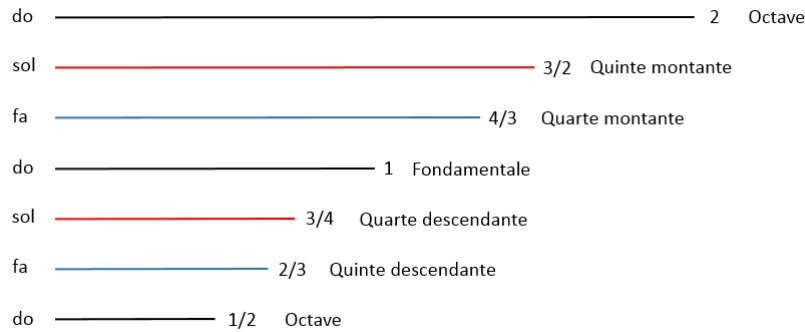


FIGURE 1.1 – Rapport d’entiers naturels entre les longueurs de corde et les sons produits dans l’étude des cordes vibrantes menées par Pythagore.

orbites suivent une progression géométrique semblable à celle des sons consonnants sur une corde. Bien que l’on sache aujourd’hui que ce modèle est faux, il a tout de même inspiré de nombreux travaux scientifiques dans les siècles qui ont suivi.

1.2 Les résonances orbitales

Après la découverte par Newton de la loi de la gravitation, de nombreux travaux ont été entrepris pour comprendre la mécanique céleste, notamment par Pierre-Simon de Laplace. Laplace était un physicien et mathématicien français ayant vécu aux XVIIIème et XIXème siècles. Il a travaillé, entre autres, sur la dynamique de certains corps du système solaire. En particulier, les caractéristiques orbitales des trois premières lunes de Jupiter (Io, Europe et Ganymède) présentent des propriétés remarquables ; dans son livre “Expositions du système du monde” [3] paru en 1796, Laplace écrivait :

“Les longitudes moyennes [...] des trois premiers satellites vus du centre de Jupiter, sont telles que la longitude du premier satellite, moins trois fois celle du second, plus deux fois celle du troisième est égale à très-peu près à la demi circonférence. Cette égalité est si approchée que l’on est tenté de la regarder comme rigoureuse, et de rejeter sur les erreurs des observations, les quantités très petites dont elles s’en écartent...”

Cette citation peut se traduire en une formule mathématique simple :

$$\lambda_{Io} - 3\lambda_{Eu} + 2\lambda_{Ga} = 180^\circ \quad (1.1)$$

avec λ_x la longitude moyenne du satellite x . Cette relation illustre l'*accord de phase* qui existe entre les différentes orbites de ces lunes. Cet accord de phase se traduit aussi par une relation entre les périodes d'orbite de ces lunes. La figure 1.2 représente cette relation ; on y voit que $T_{Ga} = 2T_{Eu} = 4T_{Io}$ avec T_x la période d'orbite de la planète x .

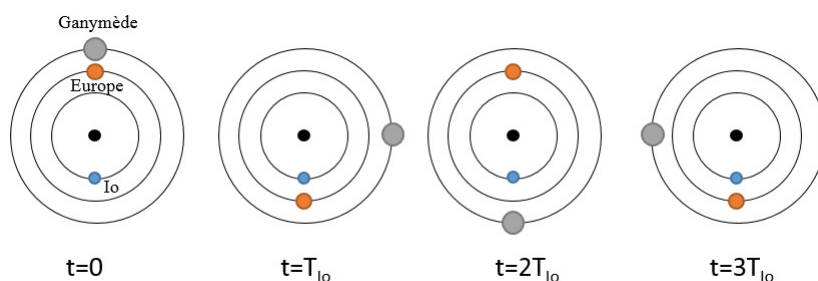


FIGURE 1.2 – Représentation schématique des orbites des trois premières lunes de Jupiter au cours du temps t .

Ce phénomène est dû aux interactions gravitationnelles entre les différentes lunes de Jupiter et porte aujourd'hui le nom de *résonance orbitale*. Ainsi, toujours dans son livre "Expositions du système monde", Laplace écrivait déjà :

"Ainsi les trois premiers satellites de Jupiter forment un corps de système liés entre eux par les rapports [...]prédédents que leur action mutuelle maintiendra sans cesse, à moins qu'une cause étrangère ne vienne déranger brusquement leur position respective"

Ce qui traduit bien le concept de résonance ; un système résonant est un système *stable* dans lequel chaque élément est relié aux autres par une relation de phase et qui ne peut voir ses caractéristiques résonantes modifiées, voire supprimées qu'en cas de perturbation (chaos) émergeant de l'extérieur. L'aspect *déterministe* apparaît de manière forte à cette époque sur cette notion d'orbites accordées.

1.3 Les figures de Chladni

Ernst Florens Friedrich Chladni était un physicien allemand des XVIIIème et XIXème siècles, qui a travaillé notamment sur l'acoustique. Il a étudié la vibration non pas d'une corde comme l'avait fait Pythagore, mais de plaques bi-dimensionnelles de différentes formes. En effet, tout comme les cordes vibrantes vibrent à certaines fréquences quand elles sont mises en mouvement, les plaques ont aussi différents modes de vibration qui dépendent de leurs formes et de leurs caractéristiques mécaniques intrinsèques. Pour effectuer ces études sur la vibration des plaques, Chladni dispose du sable sur une plaque de verre ou de métal d'une géométrie simple (carrée ou circulaire) et la fait vibrer à l'aide d'un archet de violon. Le sable va alors avoir tendance à être expulsé des parties vibrantes et donc à se positionner sur les lignes dites nodales, c'est à dire les lignes immobiles de la plaque. La figure 1.3 est extraite du *Traité d'Acoustique* [4] écrit par Chladni en 1802 et représente les différents modes de vibration d'un plaque circulaire.

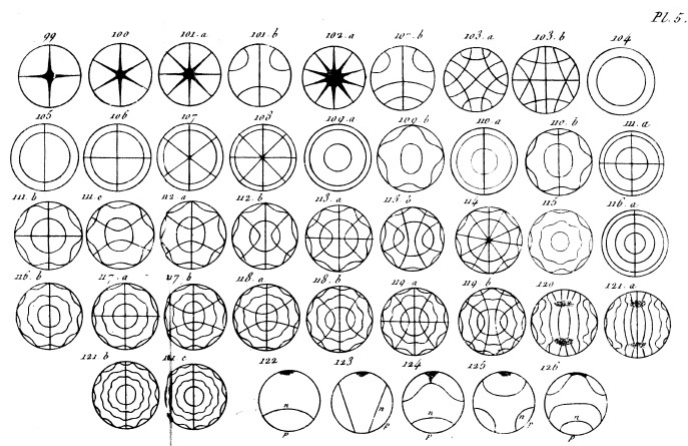


FIGURE 1.3 – Représentation des modes de résonance de plaques circulaires. Planches extraites du *Traité d'Acoustique* de Chladni [4].

La description de tels modes de vibration résonants de tels corps solides est primordiale dans divers domaines d'ingénierie, notamment dans l'aérospatiale et dans le génie civil. En effet, concernant l'aérospatiale, une fusée au décollage est soumise à d'importantes vibrations ; si des modes résonants de pièces qui composent le fuselage sont excités, cela peut provoquer des dégâts importants voire une destruction de la

fusée. Dans le cadre du génie civil, le tablier d'un pont comporte aussi des modes résonants. Par exemple, le pont du Millenium qui traverse la Tamise à Londres a dû être fermé juste après son inauguration à cause de problèmes de vibrations proches des résonances. Lors de son inauguration, 2000 piétons ont emprunté ce pont, et la cadence des pas des piétons a excité un mode de vibration latérale du pont.

1.4 Résonateur de Helmholtz et analyseur de Koenig

Hermann Ludwig Ferdinand von Helmholtz était un physicien, physiologiste et philosophe prussien ayant vécu au XIXème siècle qui a notamment travaillé en acoustique, plus particulièrement sur l'analyse de la composition spectrale d'un son. Il est entre autres connu pour son invention à laquelle il a donné son nom : le résonateur de Helmholtz (voir figure 1.4).

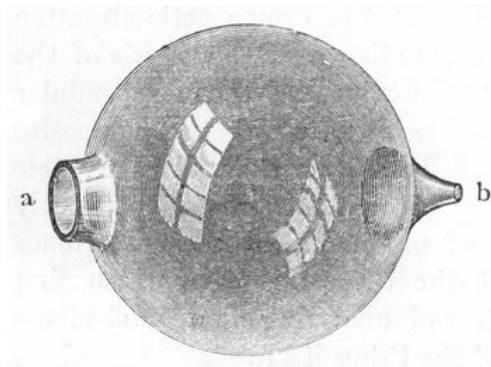


FIGURE 1.4 – Schéma d'un résonateur de Helmholtz, la figure est tirée du livre de Helmholtz "On the sensation of tone" [5].

Il s'agit d'une cavité sphérique percée de deux trous et qui, par construction, résonne à une certaine fréquence. Quand du son est produit proche du premier trou, seule la note sur laquelle le résonateur est accordé peut résonner en son sein et être couplée via le deuxième trou ; il est donc possible de détecter la présence d'une note en particulier, c'est à dire une composante spectrale, dans un son multiple et complexe. Cette invention est le fruit d'un long travail sur l'acoustique physique et la perception du son détaillé dans le livre *On the Sensation of Tone as a Physiological Basis for the Theory of Music* (traduit de l'allemand *Die Lehre von den Tonempfindungen*

als *physiologische Grundlage für die Theorie der Musik*) écrit par Helmholtz et publié pour la première fois en 1863 [5]. Dans ce livre, il explore notamment le concept de résonance, qu’il nomme “résonance sympathique” :

“La résonance sympathique est un phénomène trouvé dans les corps qui, une fois mis en mouvement par une impulsion, continuent à effectuer une longue série de vibrations avant de retourner à l’état de repos. Quand ces corps sont frappés de manière délicate et périodique [...], à condition que la période des coups soit précisément la même que la période des vibrations propres de ce corps, de larges et puissantes oscillations résulteront. Mais si la période des coups réguliers est différente de la période des oscillations, le mouvement résultant sera faible ou inexistant.”

Helmholtz décrit ici une notion qui n’était jusque là pas apparue dans l’étude du phénomène de résonance : celle de couplage entre un excitateur et un résonateur. En effet, ici l’excitateur est une onde acoustique multi-fréquentielle se propageant dans l’air. Cette dernière va partiellement se coupler avec le résonateur ; le couplage se produit uniquement à la fréquence propre du résonateur. Le résonateur extrait donc une partie de l’énergie transportée par l’onde acoustique, mais ne peut extraire que l’énergie qui est contenue sur la composante fréquentielle de l’onde qui correspond à la fréquence propre du résonateur. Pour illustrer le transfert de vibration entre l’excitateur et le résonateur, toujours dans son livre *Sensation of Tone*, Helmholtz écrit :

“Les corps de petite masse, qui communiquent facilement leur mouvement à l’air et s’arrêtent rapidement de produire du son comme, par exemple, des membranes tendues ou des cordes de violon, sont facilement mises en vibration, parce que le mouvement de l’air leur est aussi facilement transféré. [...] Les corps élastiques massifs, quant à eux, qui ne sont pas faciles à mettre en mouvement, et qui sont lents à communiquer leurs vibrations sonores à l’air, comme les cloches, et qui continuent de sonner pendant longtemps, sont aussi plus difficiles à être mis en mouvement par l’air.”

La propriété des résonateurs à rester plus ou moins longtemps en vibration décrite

dans cet extrait renvoie à la notion de *facteur de qualité* qui est aujourd’hui utilisée pour décrire le rapport entre l’énergie stockable dans le résonateur, et celle qui est dissipée à chaque oscillation. Le facteur de qualité s’exprime donc $Q = \frac{E_{sys}}{E_{dis}}$ avec E_{sys} l’énergie maximale stockable par le système résonant et E_{dis} l’énergie dissipée à chaque oscillation ou cycle. En effet, Helmholtz fait ici la distinction entre les objets qui “communiquent facilement leur mouvement à l’air”, ce qui correspond à une grande dissipation donc un petit facteur de qualité, et les objets “lents à communiquer leurs vibrations sonores à l’air”, ce qui correspond à une faible dissipation donc un grand facteur de qualité. Cette notion de facteur de qualité sera étudiée de manière plus complète dans la suite du manuscrit.

A partir du résonateur de Helmholtz, un autre physicien allemand du nom de Rudolph Koenig va inventer un appareil qui permet d’étudier et quantifier les composantes spectrales d’une onde sonore, l’analyseur harmonique à flamme de Koenig (voir figure 1.5).

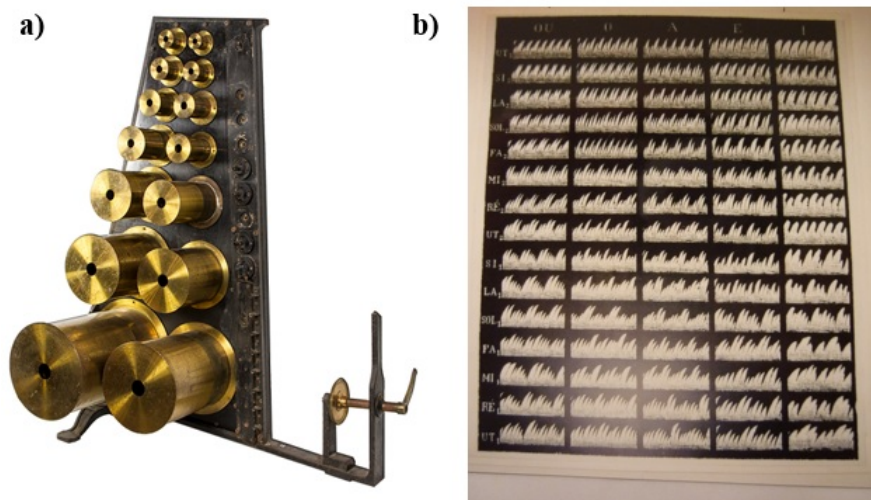


FIGURE 1.5 – a) Photographie d’un résonateur de Koenig appartenant à la collection de l’Université Rennes 1 [6] ; le miroir tournant n’est pas présent bien que son support le soit, et les tuyaux menant aux vannes manométriques sont aussi manquants. b) Photographie du tableau des formes de flammes en fonction de la note détectée et de la voyelle prononcée.

Cet appareil est composé de plusieurs résonateurs de Helmholtz dont une ouverture est dirigée vers le son à analyser, l’autre ouverture étant reliée à un tuyau. Ce tuyau, quant à lui, communique via une membrane souple à une arrivée de gaz.

Cette arrivée de gaz entretient une flamme dont la forme sera modifiée ou non en fonction de la vibration de la membrane. La figure 1.6 représente schématiquement le fonctionnement de ce dispositif.

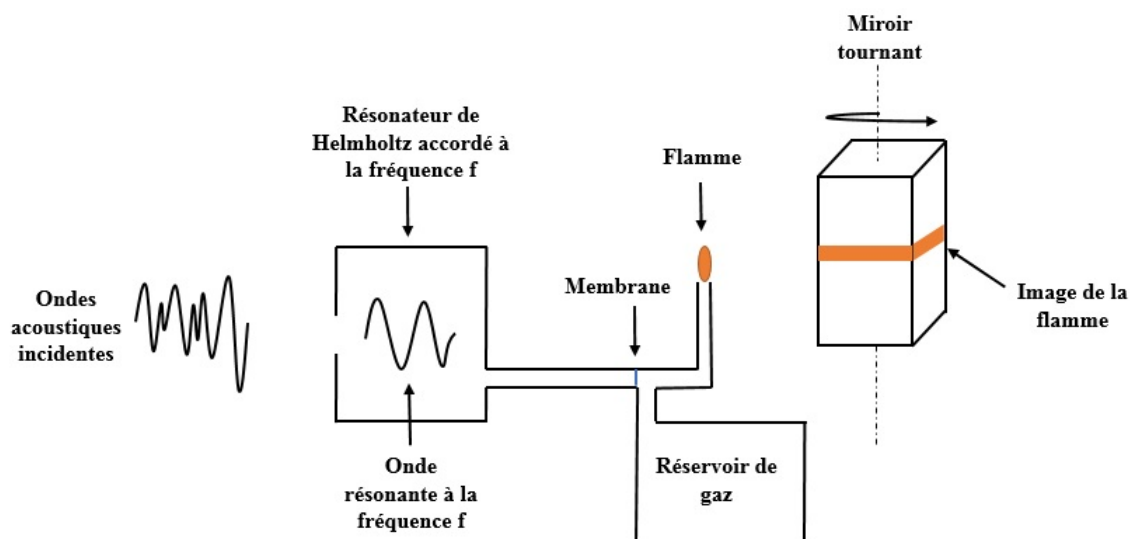


FIGURE 1.6 – Schéma de principe du fonctionnement de l'analyseur de Koenig.

Si le résonateur entre en résonance, c'est à dire si l'onde acoustique incidente contient la fréquence à laquelle le résonateur est accordé, la membrane souple va vibrer, ce qui va avoir pour effet de moduler le débit de gaz, donc d'induire des vibrations de la flamme. Ces vibrations étant trop rapides pour être visibles à l'œil nu, leur visualisation nécessite l'utilisation d'un miroir tournant. En effet, en raison du phénomène de persistance rétinienne, l'image de la flamme sera visible sur toute la largeur du miroir ; l'évolution de la forme de la flamme le long de la largeur du miroir est donc l'image de l'évolution de la forme de la flamme au cours du temps. Ce dispositif, qui permet de décomposer un signal oscillant en toutes ses composantes fréquentielles le place donc comme le premier analyseur de spectre.

1.5 Résonances de Schumann

Dans les sections précédentes, la résonance était considérée comme un phénomène concernant uniquement les objets mécaniques ; la corde vibrante, les objets célestes, les plaques solides bi-dimensionnelles puis les ondes sonores. Cependant, il peut aussi

concerner tout autre phénomène périodique non mécanique comme par exemple les ondes électromagnétiques. En 1952, un physicien allemand du nom de Winfried Otto Schumann a publié une série d'articles [7–9] dans lesquels il prédit l'existence de résonances électromagnétiques de très basse fréquence dans l'atmosphère terrestre. En effet, la terre ainsi que l'ionosphère sont des conducteurs ; l'espace situé entre ces deux conducteurs se comporte donc comme un guide d'onde à symétrie sphérique. Des ondes électromagnétiques présentes dans ce guide d'onde sont donc résonantes du fait de la symétrie de ce guide, qui est fermé sur lui-même et impose l'émergence d'ondes stationnaires résonantes, comme schématisé en figure 1.7. Le mécanisme pour exciter ces résonances qui est proposé dans ces articles est la foudre, avec en moyenne 2000 éclairs qui parcourent l'atmosphère terrestre à chaque instant.

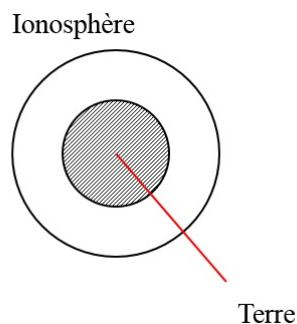


FIGURE 1.7 – Schéma de la cavité Terre-atmosphère-ionosphère siège des résonances Schumann.

Les caractéristiques de ces ondes sont déterminées par les propriétés électriques et géométriques du système terre+atmosphère+ionosphère. A partir de ces considérations, Schumann a déduit une formule simple pour les fréquences de résonance de cette cavité : $f_n = 7.49(n(n+1))^{1/2}$, ce qui correspond pour les trois premiers modes à des fréquences propres de 10.6, 18.4 et 26.0 Hz. En 1954, accompagné de son collègue König, il écrit un court papier [10] dans lequel il décrit l'échec dans la tentative d'observation de ces résonances. Il faudra attendre 1960 et un article écrit par Balse et Wagner, deux chercheurs du Massachusetts Institute of Technology pour avoir une preuve expérimentale de l'existence de ces résonances électromagnétiques [11]. La figure 1.8 est extraite de cet article et représente le spectre en fréquence de ces résonances.

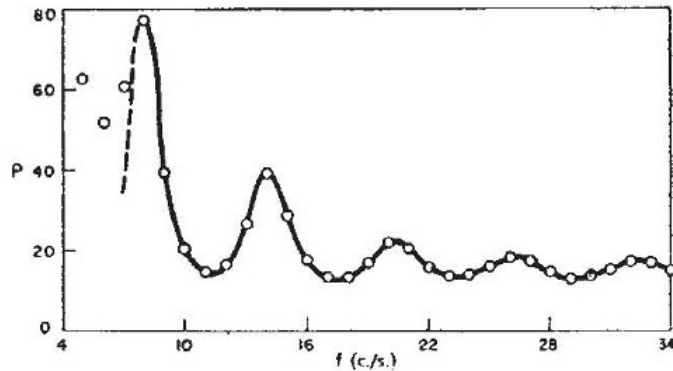


FIGURE 1.8 – Spectre mesuré des résonances de Schumann ; la figure est tirée de la référence [11].

On y voit de légères différences avec les prédictions de Schumann, ce qui a amené d'autres scientifiques à travailler sur la modélisation de ces résonances au cours des années qui ont suivi. Aujourd'hui, ces résonances sont mesurées en temps réel par de nombreuses stations et leurs mesures ont plusieurs applications [12] : l'étude de la distribution des éclairs sur la surface de la terre [13], la mesure de température globale aux tropiques [14], en terme de *capteur* ou encore le suivi des propriétés de conductivité électrique des couches inférieures de l'ionosphère [15].

1.6 Résonances moléculaires et atomiques : la spectroscopie optique

Au début du XIXème siècle, près d'un siècle et demi après la découverte par Newton de la décomposition de la lumière blanche par un prisme, le chercheur anglais William Hyde Wollaston découvre la présence de raies sombres dans le spectre visible du soleil mesuré depuis la terre. Ces raies, aujourd'hui appelées raies de Fraunhofer ont été largement étudiées par Joseph Fraunhofer, ce qui a mené, au cours du XIXème siècle à une nouvelle branche de la physique : la spectroscopie, appelée à l'époque analyse spectrale. Bien qu'à cette époque aucune explication théorique n'ait été imaginée quant à la présence de ces raies, il était connu que la décomposition spectrale de la flamme produite par la combustion de sels donnait

lieu à la présence de raies lumineuses sur fond noir ; la position de ces raies dans le spectre étant corrélée à la composition chimiques de ces sels. C'est à partir de cette constatation que les anglais John Herschel et William Henry Fox Talbot ont eu l'idée d'utiliser la spectroscopie pour l'analyse chimique de substances. Ces raies, qu'elles soient sombres (raies d'absorptions) ou lumineuses (raies d'émissions), ne sont pas présentes uniquement dans le spectre visible, mais s'étendent aussi dans les domaines infra-rouge et UV. Il faut attendre le XXème siècle et l'avènement de la physique quantique pour pouvoir donner une explication à ce phénomène. En effet, l'apport de la théorie quantique a été primordial dans l'étude de l'interaction rayonnement/matière, de part la description ondulatoire des particules de matière. En particulier, la découverte de la quantification de l'émission et de l'absorption d'énergie par les électrons d'un atome a permis d'interpréter les résultats des mesures par spectroscopie. Les raies présentes dans le spectre d'émission d'une flamme provenant de la combustion de sels correspondent à l'énergie quantifiée que les électrons des atomes du sel en question peuvent émettre, et les raies d'absorption présentes dans le spectre solaire correspondent à l'absorption par les différentes espèces chimiques présentes dans l'atmosphère d'une partie de la lumière émise par le soleil. En 1924, dans sa thèse nommée "*Recherches sur la théorie des Quanta*"[16], Louis De Broglie introduit la notion de *longueur d'onde* pour l'onde associée à une particule de matière, dont la valeur est donnée par l'expression $\lambda = \frac{h}{p}$ avec h la constante de Planck et p la quantité de mouvement. A partir de ces considérations, dans le cadre de la description du comportement des électrons au sein d'un atome, il assimile ainsi les orbites électroniques à des ondes stationnaires quantifiées, au même titre que les modes résonants quantifiés de vibration d'une corde. Selon cette théorie toujours en vigueur de nos jours, le nuage électronique se comporte donc comme un possible *résonateur* ; les différences d'énergie entre ces modes de vibration dépendent de l'espèce chimique et correspondent aux énergies des raies du spectre d'émission ou d'absorption de l'espèce en question. Cependant, les différences entre les énergies des modes électroniques se situent dans les gammes respectivement visible et proche UV du spectre optique, et ne peuvent donc pas rendre compte des raies présentes dans la gamme infra-rouge. Ces raies sont dues à d'autres types de résonance qui ne concernent pas le nuage électronique au sein de l'atome, mais les atomes au sein

de la molécule. En effet, une liaison chimique entre deux atomes pour former une molécule peut être modélisée comme un ressort, ou *oscillateur harmonique* avec ses propres modes quantifiés de vibration ; la différence en énergie entre deux modes de vibration correspond à des énergies dans la gamme de l'infra-rouge. Chaque molécule présente un grand nombre de modes de vibration ; le spectre associé à cette molécule est donc unique et confirme la possibilité d'identifier une espèce chimique à partir de son spectre d'absorption ou d'émission comme l'avaient annoncés John Herschel et William Talbot.

1.7 Quelques exemples d'applications technologiques modernes des résonateurs

Les résonateurs jouent un rôle important de nos jours, et de nombreuses technologies modernes ont vu le jour grâce à la compréhension du principe de résonance. Dans cette section, quelques exemples de telles technologies sont présentés succinctement.

1.7.1 Laser

Le laser (acronyme de “Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation”) est une technologie incontournable à notre époque. Elle est présente dans de nombreux appareils électroniques (ordinateurs, téléphones portables, appareils scientifiques...), infrastructures (réseaux de fibres optiques, capteurs de déformation de structures...), industriels (découpe, télémètre...), militaires (système de visée, LIDAR..) et dans de nombreuses autres technologies. Le principe de fonctionnement d'un laser consiste en l'amplification d'un mode optique résonant à l'intérieur d'une cavité par un milieu amplificateur présent dans cette même cavité. C'est la résonance du mode optique qui rend possible l'amplification de l'intensité lumineuse par le milieu amplificateur, et donc l'émission de lumière cohérente [17, 18].

1.7.2 Micro-balance à quartz

La micro-balance à quartz est un dispositif de mesure de masse ayant une sensibilité de quelques nanogrammes/cm² se basant sur la mesure de la fréquence de

résonance acoustique d'un cristal de quartz. En effet, la fréquence de résonance acoustique d'un matériau dépend de ses propriétés visco-élastiques et de ses dimensions ; l'ajout d'une quantité de matière sur ce cristal perturbe ses conditions de résonance, que l'on peut mesurer grâce à la nature piézoélectrique du quartz. En connaissant les propriétés visco-élastiques du matériau considéré, il est donc possible d'en déduire sa masse en fonction des modifications mesurées dans les propriétés de résonance du cristal de quartz [19].

1.7.3 Structures anti-sismiques

Les séismes sont dus à la propagation d'ondes acoustiques dans le sol, qui ont pour effet de faire vibrer les bâtiments et les infrastructures de génie civil construits à la surface. Ces infrastructures, du fait de leurs géométries et des matériaux desquels elles sont constituées, présentent des fréquences de résonances associées à leurs modes de vibrations. Si ces modes sont excités, par exemple par un séisme (ou par une autre source de vibration comme évoqué en section 1.3 dans le cas du pont du Millenium à Londres), il s'en suit des dégâts irréversibles voire la destruction du bâtiment. Afin d'éviter ce phénomène, particulièrement dans les zones exposées au séismes et habitées, il est nécessaire de prévoir des protections pour que les ondes sismiques ne se couplent pas aux modes de vibrations des bâtiments ou infrastructures. Pour ce faire, on peut installer dans le sol des métamatériaux phononiques dont la cellule élémentaire comprend une ou plusieurs structures résonantes dont le but est d'empêcher le couplage entre les ondes sismiques et les bâtiments en agissant sur ces ondes, soit en les absorbant, en les déviant ou en les réfléchissant [20]. Ces métamatériaux sont des matériaux périodiquement structurés à des échelles inférieures à la longueur d'onde des ondes avec lesquels ils interagissent, ce qui leur confère d'ailleurs des propriétés atypiques. Ce type de matériaux existe aussi bien pour des interactions avec des ondes acoustiques qu'avec des ondes électromagnétiques [21].

1.8 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté les évolutions du concept de résonance à partir de plusieurs exemples historiques. Ainsi, nous pouvons tirer une définition actuelle de la résonance et des résonateurs. Comme nous l'avons vu, un résonateur est un objet physique qui est le siège d'ondes stationnaires de nature quelconque (acoustique, électromagnétique, gravitationnelle...). Ces ondes stationnaires vont, en fonction des caractéristiques du résonateur, résonner à certaines fréquences propres ou de résonance. Une onde, contenant dans son spectre les fréquences de résonance du résonateur, va, si elle entre en contact avec ce dernier, exciter ses modes de vibrations. En se mettant à vibrer, le résonateur stocke de l'énergie, qui va ensuite se dissiper naturellement au cours du temps. Le temps que mettra l'énergie à se dissiper sera plus ou moins long en fonction du facteur de qualité associé au résonateur. Dans le deuxième chapitre de cette partie introductive, ainsi que dans le reste du manuscrit, nous allons nous intéresser à un type de résonateur en particulier, et à sa réalisation sur puce et ses applications en capteur de surface : le microrésonateur photonique intégré.

Chapitre 2

Micro-résonateurs photoniques intégrés : le minimum théorique

Au cours de ce chapitre, nous allons détailler le fonctionnement d'un type de résonateur en particulier : le micro-résonateur photonique intégré qui a été beaucoup étudié, autant d'un point de vue théorique qu'expérimental [22–27]. Les deux principaux champs d'application de ce type de composant sont les télécommunications et la métrologie [28, 29]. En ce qui concerne les télécommunications, les micro-résonateurs peuvent être utilisés pour la fabrication de lasers [30–32], de filtres ou de modulateurs [33]. Dans le cas de la métrologie fine, ils peuvent être utilisés pour la détection d'espèces chimiques ou biologiques [34–38], comme la détection de métaux lourds [39–41] avec une capacité de détection pouvant aller jusqu'à la molécule unique [42] ; une autre utilisation possible est celle de la mesure de transition de phase [43]. Plusieurs géométries sont possibles pour la fabrication de micro-résonateurs en fonction du cahier des charges de l'application visée et des procédés technologiques associés ; des résonateurs sphériques 3D [44–46], des résonateurs intégrés en forme de disques, de cercles ou d'hippodromes 2D [47], ou encore montés sur un piédestal [48, 49]. Dans le cadre de ce travail de thèse, des micro-résonateurs intégrés en forme d'hippodrome ont été fabriqués en salle blanche puis utilisés pour des applications en métrologie de processus générés en “matière molle”. Les détails du procédé de fabrication et des différentes expérimentations seront présentés dans la partie 3 de ce manuscrit. Le premier paragraphe de ce chapitre portera sur le formalisme décrivant la pro-

pagation de la lumière dans un guide d'onde plan, puis le mécanisme de couplage évanescent sera détaillé dans le deuxième paragraphe. Ensuite, le troisième paragraphe portera sur l'étude de la fonction de transfert d'un micro-résonateur et enfin, le dernier paragraphe de ce chapitre portera sur l'application de ce type de structure photonique en tant que capteur.

2.1 Propagation de la lumière dans un guide plan ; base du formalisme

Avant de s'intéresser au comportement d'une onde lumineuse au sein d'un micro-résonateur, il est nécessaire de détailler les lois de propagation de la lumière dans un guide d'onde plan [26], dont une représentation schématique est donnée en figure 2.1. Dans ce cadre, la lumière sera considérée comme une onde décrite par le formalisme de J. C. Maxwell de l'électromagnétisme.

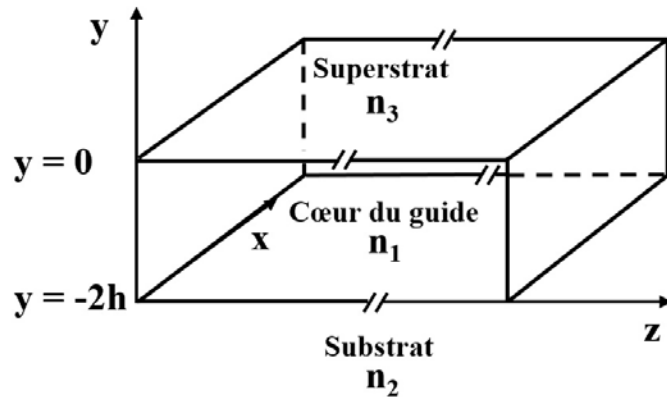


FIGURE 2.1 – Représentation schématique d'un guide plan 3 couches. Les indices sont tels que $n_1 > n_2, n_3$

Un guide plan consiste en un empilement de couches de matériaux diélectriques d'indices optiques différents dans une direction de l'espace; dans les deux autres directions de l'espace, les matériaux sont considérés comme infinis. Dans notre cas, on considère un empilement de 3 couches dans la direction y . On étudiera ici le comportement d'une onde optique polarisée TE et se propageant suivant la direction Oz . En prenant aussi en compte le fait que la structure est invariante suivant la direction Ox , on en déduit que le champ électrique associé à l'onde optique

vérifie $\vec{E} = (E_x, 0, 0) = E_x \vec{e}_x = E_0(y) e^{j(\omega t - \beta z)} \vec{e}_x$ avec j le nombre imaginaire pur ($j^2 = -1$), ω la pulsation associée à l'onde, $\beta = k_0 n_{eff}$ la constante de propagation effective du mode optique associé à la structure complète, k_0 le vecteur d'onde dans le vide, et n_{eff} l'indice effectif du mode, ou valeur propre du système. On peut montrer que le champ magnétique \vec{H} associé au champ électrique \vec{E} vérifie $\vec{H} = (0, \frac{\beta}{\mu_0 \omega} E_x, \frac{-j}{\mu_0 \omega} \frac{\partial E_x}{\partial y})$. Cette définition du champ optique, couplée aux équations de Maxwell permet de déduire une équation d'onde scalaire à laquelle le champ électrique obéit :

$$\frac{\partial^2 E_x}{\partial^2 y} + (k_0^2 n_i^2 - \beta^2) E_x = 0 \quad ; \quad i = 1, 2, 3 \quad (2.1)$$

Afin de résoudre cette équation d'onde dans les différentes régions de l'espace, on définit les grandeurs r , q et p selon une vision issue de la représentation géométrique en zig-zag des rayons se propageant :

$$\begin{cases} r = \sqrt{\beta^2 - (k_0 n_3)^2} \\ q = \sqrt{(k_0 n_1)^2 - \beta^2} \\ p = \sqrt{\beta^2 - (k_0 n_2)^2} \end{cases} \quad (2.2)$$

En tenant compte de ces définitions, l'équation (2.1) devient :

$$\begin{cases} \frac{\partial^2 E_x}{\partial^2 y} - r^2 E_x = 0 & si \quad y \geq 0 \\ \frac{\partial^2 E_x}{\partial^2 y} + q^2 E_x = 0 & si \quad -2h \leq y \leq 0 \\ \frac{\partial^2 E_x}{\partial^2 y} - p^2 E_x = 0 & si \quad y \leq -2h \end{cases} \quad (2.3)$$

La résolution de cette équation dans chaque région de l'espace ainsi que la prise en compte de la continuité de la composante H_z du champ magnétique associé en $y = 0$ donne, à une constante d'intégration près :

$$\begin{cases} E_x(y) \propto e^{-ry} & si \quad y \geq 0 \\ E_x(y) \propto \cos(qy) - \frac{r}{q} \sin(qy) & si \quad -2h \leq y \leq 0 \\ E_x(y) \propto (\cos(2hq) + \frac{r}{q} \sin(2hq)) e^{p(y+2h)} & si \quad y \leq -2h \end{cases} \quad (2.4)$$

ce qui équivaut, pour l'intensité transportée par l'onde, au module au carré de ces expressions. Cette distribution d'intensité en fonction de la couche du guide considérée

montre que, dans le cœur du guide, la solution est oscillante tandis qu'elle est exponentiellement décroissante dans les gaines inférieure et supérieure. L'intensité se propageant dans les gaines du guide forme une queue évanescence, ou onde évanescence au sens de Fresnel, et est par ailleurs responsable du couplage entre deux guides d'onde qui sera étudié dans la section suivante. La figure 2.2 représente le profil

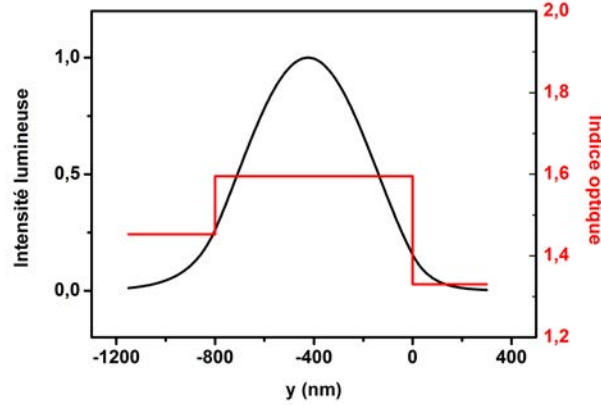


FIGURE 2.2 – Profil d'intensité (en noir) d'un monomode optique se propageant dans un guide d'onde plan asymétrique dont le profil d'indice est représenté en rouge. Ce mode est guidé et appartient au cône de lumière $n_{2,3} < n_{eff} < n_1$

d'intensité (en noir) dans un guide d'onde, dans le cas d'une distribution d'indice (en rouge) correspondant à un guide plan. On peut effectivement observer la présence d'intensité lumineuse en dehors du cœur du guide de par la présence des queues évanescences. En prenant aussi en compte la continuité du champ H_z en $y = -2h$, le système (2.4) permet d'obtenir la relation suivante :

$$2hq = \text{Arctan}\left(\frac{p}{q}\right) + \text{Arctan}\left(\frac{r}{q}\right) + m\pi \quad (2.5)$$

avec m un entier qui détermine l'ordre du mode. Cette équation, appelée relation de dispersion modale est une équation aux valeurs propres au sens mathématique, et permet, pour un jeu d'indices n_i et un nombre d'onde k_0 fixés, de déduire les valeurs de n_{eff} en fonction de l'épaisseur $2h$ du cœur du guide. La figure 2.3 représente les courbes de dispersion modales pour les trois premiers modes TE_m ($m=0, 1$ et 2). On peut remarquer sur la figure 2.3 que, pour chaque mode, il existe une épaisseur de cœur de guide en dessous de laquelle le mode ne peut pas s'établir et donc exister.

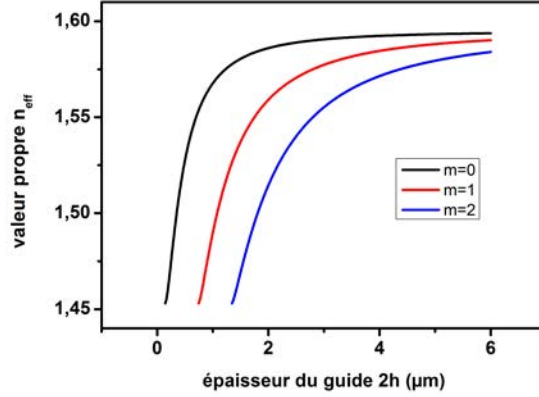


FIGURE 2.3 – Courbes de dispersion associées aux trois premiers modes guidés TE_m d'un guide d'onde plan, avec m entier.

En effet, si l'indice effectif du mode est égal au plus grand des indices de gaines, alors le mode ne peut pas être guidé. Afin de déterminer une expression analytique de cette épaisseur appelée épaisseur de coupure $2h_c$, on considère que $n_2 > n_3$; on s'intéresse donc à l'épaisseur pour laquelle $n_{eff} \rightarrow n_2$, c'est à dire pour laquelle $p = 0$ (voir (2.2)). La relation de dispersion se simplifie alors :

$$2h_c k_0 \sqrt{n_1^2 - n_2^2} = \text{Arctan}\left(\frac{0}{\sqrt{n_1^2 - n_2^2}}\right) + \text{Arctan}\left(\frac{\sqrt{n_2^2 - n_3^2}}{\sqrt{n_1^2 - n_2^2}}\right) + m\pi \quad (2.6)$$

L'épaisseur de coupure s'exprimera alors de la manière suivante :

$$2h_c = \frac{\lambda_0}{2\pi \sqrt{n_1^2 - n_2^2}} \left[\text{Arctan}\left(\frac{\sqrt{n_2^2 - n_3^2}}{\sqrt{n_1^2 - n_2^2}}\right) + m\pi \right] \quad (2.7)$$

2.2 Le couplage évanescent

Lorsque deux guides d'onde a et b sont suffisamment proches l'un de l'autre pour que la queue évanescente du mode optique se propageant dans le guide a "ressente" le guide b, il se produit un couplage, c'est à dire un transfert d'énergie du guide a au guide b. La figure 2.4 représente schématiquement cette situation.

En considérant deux guides plans suffisamment proches qui commencent à interagir en $z=0$ comme schématisé précédemment, les valeurs des champs E_a et E_b associés aux ondes se propageant dans les guides a et b sont données respectivement par :

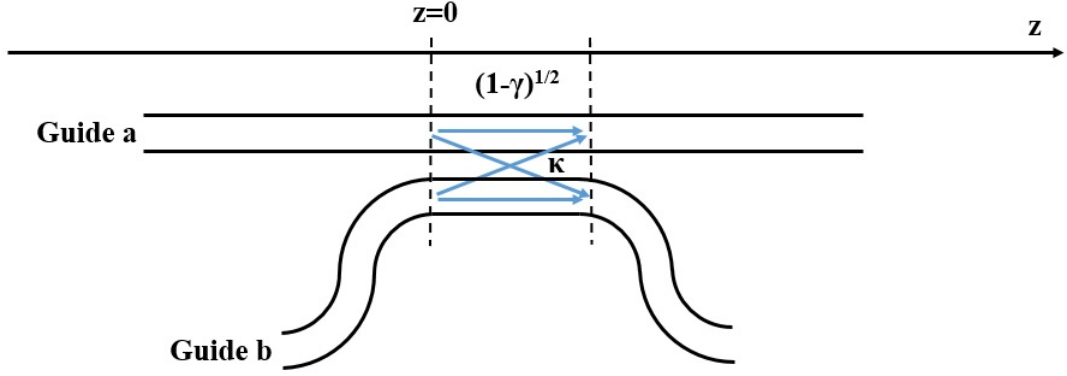


FIGURE 2.4 – Représentation schématique d'un coupleur directionnel.

$$\begin{cases} E_a(z) = \sqrt{1-\gamma}[-j\frac{\kappa}{g}\sin(gz)E_b(0) + (\cos(gz) + j\frac{\delta}{g}\sin(gz))E_a(0)]e^{-j\delta z} \\ E_b(z) = \sqrt{1-\gamma}[-j\frac{\kappa}{g}\sin(gz)E_a(0) + (\cos(gz) - j\frac{\delta}{g}\sin(gz))E_b(0)]e^{j\delta z} \end{cases} \quad (2.8)$$

avec $(1-\gamma)$ les pertes associées au couplage, δ le désaccord de phase qui permet de maximiser l'efficacité du passage ou l'inverse, κ le coefficient de couplage et $g = \sqrt{\kappa^2 + \delta^2}$. La valeur du désaccord de phase est donnée par :

$$\delta = \frac{1}{2}(\beta_b - \beta_a) = \frac{\pi}{\lambda}(n_{eff,b} - n_{eff,a}) \quad (2.9)$$

et le coefficient de couplage est défini par une forme d'intégrale de recouvrement :

$$\kappa = \frac{\omega\epsilon_0 \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} (n_a^2 - n_b^2) \vec{E}_a^* \cdot \vec{E}_b \, dx dy}{\int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \vec{u}_z \cdot (\vec{E}_a^* \wedge \vec{H}_a + \vec{E}_a \wedge \vec{H}_a^*) \, dx dy} \quad (2.10)$$

Avec n_a et n_b les indices des guides a et b , et \vec{u}_z le vecteur unitaire dans la direction z . Dans le cas où les deux guides ont les mêmes caractéristiques opto-géométriques, à savoir les mêmes dimensions et les mêmes valeurs d'indice, ils présentent alors la même valeur de n_{eff} , le désaccord de phase s'annule donc, et l'équation (2.8) devient :

$$\begin{cases} E_a(z) = \sqrt{1-\gamma}[-j\sin(\kappa z)E_b(0) + \cos(\kappa z)E_a(0)] \\ E_b(z) = \sqrt{1-\gamma}[-j\sin(\kappa z)E_a(0) + \cos(\kappa z)E_b(0)] \end{cases} \quad (2.11)$$

2.3 Fonction de transfert d'un micro-résonateur photonique

Un micro-résonateur photonique est un guide d'onde courbe rebouclé sur lui-même. Afin d'introduire de l'intensité lumineuse en son sein, il est couplé à un guide d'onde appelé guide d'accès dans lequel de la lumière est injectée, comme schématisé en figure 2.5. Par effet de couplage évanescent, une partie de l'intensité présente dans le guide d'accès est déplacée vers le résonateur selon le mécanisme explicité dans la section précédente.

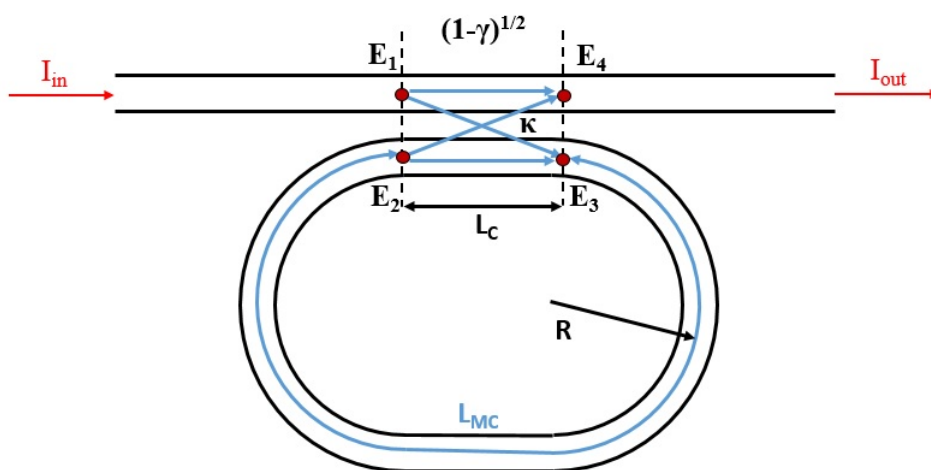


FIGURE 2.5 – Représentation schématique d'un micro-résonateur photonique couplé à un guide d'accès, avec L_C la longueur de couplage, R le rayon de courbure, L_{MC} le périmètre moyen du résonateur, E_1 , E_2 , E_3 et E_4 les champs électriques aux points indiqués.

Soient E_1 et E_2 les champs électriques associés à l'onde lumineuse en entrée de zone de couplage dans le guide d'accès et dans le résonateur respectivement, et E_4 et E_3 ceux en fin de zone de couplage dans le guide d'accès et dans le résonateur respectivement (voir figure 2.5). Le terme de perte par couplage $(1 - \gamma)$ introduit dans la section précédente représente les pertes en intensité entre le début et la fin de la zone de couplage, ce qui se traduit de la manière suivante :

$$|E_3|^2 + |E_4|^2 = (1 - \gamma)[|E_1|^2 + |E_2|^2] \quad (2.12)$$

En appliquant les relations de couplage (2.11) aux champs E_1 , E_2 , E_3 et E_4 , ainsi qu'en tenant compte de la propagation au sein du résonateur, on obtient les relations

suivantes reliant les différents champs :

$$\begin{cases} E_4 = \sqrt{1-\gamma}[\cos(\kappa L_C)E_1 - j\sin(\kappa L_C)E_2] \\ E_3 = \sqrt{1-\gamma}[-j\sin(\kappa L_C)E_1 + \cos(\kappa L_C)E_2] \\ E_2 = E_3 e^{-j\phi} e^{-\rho L_{MC}} \end{cases} \quad (2.13)$$

avec L_C la longueur de couplage, $L_{MC} = 2\pi R + L_C$ le périmètre du résonateur en excluant la zone de couplage, ϕ la phase accumulée le long du trajet L_{MC} et ρ le coefficient d'atténuation en amplitude à l'intérieur du résonateur. A partir de ces expressions, il est possible d'en déduire la fonction de transfert ou transmission en amplitude du résonateur :

$$t = \frac{E_4}{E_1} = \sqrt{1-\gamma} \frac{\cos(\kappa L_C) - \sqrt{1-\gamma} e^{-(\rho L_{MC} + j\phi)}}{1 - \sqrt{1-\gamma} \cos(\kappa L_C) e^{-(\rho L_{MC} + j\phi)}} \quad (2.14)$$

de laquelle on déduit la fonction de transmission en intensité dont le graphe est présenté figure 2.6 :

$$T(\phi) = t^2 = \frac{|E_4|^2}{|E_1|^2} = (1-\gamma) \frac{K^2 + A^2 - 2AK \cos(\phi)}{1 + A^2 K^2 - 2AK \cos(\phi)} \quad (2.15)$$

avec les nouveaux paramètres $K = \cos(\kappa L_C)$ et $A = \sqrt{1-\gamma} e^{-\rho L_{MC}}$. La phase accumulée au cours de la propagation L_{MC} dans le résonateur quant à elle, vérifie la relation suivante :

$$\phi = \beta L_{MC} = \frac{2\pi n_{eff} L_{MC}}{\lambda} \quad (2.16)$$

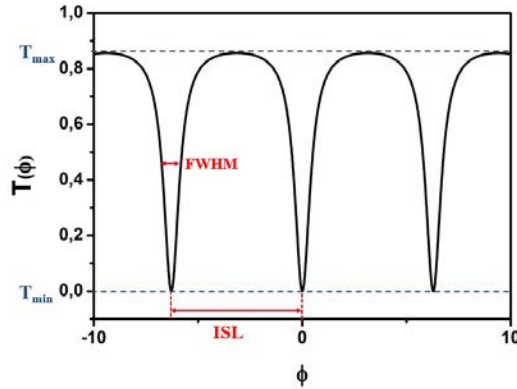


FIGURE 2.6 – Fonction de transfert d'un résonateur. ISL représente la distance entre deux pics de résonance et FWHM la largeur à mi-hauteur d'un pic.

Ce qui permet de réécrire cette fonction de transfert en fonction de la longueur d'onde :

$$T(\lambda) = \frac{|E_4|^2}{|E_1|^2} = (1 - \gamma) \frac{K^2 + A^2 - 2AK \cos\left(\frac{2\pi n_{eff} L_{MC}}{\lambda}\right)}{1 + A^2 K^2 - 2AK \cos\left(\frac{2\pi n_{eff} L_{MC}}{\lambda}\right)} \quad (2.17)$$

On peut déduire de l'équation (2.15) les valeurs maximales et minimales de transmission, et les phases pour lesquelles elles ont lieu :

$$\begin{cases} T_{max} &= T(\phi = 2m\pi + \pi) &= \frac{K^2 + A^2 + 2AK}{1 + A^2 K^2 + 2AK} \\ T_{min} &= T(\phi = 2m\pi) &= \frac{K^2 + A^2 - 2AK}{1 + A^2 K^2 - 2AK} \end{cases} \quad (2.18)$$

Les minima de transmission ont lieu pour les phases correspondant à des longueurs d'ondes couplées dans le résonateur. Les longueurs d'onde résonantes vérifient donc :

$$\phi_{res,m} = 2m\pi \Leftrightarrow \frac{2\pi n_{eff} L_{MC}}{\lambda_{res,m}} = 2m\pi \quad (2.19)$$

Ce qui peut être simplifié en une expression très naturelle qui traduit le fait que les longueurs d'ondes résonantes sont des diviseurs de la longueur optique de la cavité :

$$n_{eff} L_{MC} = m \lambda_{res,m} \quad (2.20)$$

On cherche maintenant à déterminer l'écart en longueur d'onde entre deux résonances, appelé intervalle spectral libre (*ISL*). On applique la condition de résonance (2.20) à deux ordres m et $m + 1$ consécutifs, soit :

$$\lambda_{res,m} = \frac{n_{eff} L_{MC}}{m} \quad ; \quad \lambda_{res,m+1} = \frac{n_{eff} L_{MC}}{m+1} \quad (2.21)$$

La distance entre deux résonances se notera alors :

$$\lambda_{res,m} - \lambda_{res,m+1} = ISL = \frac{n_g L_{MC} (m + 1 - m)}{m(m + 1)} \quad (2.22)$$

Où n_g est l'indice effectif de groupe. En effet, comme l'indice effectif dépend de la longueur d'onde, il faut tenir compte de la dispersion, avec $n_g = n_{eff} - \lambda \frac{\partial n_{eff}}{\partial \lambda}$ [34]. Avec $m \gg 1$ et $L_{MC} \gg \lambda$, l'approximation $\frac{1}{m} \approx \frac{1}{m+1}$ permet de reformuler l'expression précédente en :

$$ISL = \frac{n_g L_{MC}}{m^2} \quad (2.23)$$

Enfin, en considérant que deux longueurs d'ondes résonantes consécutives $\lambda_{res,m}$ et $\lambda_{res,m+1}$ sont très proches l'une de l'autre, et en les considérant égales à une longueur

d'onde d'excitation λ_0 , on peut réécrire la condition de résonance $n_g L_{MC} = m\lambda_0 \Leftrightarrow m = \frac{n_g L_{MC}}{\lambda_0}$, qui, injectée dans l'équation (2.23), donne la relation conventionnelle suivante pour l'ISL dans la littérature :

$$ISL = \frac{\lambda_0^2}{n_g L_{MC}} \quad (2.24)$$

La largeur à mi-hauteur d'un pic de résonance (FWHM full width at half maximum) peut être calculée en résolvant l'équation suivante, qui donnera deux solutions λ_1 et λ_2 dont la différence $\Delta\lambda$ est par définition égale à la largeur à mi-hauteur.

$$T(\lambda) = (1 - \gamma) \frac{K^2 + A^2 - 2AK \cos\left(\frac{2\pi n_g L_{MC}}{\lambda}\right)}{1 + A^2 K^2 - 2AK \cos\left(\frac{2\pi n_g L_{MC}}{\lambda}\right)} = \frac{1}{2} [T_{min} + T_{max}] \quad (2.25)$$

La résolution de cette équation donne lieu à une expression reliant λ_1 et λ_2 :

$$\left(\frac{1}{\lambda_1} - \frac{1}{\lambda_2}\right) \beta L_{MC} = \left(\frac{\lambda_2 - \lambda_1}{\lambda_1 \lambda_2}\right) \beta L_{MC} = 2 \text{Arccos}\left[\frac{2AK}{1 + A^2 K^2}\right] \quad (2.26)$$

En considérant que $\lambda_2 - \lambda_1 \ll \lambda_1$ et λ_2 , l'approximation $\lambda_1 \lambda_2 = \lambda^2$ nous fixe :

$$\left(\frac{\Delta\lambda}{\lambda^2}\right) \beta L_{MC} \approx 2 \text{Arccos}\left[\frac{2AK}{1 + A^2 K^2}\right] \quad \text{soit} \quad FWHM = \Delta\lambda \approx \frac{\lambda^2}{\pi n_g L_{MC}} \text{Arccos}\left[\frac{2AK}{1 + A^2 K^2}\right] \quad (2.27)$$

A partir des expressions de l'ISL et de FWHM, on définit la finesse \mathcal{F} propre aux résonances du résonateur :

$$\mathcal{F} = \frac{ISL}{FWHM} = \frac{\pi}{\text{Arccos}\left[\frac{2AK}{1 + A^2 K^2}\right]} \quad (2.28)$$

Une autre grandeur associée à une cavité résonante est son facteur de qualité Q . Cette grandeur est définie comme le rapport entre l'énergie présente dans le résonateur E_{sto} et l'énergie dissipée par cycle ΔE_{cycl} ; dans ce cadre, il obéit à la relation suivante [31] :

$$Q = 2\pi \frac{E_{sto}}{\Delta E_{cycl}} \quad (2.29)$$

Ce facteur de qualité mesure en quelque sorte la précision de la résonance et peut donc aussi être défini comme le rapport entre une fréquence de résonance et la largeur à mi-hauteur du pic qui lui est associé. On obtient donc une autre définition équivalente pour le facteur de qualité :

$$Q = \frac{\lambda}{FWHM} = \frac{\pi n_g L_{MC}}{\lambda \text{Arccos}\left[\frac{2AK}{1 + A^2 K^2}\right]} \quad (2.30)$$

2.4 Le micro-résonateur photonique pour des applications capteurs

Nous avons vu dans les sections précédentes que les conditions de résonance d'un micro-résonateur photonique dépendent de ses caractéristiques opto-géométriques, non seulement en ce qui concerne le cœur du guide, mais aussi les gaines par le biais de l'onde évanescente. Dans le cas où les caractéristiques opto-géométriques de la gaine du guide varient, les conditions de résonances varieront aussi, ce qui permet de suivre d'éventuelles réactions physiques, chimiques ou biologiques ayant lieu dans la gaine, ou de détecter des espèces chimiques en particulier. Pour ce faire, le résonateur est intégré sur une puce ; ainsi le cœur du guide et la gaine inférieure ont des propriétés de guidage fixes, et le rôle de la gaine supérieure est alors rempli soit par l'air, soit par une solution quelconque dans laquelle le résonateur peut être immergé. De ce fait, les modifications des conditions de guidage seront directement reliées à des variations dans les propriétés de guidage de la gaine supérieure qui elles, sont liées aux propriétés physiques et à la composition de cette gaine. La queue évanescente joue le rôle d'une sonde optique localisée spatialement et résonante.

2.4.1 Modes de détection

L'utilisation de ce type de structures résonantes pour de la détection peut s'effectuer de deux manières : la détection homogène et la détection surfacique [36].

Détection homogène

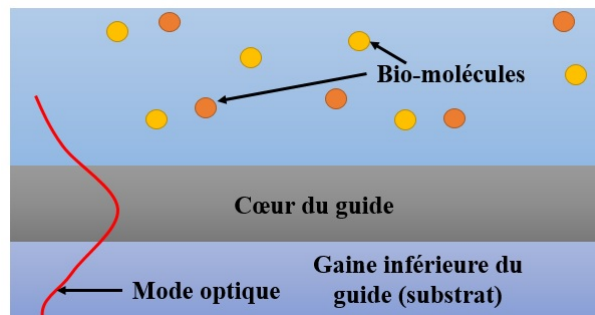


FIGURE 2.7 – Représentation schématique du mode de détection homogène.

Dans le cas de la détection homogène (schématisée figure 2.7), le résonateur est immergé dans le milieu à étudier ; c'est l'interaction de l'onde évanescente avec ce milieu qui modifie les conditions de résonance du capteur. Notamment, une modification de l'indice optique de la solution se répercute tout d'abord sur la valeur propre du système complet, puis sur toutes les caractéristiques mesurables du spectre : l'intervalle spectral libre, la largeur à mi-hauteur, la finesse et le facteur de qualité.

Détection surfacique

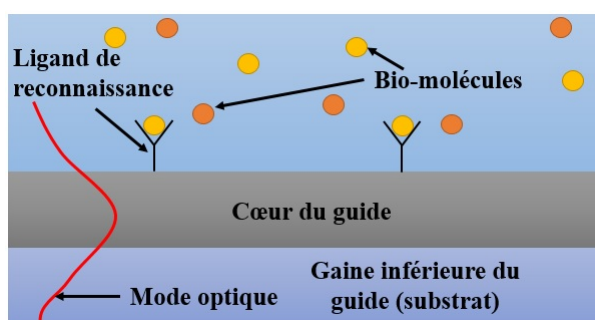


FIGURE 2.8 – Représentation schématique du mode de détection surfacique.

La détection surfacique (schématisée en figure 2.8), quant à elle, est spécialement utilisée dans la détection d'espèces chimiques et biologiques spécifiques présentes dans un fluide. Pour ce faire, la surface du résonateur doit être fonctionnalisée en greffant des ligands de reconnaissance sur lesquelles les espèces à détecter vont se fixer ; il est donc possible de sélectionner uniquement les molécules à détecter dans la solution.

Comparaison

Dans le cas d'application à la détection d'espèces chimiques ou biologiques, la détection homogène ne permet pas de discriminer l'effet des différentes espèces présentes dans la solution sur le signal résonant, contrairement à la détection surfacique. Cependant, cette méthode permet d'étudier des classes de phénomènes plus variés que la détection d'espèces chimiques, notamment des phénomènes physiques globaux qui concernent la totalité de la gaine supérieure. De plus, sa mise en œuvre est facilitée par le fait qu'il n'y a pas besoin de fonctionnaliser la surface du capteur.

C'est cette méthode homogène qui sera utilisée au cours des expériences menées tout au long de ce travail de recherche, dans le but d'étudier des phénomènes physiques et processus issus de la matière molle, ne mettant pas en jeu la détection d'espèces ciblées.

2.4.2 Modes d'utilisation

Une fois les structures résonantes fabriquées, elles doivent être incorporées à un banc optique pour procéder aux mesures. Pour ce faire, il existe plusieurs stratégies possibles à adopter, qui vont influencer sur le choix du matériel et des équipements.

Suivi de l'intensité à une longueur d'onde fixe

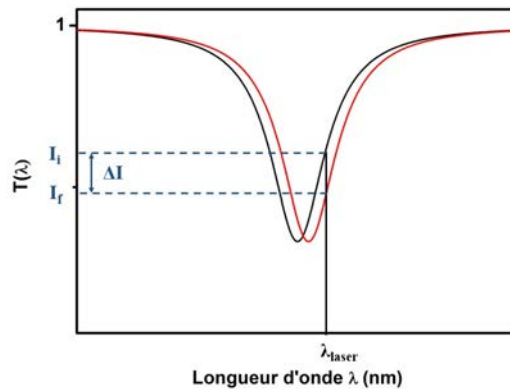


FIGURE 2.9 – Graphe représentant un pic de résonance pour deux conditions de guidage ; une condition initiale (en noir) et une finale (en rouge). La mesure de l'intensité transmise par la structure résonante à une longueur d'onde fixe permet de discriminer ces deux conditions.

La première méthode d'utilisation de ces micro-résonateurs sur un banc optique consiste en un suivi de l'intensité transmise à une longueur d'onde fixe. Pour mettre en œuvre cette méthode, il est nécessaire de choisir la longueur d'onde d'émission du laser de manière à ce qu'elle soit proche de la longueur d'onde de résonance soit dans la partie décroissante, soit dans la partie croissante d'un pic (voir figure 2.9). De cette manière, une modification dans les conditions de résonance induit une variation de l'intensité transmise par la structure. Cette méthode, hormis le fait qu'il faille faire en sorte que la longueur d'onde du laser utilisé soit comprise dans le pic de résonance, ne permet pas de discriminer entre les différents effets qui peuvent

influer les variations du signal résonant. En effet, une même différence d'intensité entre deux mesures peut être due à un décalage de la résonance dans le domaine des longueurs d'ondes, ou à un changement dans la forme du pic (comme par exemple une variation de la largeur à mi-hauteur).

Suivi d'un pic de résonance

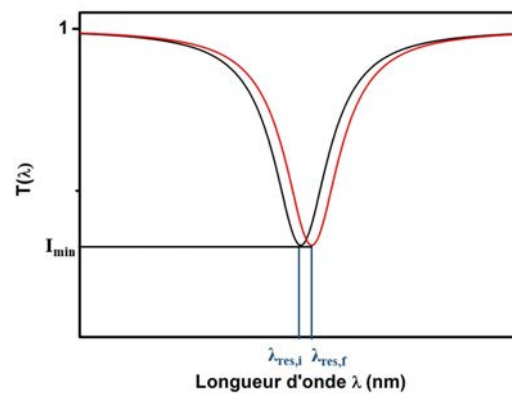


FIGURE 2.10 – Graphe représentant un pic de résonance pour deux conditions de guidage ; une condition initiale (en noir) et une finale (en rouge). L'utilisation d'un laser accordable permet de mesurer l'intensité transmise par la structure en fonction de la longueur d'onde sur un pic de résonance complet ; de cette manière, il est possible d'extraire la longueur d'onde de résonance ainsi que la largeur du pic.

Une autre méthode consiste en l'utilisation d'un laser accordable dont l'accordabilité s'étend sur un pic de résonance complet. De ce fait, il est possible de scanner la totalité du pic de résonance et d'en extraire la longueur d'onde de résonance (voir figure 2.10) et la largeur à mi-hauteur. Cependant, cette méthode ne permet pas d'étudier des phénomènes dépendants du temps si le temps de scan du laser est trop long. En effet, si le temps caractéristique du phénomène étudié est du même ordre de grandeur ou inférieur au temps de scan du laser, il n'est pas possible de résoudre la mesure en temps.

Suivi de plusieurs résonances

La dernière méthode que nous allons évoquer ici, nécessite cette fois l'utilisation d'un laser à large bande ; ainsi, plusieurs résonances seront excitées à la fois.

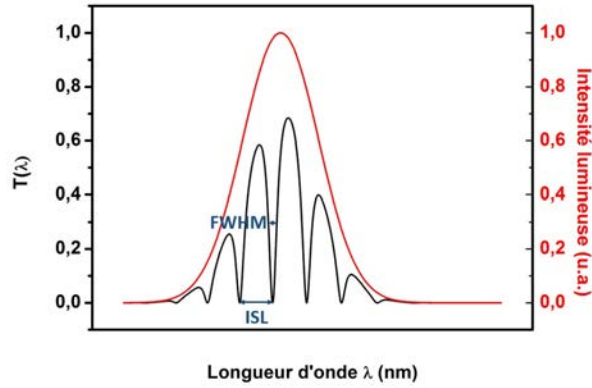


FIGURE 2.11 – Spectre mesuré (en noir) et profil d’intensité du laser large bande (en rouge). L’utilisation d’un laser large bande permet la mesure simultanée de plusieurs pics de résonance, ce qui permet d’avoir accès aux différentes longueurs d’onde résonantes ainsi qu’à la largeur de leur pic. La mesure simultanée de plusieurs pics de résonance permet aussi de déduire la dispersion en longueur d’onde de l’indice effectif du mode.

Il est alors possible d’extraire directement l’intervalle spectral libre, la largeur à mi-hauteur, les longueurs d’ondes résonantes et permet éventuellement de remonter à la dispersion de l’indice effectif n_{eff} , c’est à dire de déduire l’indice de groupe du mode $n_g = n_{eff} - \lambda \frac{\partial n_{eff}}{\partial \lambda}$. Cette méthode nécessite cependant l’usage d’un analyseur de spectre optique pour mesurer la totalité du signal transmis, là où les méthodes précédentes peuvent être mises en œuvre avec un simple puissance-mètre. La résolution en temps apportée par cette méthode est donc limitée par le temps de scan de l’analyseur de spectre optique.

C’est cette méthode qui sera utilisée dans les expériences menées au cours de cette thèse dans le cadre du suivi de processus relativement lents et graduels relatifs à la matière molle comme les transitions de phases, la sédimentation, le phénomène de crémage etc.

Deuxième partie

Microtechnologies et
fabrication,
Montage et description de la
plateforme

Applications au suivi de
processus dynamiques de la
matière molle

Chapitre 3

Réalisation des micro-structures résonantes et présentation de la plateforme de tests et caractérisations

Les micro-structures photoniques résonantes utilisées lors des expérimentations ayant eu lieu au cours de ce travail de thèse sont fabriquées au sein du consortium formé ces derniers mois [50], grâce à l'utilisation de la plateforme technologique Nano-Rennes/IETR. La fabrication est réalisée par un procédé de photolithographie en salle blanche via un masque préalablement dessiné à partir d'un logiciel (Virtuoso Cadence) afin d'obtenir les circuits photoniques intégrés comprenant respectivement des guides d'ondes, des "tapers" et des éléments résonants. Une fois ces structures réalisées et intégrées sur des substrats de silicium oxydés thermiquement, ces derniers sont clivés pour être testés sur la plateforme. La première partie de ce chapitre portera sur la conception et la fabrication des circuits photoniques tandis que le montage expérimental de la plateforme et du banc de test dédiés à la caractérisation spectrale des éléments résonants seront présentés dans la deuxième partie. La troisième partie sera quant à elle consacrée à la description du programme d'acquisition et de traitement des données qui a été implémenté.

3.1 Conception et fabrication des circuits résonants

Les circuits résonants utilisés au cours des différentes expérimentations sont composés d'un guide d'accès couplé latéralement de part et d'autre à un ou plusieurs résonateurs en forme d'hippodrome. Quand plusieurs résonateurs sont couplés au même guide d'accès, ces derniers ont tous la même taille. La multiplication des résonateurs permet d'obtenir un meilleur taux d'extinction et donc une meilleure visibilité ou contraste des pics de résonances. Ainsi, la précision des mesures et le traitement des signaux en sont améliorés et facilitent les interprétations [51]. De

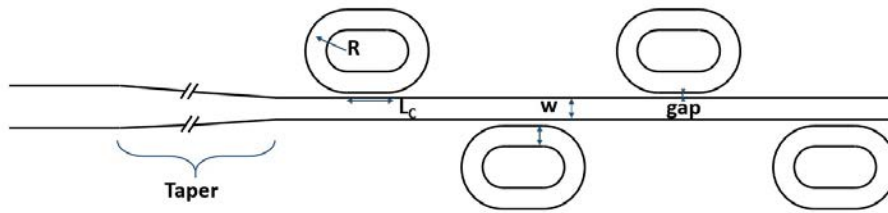


FIGURE 3.1 – Schéma des circuits photoniques. Le guide d'accès comprenant une structure "taper" est couplé latéralement de part et d'autre à des résonateurs en forme d'hippodrome ayant comme paramètre R leur rayon de courbure, L_C leur longueur de couplage et w leur largeur. La largeur w des résonateurs est égale à la largeur du guide d'accès en sortie de taper afin de maximiser le couplage. Les résonateurs sont séparés du guide d'accès par un gap de 400 nm pour des raisons physiques, des raisons technologiques de développement adéquat puis de coût.

plus, les guides d'accès comportent des structures de type "taper" afin de faciliter l'injection en amont. Des structures de plusieurs dimensions ont été conçues afin de déterminer l'influence de la taille des circuits résonants sur leurs caractéristiques spectrales et sur leurs capacités à suivre des processus issus de la matière molle. À titre d'exemples, les valeurs des paramètres R - L_C - w en micromètres avec R le rayon de courbure, L_C la longueur de couplage et w la largeur du guide sont typiquement de l'ordre de 5-5-3 et 10-10-3. Le gap séparant le guide d'accès et les résonateurs, est quant à lui d'une taille unique de 400 nm pour des raisons physiques, techniques, de développement et du prix de revient du masque. Enfin, les "tapers" ont des largeurs d'entrée de différentes tailles et peuvent converger vers les 3 μm sur une distance de 100 μm seulement afin de réaliser une compression spatiale dite adiabatique du

mode optique, et d'éviter que les interférences mutli-modes ne soient destructives en sortie de "taper". Ces structures sont schématisées Figure 3.1.

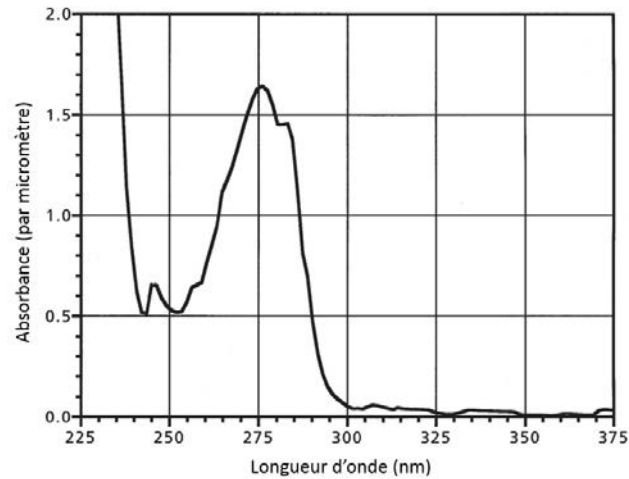


FIGURE 3.2 – Spectre d'absorption du polymère UV210. L'UV210 est absorbant dans l'UV profond et donc idéal pour la photolithographie DUV.

La réalisation de ces circuits se fait par photolithographie dans l'UV profond en salle blanche. Le matériau utilisé pour les guides d'ondes est le polymère UV210, un



FIGURE 3.3 – Photographie de la salle blanche de la plateforme NanoRennes utilisée pour la réalisation des circuits photoniques par photolithographie dans l'UV profond.

polymère composé de poly(p-hydroxystyrene) (PHS) et de poly(t-butyle acrylate) (PBA) qui absorbe les UV profonds. La figure 3.2 représente le spectre d'absorption de l'UV210. Cette caractéristique permet une lithographie UV (longueur d'onde de 248 nm) afin d'augmenter la précision de fabrication des structures par rapport

à la photolithographie “i-line” effectuée à 365 nm. De plus, il s’agit d’une résine chimiquement amplifiée (CA), qui nécessite une faible dose d’UV. Dans les résines CA, la matrice de polymère contient un générateur photo-acide (PAG, “photo-acid generator”). L’illumination de ce PAG par des UV profonds entraîne la production d’un acide qui va provoquer une cascade de réactions chimiques en chaîne. L’effet de ces réactions est de modifier les zones insolées, qui passent de l’état lipophile à l’état hydrophile. Ce changement d’état rend les régions exposées aux UV solubles dans le tetra-méthyle ammonium hydroxide (TMAH) lors du développement. L’utilisation de l’UV210 comme matériau guidant, ainsi que le choix de réaliser un couplage latéral entre le guide d’accès et les résonateurs permettent de réaliser la totalité du circuit photonique par une illumination unique. Le masque de photolithographie

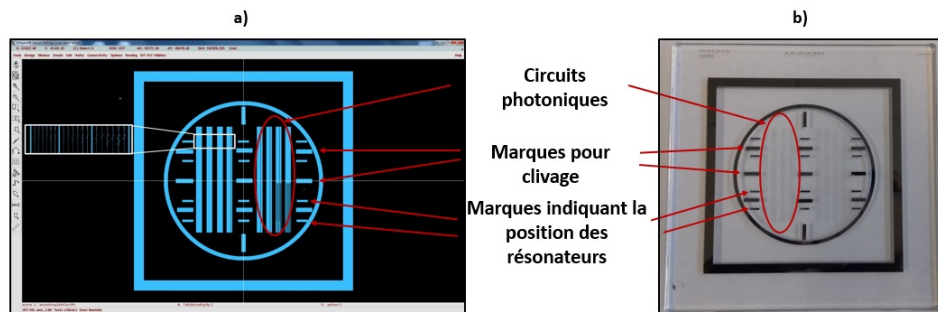


FIGURE 3.4 – a) Capture d’écran du logiciel de dessin de masques Virtuoso Cadence. b) Photographie du masque fabriqué par l’entreprise TOPPAN PHOTOMASKS Inc. Des repères ont été marqués pour la localisation des résonateurs et pour indiquer les zones à cliver.

utilisé pour la réalisation de ces circuits a été dessiné sur le logiciel Virtuoso Cadence, puis commandé à l’entreprise TOPPAN PHOTOMASKS Inc. Une capture d’écran du logiciel ainsi qu’une photographie du masque fabriqué sont présentées en Figure 3.4.

Les puces sont réalisées à partir d’un substrat de silicium (Si) commercial, sous la forme d’un wafer de 3 pouces de diamètre. Le wafer est tout d’abord nettoyé par la méthode RCA (développée par “Radio Company of America”) avant d’être placé dans un four à quartz à $1075\text{ }^{\circ}C$ pendant 3 h de manière à réaliser une oxydation thermique. Cette oxydation thermique a pour but d’obtenir une couche de SiO_2 de $1\ \mu m$ d’épaisseur en surface qui joue le rôle de gaine inférieure pour les structures guidantes et améliore l’adhésion des guides polymères déposés à la surface. La

résine UV210 est ensuite étalée à la surface du “wafer” par spin-coating avant d’être illuminée à travers le masque par une lampe à arc au mercure (HBO 1000W/D, OSRAM) équipée d’un filtre adéquat qui sélectionne la longueur d’onde de 248 nm. Enfin, le développement se fait grâce à l’hydroxide de tétraméthylammonium (Microposit MF CD-26). Les différentes étapes du procédé de photolithographie sont résumées Table 3.1, puis schématisées Figure 3.5. Une fois le procédé de photoli-

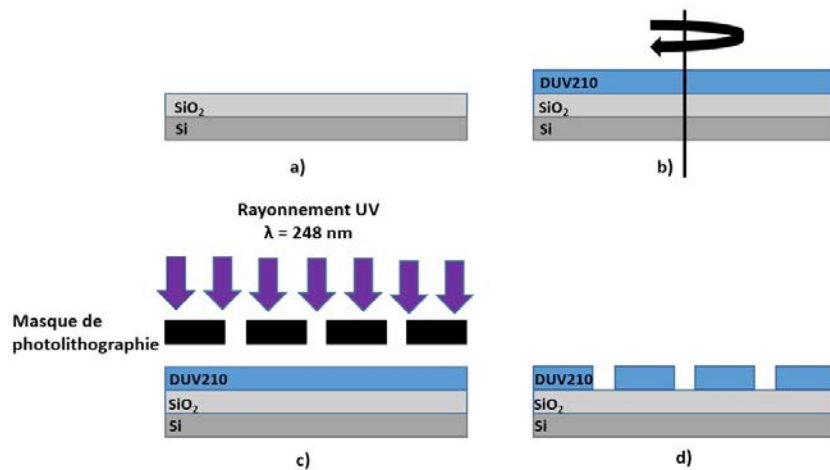


FIGURE 3.5 – Schéma représentant les différentes étapes du procédé de photolithographie. a) le substrat de silicium est oxydé thermiquement afin de créer une couche supérieure de SiO_2 de $1 \mu m$. b) la résine UV210 est déposée sur le substrat par la méthode de spin-coating afin d’obtenir une couche de 800 à 900 nm. c) le masque est placé et l’illumination UV à 248 nm est effectuée via une lampe à arc au mercure associée à un filtre adéquat. d) le développement est réalisé quant à lui par le biais d’hydroxide de tétraméthylammonium afin d’éliminer la résine ayant été illuminée par la lampe UV.

thographie exécuté, les wafers peuvent être clivés grâce à une pointe diamant afin d’obtenir par exemple des puces d’environ 4 cm x 1 cm (voir Figure 3.7). Un contrôle est ensuite réalisé au microscope optique afin de vérifier la qualité des puces ainsi obtenues, avant de les incorporer à la plateforme de caractérisation dont la composition sera détaillée dans la section suivante. La technique de photolithographie dans l’UV profond (248 nm) rendue possible par l’utilisation de la résine UV210 permet la fabrication de structures adéquates aux applications visées dans le travail de thèse. D’autres circuits ont également été dessinés sur le masque de photolithographie, comme par exemple des résonateurs à fente. La Figure 3.6 b) représente une

Étapes	Paramètres
Spin-coating	$v = 900 \text{ rpm}$, $a = 5000 \text{ rpm/s}$, $t = 30 \text{ s}$, $\text{épaisseur} = 800 \text{ nm}$, $\text{roughness} < 3 \text{ nm}$
Recuit	$t = 3 \text{ min}$, $T = 140 \text{ }^\circ\text{C}$
Illumination deep-UV	$E = 20 \text{ mJ/cm}^2$, $t = 27 \text{ s}$
Recuit post-illumination	$t = 1 \text{ min}$, $T = 120 \text{ }^\circ\text{C}$
Développement	$t = 30 \text{ s}$ avec Microposit MF CD-26
Recuit final	$t = 12 - 14 \text{ h}$, $T = 120 \text{ }^\circ\text{C}$

TABLE 3.1 – Procédure de fabrication des circuits intégrés (v : vitesse, a : accélération, t : temps, T : température, E : énergie d’exposition)

photographie de la surface du wafer où ces structures à fentes (“slot waveguides”) ont été intégrées. Ces dernières présentent un gap d’air de 400 nm au sein même des résonateurs. Les études sur ces structures seront présentées plus en détail dans l’annexe 3.

3.2 Plateforme expérimentale et description des équipements pour la caractérisation des structures résonantes

Afin de tester puis de réaliser les expérimentations à l’aide de tels circuits résonants, ces derniers sont incorporés à la plateforme puis caractérisés. Comme évoqué précédemment au Chapitre 2, le mode d’utilisation des résonateurs choisi pour mener les expériences consiste à suivre l’ensemble des résonances simultanément. Pour cela, il est nécessaire d’utiliser un laser large bande par ailleurs moins coûteux qu’un laser accordable. Dans notre cas, il peut s’agir par exemple d’une diode laser fibrée monomode Superlum SLD 331 HP3 de longueur d’onde centrale d’émission $\lambda_0 = 795 \text{ nm}$ et de largeur à mi-hauteur $\Delta\lambda = 40 \text{ nm}$. Le spectre en émission de ce laser est présenté en Figure 3.8. Le mode laser est ensuite polarisé de manière à sélectionner les modes TE_{00} ou TM_{00} des guides d’ondes, puis un isolateur sera placé derrière ce polariseur évitant ainsi les réflexions retour. L’injection dans le guide d’accès se fait à l’aide d’objectifs de microscope ; le mode optique en sortie

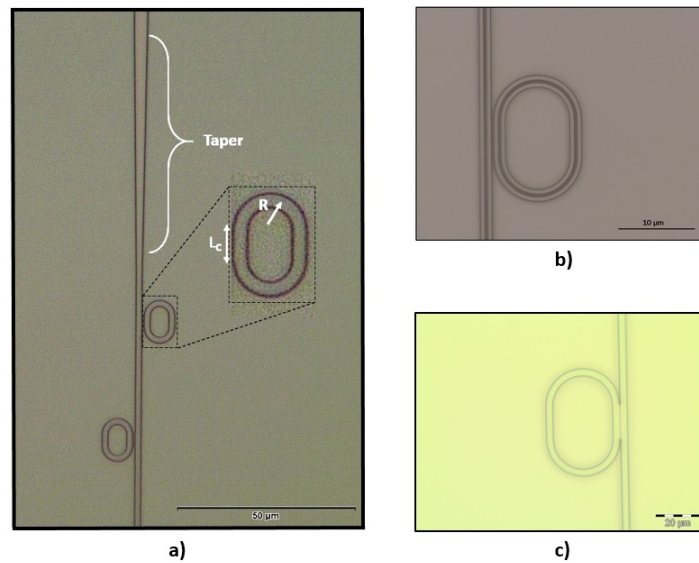


FIGURE 3.6 – Photographies de la surface de la puce par microscope optique. La photographie a) montre un circuit tel que décrit précédemment comportant une structure “taper” et deux résonateurs couplés de part et d’autre du guide d’accès. Ces résonateurs sont séparés du guide d’accès de 400 nm. La photographie b) représente un autre type de résonateur et de guide d’accès qualifié de guide à fente “slot waveguide”. Dans ce type de structure, une fente est présente au milieu du guide (ici de 400 nm) et prouve la précision atteinte par une telle lithographie dans l’UV profond au sein même de la matière. Ces structures seront étudiées plus en détail dans l’annexe C. La photographie c) quant à elle représente un résonateur couplé à un guide d’accès pour lequel le développement est imparfait. En effet, le gap séparant le résonateur du guide n’est pas présent, le résonateur est en quelque sorte collé au guide.

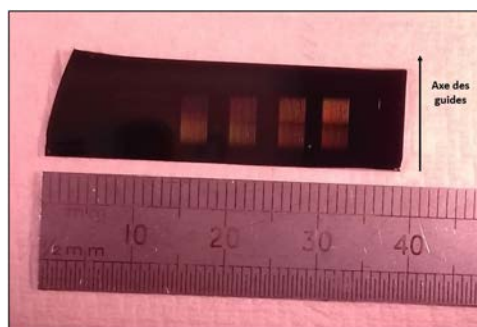


FIGURE 3.7 – Photographie de la puce après clivage. On peut distinguer les guides d’ondes le long de l’axe optique ou propagatif.

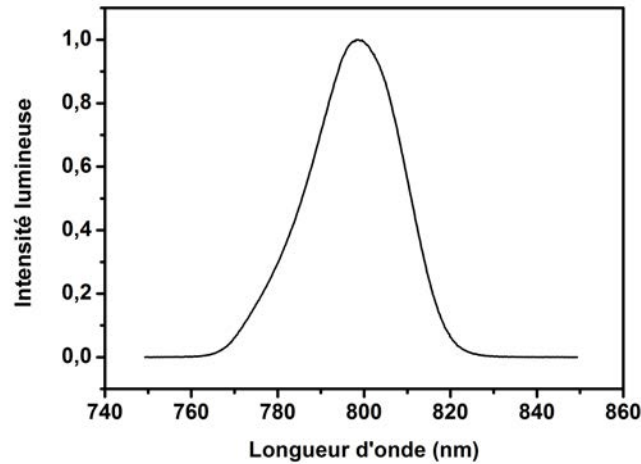


FIGURE 3.8 – Spectre de la diode laser Superlum SLD 331 HP3 dont la longueur d’onde centrale d’émission est de 795 nm et la largeur à mi-hauteur est de 40 nm. L’intensité est normalisée par rapport à l’intensité maximale du spectre.

de puce est lui aussi récupéré par un objectif de microscope. Ces deux objectifs de microscope, ainsi que le support de la puce sont montés sur des nano-positionneurs piézoélectriques (PI E-563I.3) afin d’injecter avec le plus de précision possible lors des mesures finales. Le support de la puce est aussi relié à un module Peltier de manière à contrôler la température des circuits.

Le mode en sortie de puce, après défocalisation par l’objectif de microscope, est envoyé vers un cube séparateur dirigé d’une part vers une caméra CCD (Pul-Nix) pour visualiser l’injection (voir Figure 3.10), et d’autre part vers un analyseur de spectre optique (par exemple ASO Ando AQ-6315E) pour le suivi des caractéristiques spectrales et résonantes des modes. Deux caméras, une pour la vue de dessus puis une pour une vision transversale sont associées au montage. La Figure 3.12 représente une photographie (vue de dessus) de la puce sous injection, pour une structure de type $R - LC - w$ 5-5-3.

L’ASO est contrôlé à distance via un code Matlab qui permet de définir la taille de la fenêtre de travail, puis d’acquérir successivement à une fréquence d’acquisition fixée les spectres optiques dans un fichier .txt. La Figure 3.13 représente un spectre acquis de cette manière, dans le cas où le circuit résonant comporte quatre résonateurs dont les dimensions $R-LC-w$ sont de 5-5-3 (en μm). Un autre programme permet quant à

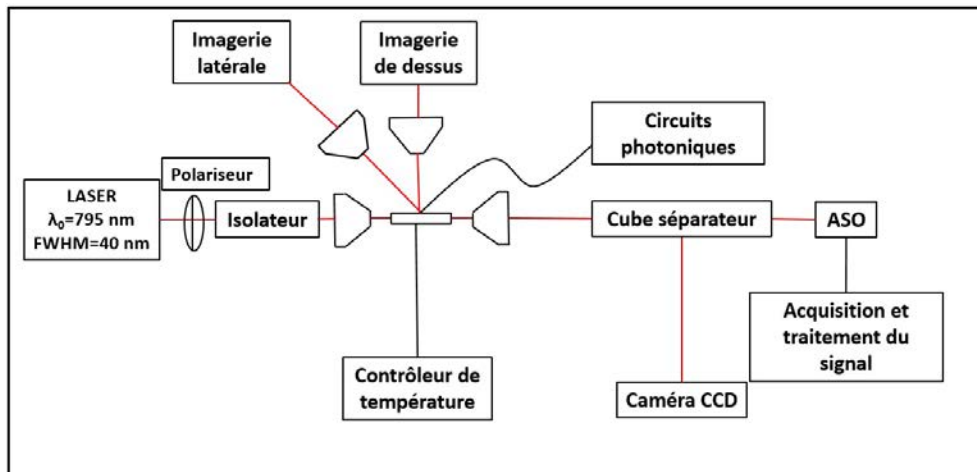
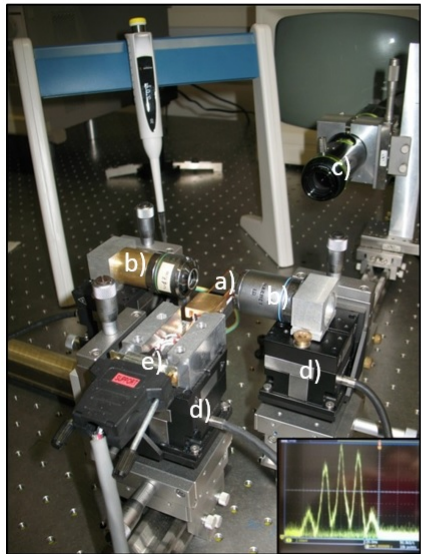


FIGURE 3.9 – Schéma du montage optique. Une diode laser fibrée large bande de longueur d'onde centrale d'émission de 795 nm et de largeur de 40 nm est utilisée pour exciter les résonances photoniques. Le mode optique est tout d'abord polarisé afin de n'exciter qu'un mode (TE_{00} par exemple) et un isolateur est ensuite placé en amont des circuits intégrés pour éviter les réflexions qui peuvent détériorer le laser. L'injection dans le circuit photonique ainsi que la défocalisation sont opérées par des objectifs de microscope ; le spot en sortie de structures est dirigé d'une part vers une caméra CCD et d'autre part vers un analyseur de spectre optique par le biais d'un cube séparateur. Le montage expérimental comporte aussi une caméra de dessus et une caméra latérale, ainsi qu'un module Peltier pour le contrôle en température de la puce.



FIGURE 3.10 – Photographie de l'écran relié à la caméra CCD pour l'injection. On y voit le mode TE_{00} en sortie de guide d'onde.

lui d'extraire l'Intervalle Spectral Libre (ISL) et la largeur à mi-hauteur ("FWHM") à partir des spectres précédemment acquis. L'extraction de la pseudo période ISL se fait par un calcul de transformée de Fourier rapide. La valeur maximale de la transformée de Fourier est extraite par interpolation Lagrangienne. Dans le cas des structures 5-5-3, la valeur de l'ISL est de 8.73 nm. À partir de la formule (2.24), il est possible de déduire l'indice effectif total de groupe du mode $n_g^{tot} = 1.98$. On remarque que la valeur de l'indice effectif est supérieure à l'indice du matériau UV210 qui constitue le guide d'onde. En effet, la valeur de n_g^{tot} prend en compte les différents phénomènes de dispersion modale. Un développement de Taylor-Lagrange au premier ordre est suffisant pour décrire convenablement la dispersion modale. La valeur de l'indice effectif total de groupe s'écrit alors $n_g^{tot} = n_{eff}^g(\lambda_0) + \lambda \left[\frac{\partial n_{eff}^{phase}}{\partial \lambda}(\lambda_0) \right]$, avec $n_{eff}^g(\lambda_0) = n_{eff}^{phase}(\lambda_0) - \lambda_0 \left[\frac{\partial n_{eff}^{phase}}{\partial \lambda}(\lambda_0) \right]$. Cet indice effectif total de groupe n_g^{tot} correspond mathématiquement à la valeur propre de la structure photonique résonante dans son ensemble. Cet ensemble tient compte de la dispersion du matériau projeté et inclus dans la dispersion modale relatif aux équations aux valeurs propres non-linéaires. De plus, le rayon de courbure du guide au sein du microrésonateur a un effet sur l'indice effectif du mode. En effet, par une transformation conforme, il est possible de montrer que le comportement d'un guide courbé composé d'un matériau comportant un indice optique uniforme est équivalent à un guide droit dont le profil d'indice est plus fort d'un côté du guide que de l'autre (il est plus fort du côté correspondant au rayon extérieur du guide courbé). Au cours de la propagation dans un guide courbé, le mode optique est donc déporté vers l'extérieur



a) Puce comportant les circuits photoniques

b) Objectifs d'injection et défocalisation

c) Caméra latérale

d) Nano-positionneurs piézoélectriques

e) Module Peltier

FIGURE 3.11 – Photographie du dispositif d'injection. Deux objectifs de microscopes sont utilisés pour l'injection et la défocalisation du mode optique en sortie de structures, la puce photonique et son support, ainsi que le module Peltier, les nano-positionneurs piézoélectriques et la caméra latérale.

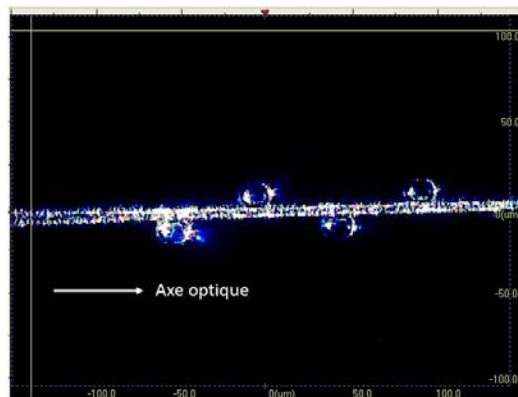


FIGURE 3.12 – Photographie vue de dessus de la puce sous injection. Le mode optique se propage de la gauche vers la droite. Il est compressé spatialement par la fin de la structure “taper” (à gauche) et est couplé aux résonateurs situés de part et d’autre du guide d’accès.

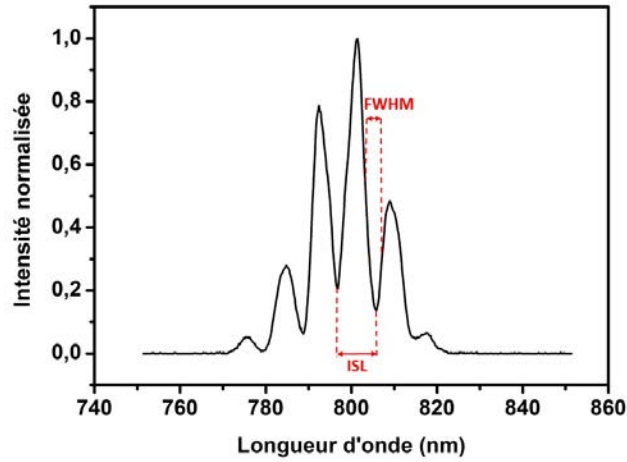


FIGURE 3.13 – Spectre en transmission d’un résonateur de dimensions $R-L_C-w = 5-5-3 \mu m$. L’ISL (Intervalle Spectral Libre) est la distance entre deux résonances du spectre et FWHM (Full Width at Half Maximum) représente la largeur à mi-hauteur des pics de résonance.

de manière analogue à une force centrifuge et l’indice effectif du mode augmente ; cette augmentation peut être donnée par [52] :

$$\Delta n \approx \frac{n_{UV210} \cdot w}{2} \cdot \frac{1}{R} \quad (3.1)$$

ce qui, avec les valeurs qui nous concernent, donne une augmentation de l’indice de $\Delta n = 0.47$. La largeur à mi-hauteur des résonances peut aussi être extraite de la Figure 3.13 ; dans ce cas ci, $FWHM = 4.05 nm$. Ces deux valeurs ISL et FWHM permettent d’ailleurs de déduire la finesse et le facteur de qualité de la structure à partir des équations (2.28) et (2.29). On obtient $\mathcal{F} = 2.15$ et $Q = 196.3$. Ces valeurs d’apparence faible sont suffisantes pour les applications développées dans la suite, notamment dans le cadre de suivi de processus issus de la matière molle.

3.3 Acquisition et traitement de l’information ; codes Matlab

L’analyse et le traitement des données spectrales sont réalisés via des programmes informatiques développés sur Matlab grâce à notre collaboration avec des étudiants ingénieurs stagiaires de l’école Centrale/Supélec du Campus de Rennes au sein du consortium. L’analyseur de spectres optiques (ASO) vers lequel est dirigé le signal

transduit par la structure photonique est ainsi commandé par un premier code Matlab. Pour ce faire, une connexion GPIB est établie entre l'ordinateur sur lequel est présent le programme et l'ASO. Cette connexion permet, via une application dédiée, de définir la taille de la fenêtre d'acquisition des spectres, ainsi que le nombre de spectres à acquérir. Une fois cette opération effectuée, les spectres sont acquis et enregistrés dans un fichier .txt. Ce fichier répertorie les spectres, ainsi que l'instant auquel ils ont été acquis (heure :minute :seconde) afin d'étudier l'évolution temporelle et la dynamique des caractéristiques de tels spectres. Le traitement des données spectrales se fait lui aussi via un script Matlab, qui extrait différents paramètres à partir des fichiers .txt précédemment acquis. Le premier paramètre extrait concerne la pseudo-période ou Intervalle Spectral Libre (ISL). Comme expliqué précédemment, elle caractérise donc la distance entre deux résonances dans le domaine spectral. Afin d'extraire ce paramètre, l'outil mathématique préférentiel sera la transformée de Fourier (FFT). Le résultat de cette opération mathématique est une fonction représentant un pic de largeur non nulle qui a pour abscisse la longueur d'onde correspondant à l'ISL. Cette opération étant menée sur des spectres discrets, le résultat l'est aussi ; le point ayant la plus grande intensité dans la transformée de Fourier discrète n'est donc pas nécessairement le sommet "réel" du pic. Afin de déterminer ce sommet réel avec le plus de précision possible, il est approximé par un polynôme d'ordre 2 (interpolation de type Lagrangienne). Pour cela, à partir des trois points autour de la valeur maximale du pic de la FFT, une interpolation de Lagrange d'ordre 2 est réalisée dans le but d'extraire le sommet de la parabole approximant le pic. La largeur à mi-hauteur (FWHM) des pics de résonances est aussi extraite par ce programme. Pour cela, la première étape est tout d'abord de localiser de manière automatique les minima puis maxima locaux afin de déterminer l'emplacement des pics de résonances au sein du domaine spectral. Cette localisation des extrema se fait par un calcul de différentielle ; le FWHM est ensuite extrait pic par pic. Cependant, le spectre d'émission du laser ayant une forme gaussienne, les extrema ne sont pas disposés et alignés horizontalement ; il est donc nécessaire d'effectuer une correction afin de calculer ce paramètre FWHM avec le plus de précision possible. Pour cela, chaque pic de résonance est analysé comme suit : une droite passant par deux sommets successifs est calculée, une deuxième droite parallèle à

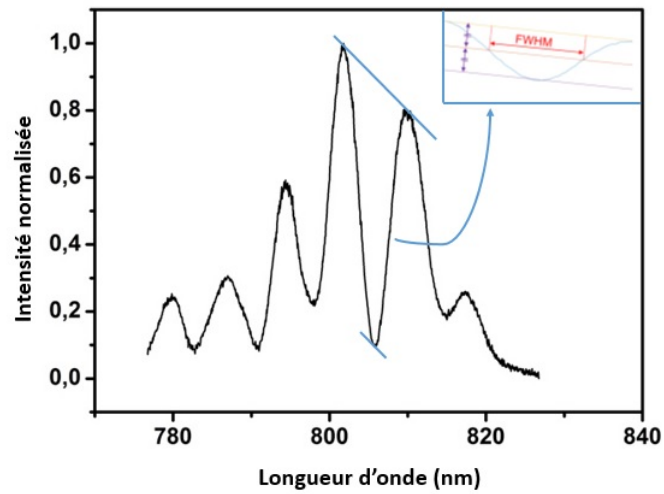
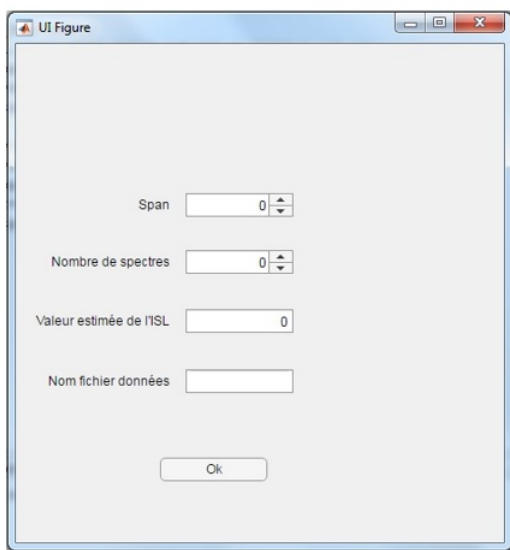
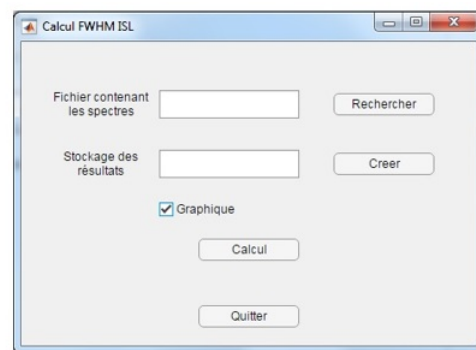


FIGURE 3.14 – Méthodologie de calcul de la largeur à mi-hauteur (FWHM). La forme gaussienne du spectre du laser est prise en compte pour le calcul de la largeur à mi-hauteur du pic de résonance.

la première est placée au minimum du pic ; une troisième droite parallèle et placée à équidistance des deux premières permet de déterminer le FWHM 3.14. Afin de faciliter l'utilisation de ces programmes d'acquisition et de traitement des signaux et données spectrales, des interfaces homme-machines ont été élaborées 3.15. Ces programmes ainsi créés sont associées aux dépôts de brevets concernant l'application à la sédimentation et au crémage [53–55]. Une fois l'ISL et le FWHM extraits par cette méthode, ils sont reportés dans un logiciel de tracé de graphiques (Origin) en fonction soit du temps soit d'un autre paramètre (comme la température).



a)



b)

FIGURE 3.15 – Interface homme-machine relative au traitement des signaux a) acquisition des données b) et traitement mathématique des données.

Chapitre 4

Mise en oeuvre expérimentale de la plateforme de tests pour des applications en métrologie fine des processus de la matière molle

Dans ce chapitre, nous investiguons les possibilités offertes par les structures photoniques décrites dans les chapitres précédents, notamment dans le cadre d'applications à la métrologie fine et à la santé. Ces micro-technologies intégrées offrent différents avantages dans ce cadre, notamment du fait de leur sensibilité, de leur facilité de fabrication, de leur faible coût, de leur transportabilité en systèmes intégrés, ainsi que de la possibilité d'intégration directe sur une chaîne de production industrielle pour un suivi en temps réel des caractéristiques du produit aux différentes étapes de production (qualifié de "on-live"/"on-line"). La connaissance de l'évolution des caractéristiques de certains produits est primordiale dans différents secteurs industriels, à la fois pour des raisons économiques et sanitaires, notamment dans les secteurs du biomédical, de l'agroalimentaire, de la cosmétique et de la pharmacologie galénique. La mise en oeuvre de ce type de mesures peut

concerner à la fois, la détection de substances dans un fluide, des mesures de changement d'état/transition de phase, de changements morphologiques d'organisation structurale à l'échelle moléculaire, les vitesses de sédimentation ou de crémage, la surveillance du taux d'humidité, le vieillissement et la qualité des produits, ou encore dans des mesures différentielles de perte de masse. Ces capteurs à base de matériaux plastiques pourrait ainsi apporter des possibilités d'investigations dans les laboratoires de recherche et d'analyse, notamment dans les domaines de la biologie pour le suivi des caractéristiques de composés organiques dans différentes conditions (température, humidité...), du diagnostic médical, comme par exemple pour le test de mesure de vitesse de sédimentation des globules rouges ou hématies dans le sang et dans la surveillance de contaminants polluants comme les métaux lourds [39, 40].

La première section de ce chapitre portera sur le suivi de la dynamique de condensation/évaporation de vapeur d'eau (incluant ainsi le mécanisme de coalescence de micro-gouttes). Cette section a pour but de valider la résistance du capteur à des modifications brutales de conditions de fonctionnement notamment en température et en propriétés optiques de la gaine supérieure de la structure guidante [56]. La seconde sera consacrée au suivi dynamique puis à l'étude de l'évaporation d'une goutte sessile d'eau, ce qui amènera incontestablement à des considérations concernant la possibilité d'utilisation de résonateurs photoniques comme micro-balance optique résonante [57]. La troisième section quant à elle portera sur l'étude des phénomènes de sédimentation (chute de particules solides dans un fluide de plus faible densité) et de crémage (ségrégation de deux espèces liquides non miscibles, au cours du temps) [54, 55]. Enfin, la quatrième section sera consacrée au suivi en direct via les paramètres spectraux résonants d'une transition de phase morphologique d'acides gras utilisés en cosmétique et agroalimentaire en fonction de la température [58].

4.1 Suivi du phénomène de condensation/évaporation d'eau

La première application expérimentale réalisée lors de ce travail de thèse consiste à suivre le signal en sorti de puce au cours de la condensation de vapeur d'eau provoqué par un souffle ou une expiration humaine, puis de son évaporation. La mise

en œuvre de la plateforme a pour objectif de soumettre la puce à des changements de conditions de guidage et de résonance brutales afin de déterminer la résistance du capteur. En effet, afin de provoquer cette condensation, il est nécessaire de diriger un courant d'air chaud et humide en direction de la puce. Cette dernière est alors soumise à un changement de température brutal ainsi qu'à un changement des conditions de guidage du fait de la modification des caractéristiques opto-géométriques de la structure guidante. Lors de cette expérience, les spectres sont acquis toutes les secondes. Quelques secondes après le début de l'acquisition, un courant d'air chaud saturé en humidité est dirigé vers la puce par une expiration. Le contact de cet air chaud saturé en eau avec une surface plus froide (la puce), provoque la condensation d'une partie de l'eau contenue dans ce souffle d'air. Une fois l'eau condensée sur la surface de la puce, elle s'évapore progressivement et spontanément. Après évaporation complète, l'acquisition des spectres s'est poursuivie pendant quelques secondes afin s'assurer du retour à l'état initial du résonateur. La Figure 4.1 représente les photographies de la surface de la puce extraites du film correspondantes à différentes étapes du processus de condensation et d'évaporation. Les Figures 4.1 a) et 4.1 d) montrent l'état initial et l'état final, c'est à dire avant que la buée n'apparaisse, et après qu'elle se soit totalement évaporée. Les Figures 4.1 b) et 4.1 c) quant à elles montrent respectivement l'eau en phase de condensation puis la coalescence. Le phénomène est le suivant : l'eau se condense sur une surface en formant des petites gouttes qui coalescent ensuite pour devenir de plus en plus grosse afin de diminuer l'énergie de surface et d'évoluer vers une configuration plus stable. Le phénomène de coalescence dans notre cas se produit trop rapidement et n'est pas étudié par notre plateforme de tests. Par contre, le suivi de la dynamique du mécanisme macroscopique global d'évaporation est bien établi et caractérisé par notre plateforme. Les Figures 4.2 a) et 4.2 b) représentent des spectres acquis à différents instants au cours de ce processus, pour deux géométries de structures différentes : $R - L_C - w = 5 - 5 - 3$ et $10 - 10 - 3$ respectivement. Pour chaque spectre, l'ISL et l'intensité maximale sont extraits, et leurs évolutions représentées en Figure 4.3. Les valeurs d'ISL représentées sont normalisées par rapport à la valeur initiale dans le but de comparer de manière adimensionnée les deux géométries. Une forte corrélation est observable entre l'ISL et l'intensité maximale dû au fait que, quand l'eau se condense sur la surface de

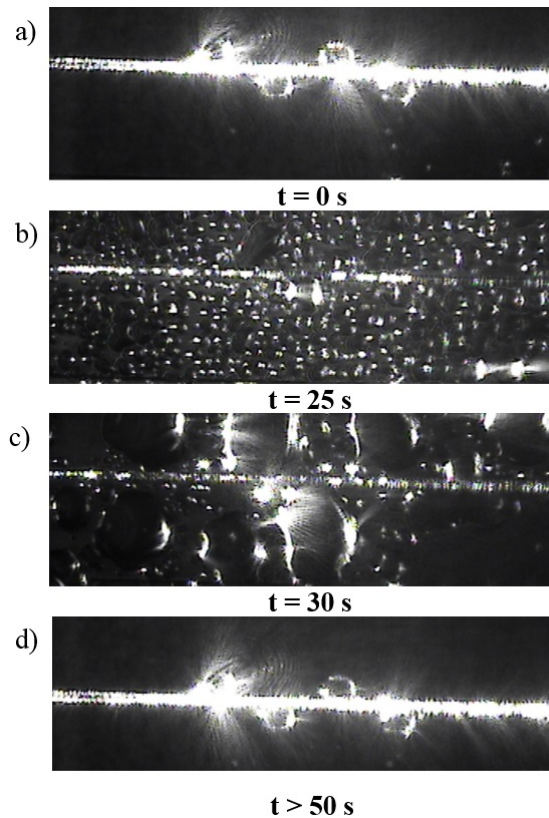


FIGURE 4.1 – Observation microscopique de la puce sous injection (vue de dessus) durant le processus de condensation/évaporation à différents instants : a) $t=0s$ état initial avant condensation, b) $t = 25s$ condensation de l'eau, c) à $t = 30s$ coalescence des gouttes et d) $t > 50s$ évaporation totale de l'eau.

la puce, la queue évanescence du mode optique résonant se propage dans un milieu différent (de l'eau au lieu de l'air). Le changement de composition de cette gaine supérieure modifie l'intensité maximale transmise pour deux raisons. Premièrement, comme l'indice optique de la couche supérieure change, le cône de lumière du guide d'accès se modifie conduisant certainement à une diminution du couplage entre ce dernier et le rayon laser. Cela a pour effet de diminuer la puissance optique injectée dans la structure. Deuxièmement, comme l'indice de la couche supérieure augmente, la queue évanescence du mode s'élargie et est en partie absorbée par l'eau condensée, ce qui résulte en une diminution de l'intensité en sortie de puce. Les variations d'intensité sont aussi visibles à travers les photographie de la Figure 4.1. On y voit aussi la diffusion de la lumière au sein de la couche d'eau. Les effets induisant la

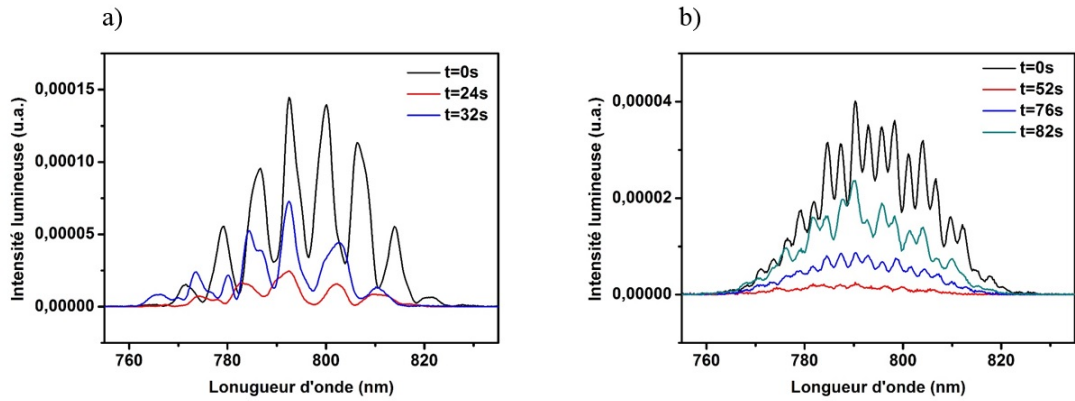


FIGURE 4.2 – Exemples de spectres acquis à différents instants au cours du processus de condensation évaporation pour des structures de géométries différentes et des valeurs $R - L_C - w$ de a) 5 – 5 – 3 et b) 10 – 10 – 3

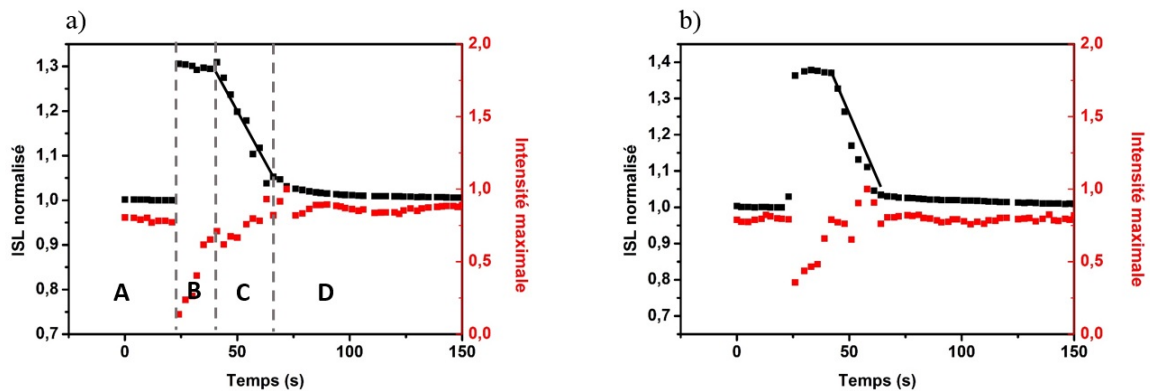


FIGURE 4.3 – Evolution de l'ISL (en noir) et de l'intensité maximale du spectre (en rouge) pour des structures 5-5-3 à des températures de substrat de a) 20°C et b) 28°C. Le graphe peut être décrit en quatre zones : zones A et D correspondent à la configuration du résonateur avant condensation et après évaporation, c'est à dire avec de l'air comme gaine supérieure, la zone B correspond à la situation dans laquelle l'eau s'est condensée et forme une gaine supérieure semi-infinie d'eau, et la zone C correspond à l'évaporation progressive de la couche d'eau à partir du moment où cette dernière est suffisamment fine pour que l'interface air/eau soit en contact avec la queue évanescence du mode résonant.

diminution de l'intensité moyenne du mode optique étant difficiles à quantifier et à décorréler l'un de l'autre, cette étude se concentre sur la possibilité de suivre la dynamique de l'ISL. Les graphes représentant l'évolution de l'ISL en fonction du

temps peuvent être découpés en quatre zones (A, B, C et D) comme représenté en Figure 4.3. Les zones A et D correspondent au résonateur “nu”, l’air jouant le rôle de gaine supérieure. Dans la zone B, en fin de condensation, la quantité d’eau est suffisante pour former une gaine supérieure considérée semi-infinie pour la queue évanescente. Ainsi, aussi longtemps que la quantité d’eau est suffisante, la valeur de l’ISL ne varie pas. Cette valeur d’ISL correspond d’ailleurs à la valeur testée quand le résonateur est immergé dans l’eau. Cette situation est équivalente à la condensation spontanée d’eau dans le cas où l’humidité relative est de 100%. Enfin, dans la zone C, l’eau s’évapore progressivement, ce qui provoque une diminution de l’ISL jusqu’à son retour à sa valeur initiale, la couche d’eau s’étant totalement évaporée. La Figure 4.4 représente schématiquement ces quatre étapes. L’intérêt principal de cette

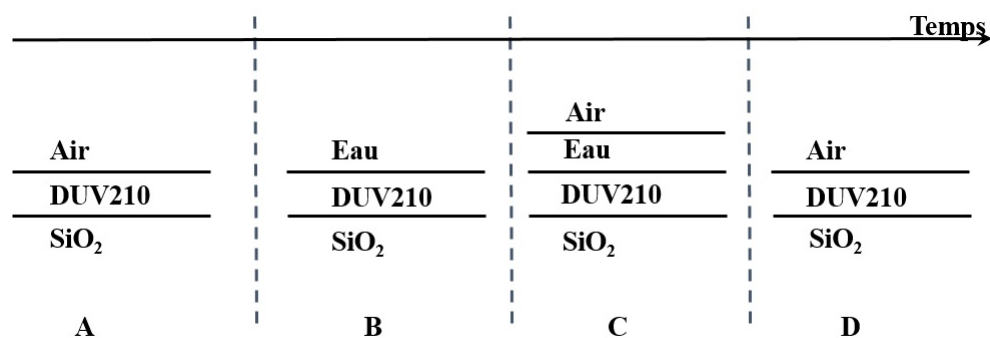


FIGURE 4.4 – Représentation schématique et synoptique de l’évolution temporelle du processus de condensation/évaporation de la buée suite à une expiration humaine.

$R - L_C - w$ (μm)	$T(^{\circ}C)$		
	20	24	28
5-5-3	-0.008	-0.010	-0.016
10-10-3	-0.004	-0.008	-0.014

TABLE 4.1 – Valeurs normalisées de $\frac{dISL}{dt}$ par rapport à leur valeur initiale pour différentes configurations.

étude se trouve dans la zone C, en particulier la pente de la régression linéaire de la dynamique de l’ISL $\frac{dISL}{dt}$, une grandeur reliée à la cinétique d’évaporation si celle-ci se produit plus ou moins rapidement et “linéairement”. Le tableau 4.1 résume les

résultats obtenus pour les deux géométries et pour différentes température de substrat. Les températures étudiées sont fixées à 20, 24 et 28 °C. Ces résultats montrent que plus la température est grande, plus la valeur de $\frac{dISL}{dt}$ est grande (en valeur absolue), ce qui est en accord avec une augmentation de la vitesse d'évaporation et donc un processus qui s'effectue plus rapidement. Ces résultats montrent par ailleurs que quelque soit la température, les valeurs de $\frac{dISL}{dt}$ sont plus grandes en valeurs absolue pour les structures 5–5–3 que pour les structures 10–10–3. En effet, plus le rayon de courbure est faible, plus la queue évanescente du mode résonant est large, ce qui provoque des variations plus grandes de l'ISL par un meilleur recouvrement de la queue évanescente avec le milieu environnant ce qui augmente la gamme de sensibilité. Cette étude a donné lieu à une présentation au cours d'un symposium international, à la publication des résultats dans les "proceedings" de ce dernier, ainsi qu'à une publication internationale dans une revue à comité de lecture [56,59].

4.2 Étude et suivi dynamique du mécanisme d'évaporation d'une goutte d'eau sessile : mesure de perte de masse et micro-balance photonique

Dans cette section, nous allons étudier la dynamique d'évaporation d'une goutte d'eau sessile, ainsi que son effet sur le mode optique se propageant au sein des structures résonantes lorsque cette goutte d'eau en cours d'évaporation est disposée à leur surface. Comme nous le montrerons, nous pourrions considérer le dispositif complet comme une micro-balance photonique résonante détectant une perte de masse d'eau. Un aspect de cette étude consiste à l'installation d'une imagerie latérale permettant de suivre le profil de la goutte lors de l'évaporation, en mesurant la distance entre le sommet de la goutte et le substrat. Cette distance pourra comme nous le verrons être interprétée comme l'épaisseur de la gaine supérieure de la structure guidante. Un autre aspect porte quant à lui sur la mesure de la masse de la goutte d'eau au cours de son évaporation par le biais d'une balance de précision (Sortorius MC BA 200). Enfin, au terme de toutes ces mesures, des liens quantitatifs seront établis entre les différentes grandeurs : les propriétés spectrales des résonances, l'évolution de la

hauteur de la goutte (donc la cinétique d'évaporation), et les mesures de masse. Ces liens mettent en exergue la possibilité de quantifier les pertes de masse par le biais des circuits résonants.

4.2.1 Description physique du phénomène d'évaporation

Le mécanisme d'évaporation d'une goutte sessile déposée sur une surface plane a été étudié ces dernières années pour diverses approches théoriques et expérimentales [60–62]. L'évaporation d'un liquide est un processus thermodynamique se déroulant à des températures inférieures à la température d'ébullition du liquide en question lorsque celui-ci est entouré d'air non saturé. L'air est un mélange de gaz qui contient une certaine quantité d'espèces chimiques qui devraient être à l'état liquide à la température considérée. Par exemple, des molécules d'eau sont présentes dans l'air à température ambiante. La quantité d'eau dans l'air est quantifiée par sa pression (ou concentration) partielle toujours limitée par la pression de vapeur saturante (respectivement la concentration de vapeur saturante) qui est la pression (concentration) maximum d'eau qui peut être présente dans l'air à une température donnée [63]. L'évaporation est donc un phénomène qui décrit la migration de molécules (H_2O) de la phase liquide vers un environnement gazeux en dessous de la température de transition liquide/vapeur. Dans le cas de l'évaporation d'une goutte sessile (une goutte déposée sur un substrat plan), deux mécanismes prennent place. D'une part, il y a l'évaporation à proprement parler, c'est à dire la migration des molécules de l'état liquide vers le gaz environnant, et d'autre part la diffusion des molécules d'eau de l'air saturé aux alentours directs de la goutte, vers de l'air plus sec loin de la goutte, comme décrit en Figure 4.5. Étant donné que ce second mécanisme est plus lent que le premier [64], l'évaporation est conduite par le processus de diffusion décrit par l'équation de diffusion bien connue :

$$\frac{\partial u}{\partial t} = D\Delta u \quad (4.1)$$

avec u la concentration de vapeur et D le coefficient de diffusion. Il est admis que le coefficient de diffusion est dépendant de la température ; il augmente quand cette dernière augmente, provoquant une plus grande vitesse d'évaporation. Le temps d'évaporation peut être estimé de manière relativement simple, comme exposé dans

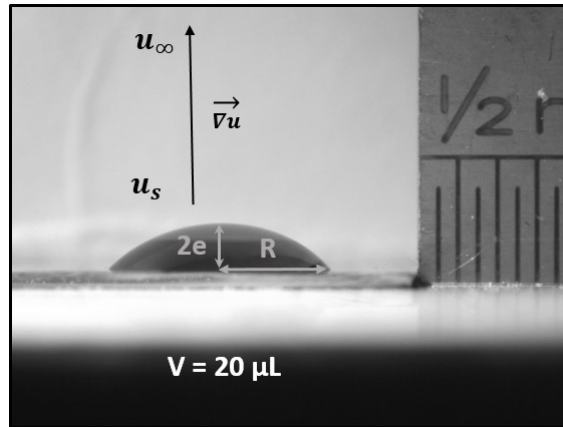


FIGURE 4.5 – Photographie latérale d’une goutte d’eau sessile. L’air est saturé en eau dans l’entourage proche de la goutte (u_s) et plus sec loin de la goutte (u_∞), avec u la concentration d’eau dans l’air. Le processus de diffusion des molécules d’eau de la zone d’air saturé en eau vers l’extérieur non saturé conduit le phénomène d’évaporation.

la référence [65]. Dans les conditions expérimentales qui nous concernent, c’est à dire avec une humidité relative d’environ 60% et pour des gouttes de $20\mu L$, il peut être estimé entre 30 et 80 minutes, en bon accord avec les résultats expérimentaux présentés ci-après. La ligne de contact entre l’eau, l’air et le substrat est maintenue constante durant la majorité du processus d’évaporation de telle manière que la goutte initialement de forme hémisphérique s’applatit au fur et à mesure que cette évaporation se produit. Ensuite, une fois que la goutte est plate, et tant que la ligne de contact reste intacte, l’évaporation est équivalente à la diminution de l’épaisseur de la couche d’eau au dessus des structures guidantes. Cette diminution de l’épaisseur d’eau peut être aussi décrite comme l’approche de la surface de la goutte c’est à dire l’interface physique air/eau vers les circuits résonants situés en dessous. L’épaisseur d’eau lorsque la goutte est considérée comme plate est une fonction du temps au cours de l’évaporation, et sera notée par la suite $2e(t)$. Le décrochage de la ligne de contact se produit entre 10 et 15 secondes avant la fin de l’évaporation, et ne laisse pas de signature significative dans le signal optique mesuré. En mesurant la distance entre le sommet de la goutte et le substrat au cours du temps par le biais de la caméra latérale, on peut mesurer la vitesse d’approche de cette interface.

4.2.2 Détermination de la loi d'évolution dynamique de l'épaisseur de la goutte durant l'évaporation : imagerie de profil

Au cours de l'évaporation, tant que la ligne de contact entre la goutte, le substrat et l'air (ligne triple) reste intacte (elle ne bouge pas), la goutte originellement de forme hémisphérique s'aplatit. Connaissant la portée d'interaction de la queue évanescence du mode résonant (qui sera déterminée dans la suite), la surface de la goutte à portée de cette queue évanescence peut être considérée comme parfaitement plane car l'interaction entre le mode optique et la surface de la goutte (interface air/eau) se produit lorsque la goutte a atteint une forme plate. La Figure 4.6 représente

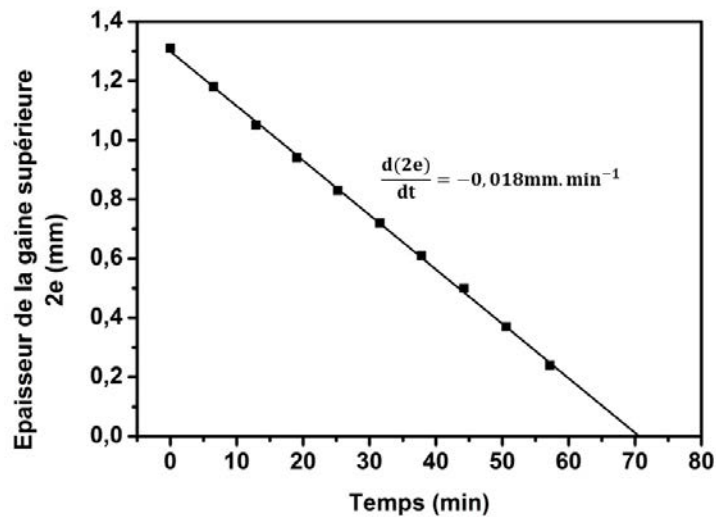


FIGURE 4.6 – Évolution de la distance entre le sommet de la goutte et le substrat $2e$ en fonction du temps durant l'évaporation d'une goutte d'eau sessile de $20\mu L$ déposée sur un substrat à une température de $21^{\circ}C$. Cette distance est l'épaisseur de la couche d'eau, et présente un taux de variation constant $\frac{d(2e)}{dt} = -0.018mm.min^{-1}$

l'évolution de la distance $2e(t)$ entre le sommet de la goutte et le substrat en fonction du temps pour une goutte d'eau de $20\mu L$ à une température de substrat de $21^{\circ}C$. Ce graphe met en exergue une vitesse constante d'approche de cette interface ; la Table 4.2 récapitule ces vitesses pour différentes températures de substrat. Ces résultats ont été obtenus par le biais d'une caméra latérale photographiée en Figure 4.7, et d'un traitement des photographies réalisés grâce au logiciel ImageJ. Comme attendu, on peut souligner qu'une élévation de la température provoque une augmentation

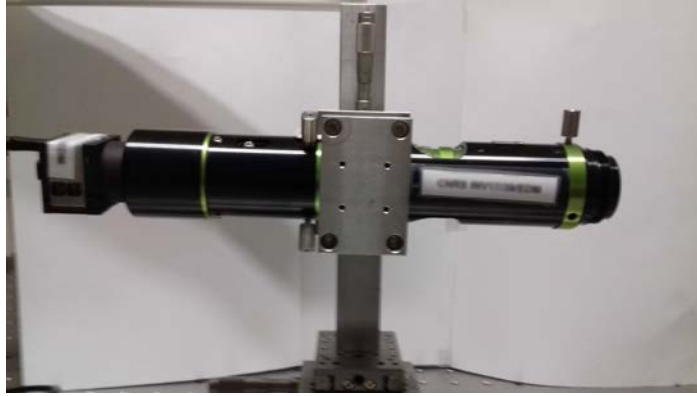


FIGURE 4.7 – Caméra latérale ayant servi aux mesures de distance entre le sommet de la goutte et le substrat. Les images provenant de cette caméra ont été traitées par le biais du logiciel ImageJ. La photographie présentée en Figure 4.5 à été prise par cette caméra.

de la vitesse d’approche de l’interface air/eau, du fait que cette élévation de la température provoque une augmentation de la valeur du coefficient de diffusion.

$T(^{\circ}C)$	21	24	27
$\frac{d(2e)}{dt}(\mu m.min^{-1})$	-18.4	-20.8	-31.2

TABLE 4.2 – Vitesses d’approche de l’interface air/eau $\frac{d(2e)}{dt}$ durant le processus d’évaporation pour différentes températures de substrat (21, 24, et $27^{\circ}C$ respectivement)

4.2.3 Suivi du mécanisme dynamique d’évaporation sous signal optique résonant

Pour les résultats relatifs aux expérimentations optiques, la valeur de l’ISL sera normalisée par rapport à sa valeur initiale dans chacune des expériences concernées. Le “nouvel” ISL (normalisé) considéré sera ainsi sans dimension. Le comportement dynamique de l’ISL est qualitativement le même pour chaque température et est présenté, de même que l’évolution de l’épaisseur $2e(t)$ de la couche d’eau (obtenue par la méthode précédemment décrite), en Figure 4.8 pour une température de $27^{\circ}C$. Le graphe $ISL = f(t)$ présente trois étapes distinctes (notées I, II et III). Au cours de l’étape I, la valeur de l’ISL est constante; les circuits résonants ne sont pas sensible à l’évaporation parce que l’interface air/eau est trop éloignée des résonateurs.

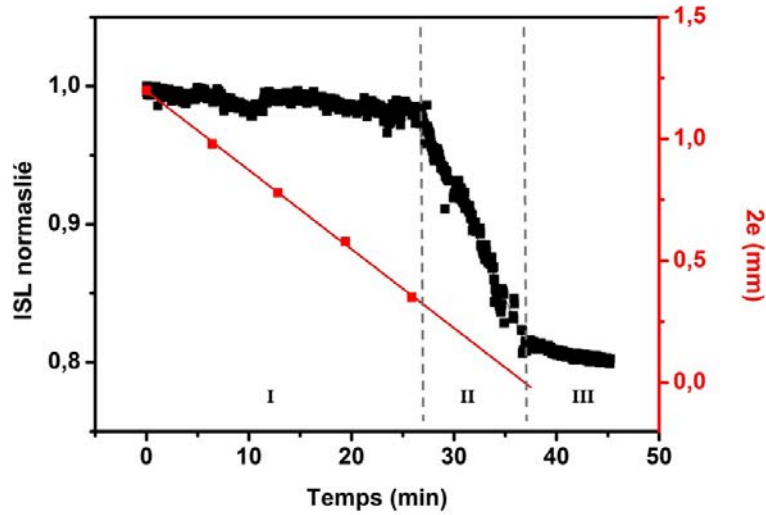


FIGURE 4.8 – Évolution de l’Intervalle Spectral Libre normalisé (en noir) et de la distance entre la surface de la goutte et le substrat (en rouge) en fonction du temps. L’évolution de l’ISL se fait en 3 étapes ; la première et la dernière correspondent aux conditions de résonance des structures avec comme gaine supérieure semi-infinie respectivement de l’eau et de l’air. La deuxième correspond à la dynamique d’approche de l’interface air/eau lorsque celle-ci est suffisamment proche du substrat pour interagir avec la queue évanescente du mode optique résonant. La distance maximale de sensibilité à laquelle cette interaction débute est estimée à $300\mu\text{m}$ par imagerie de profil précédemment présentée.

En effet, la queue évanescente du mode n’interagit pas (ou très peu) avec cette interface, et en terme de théorie de guidage, l’eau peut être considérée comme une gaine semi-infinie. L’étape III montre aussi une valeur constante de l’ISL, qui est cette fois inférieure à la valeur de l’étape I. Cette étape débute quand la goutte d’eau s’est entièrement évaporée ($2e = 0$) ; la valeur de l’ISL associée correspond aux conditions de résonances dans le cas où la gaine supérieure est composée d’air. Entre ces deux configurations, l’étape II montre une diminution linéaire de la valeur de l’ISL. Cette évolution de l’ISL est due à l’approche progressive de l’interface air/eau dans la longueur d’interaction de la queue évanescente du mode résonant (l’intégrale de recouvrement varie). Ces étapes durant le mécanisme d’évaporation sont analogues aux étapes décrites lors de l’expérimentation précédente ; la principale différence porte sur leur durée, qui est influencée par la température du liquide sous évaporation. La Figure 4.9 représente schématiquement les conditions qui ca-

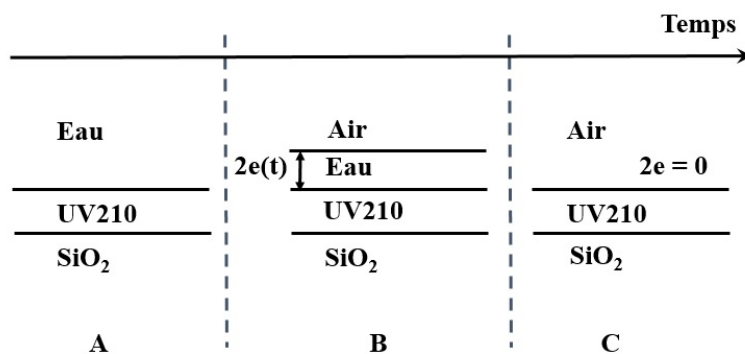


FIGURE 4.9 – Représentation schématique de l'évaporation d'une goutte d'eau en terme de théorie de guidage. L'épaisseur d'eau $2e$ à partir de laquelle l'interface air/eau entre en interaction avec la queue évanescente du mode optique est suffisamment faible pour que cette interface soit considérée comme parfaitement plane du fait de l'applatissage de la goutte au cours de l'évaporation.

ractérisent les trois étapes de l'expérience. La comparaison entre les comportements de l'ISL pour différentes températures de substrat est présentée en Figure 4.10. Il

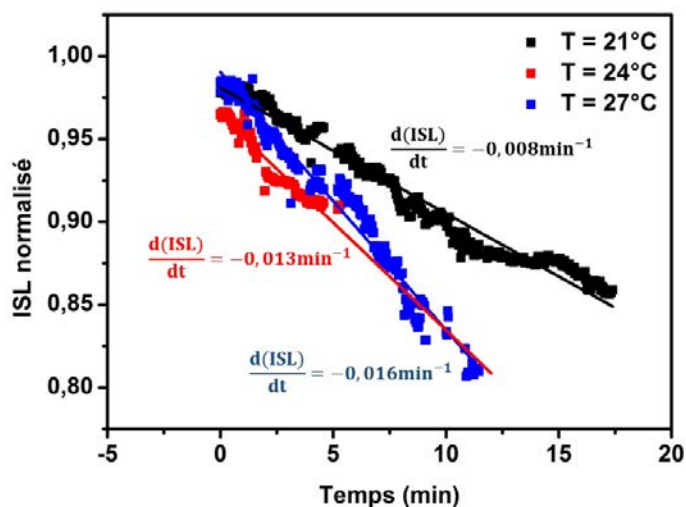


FIGURE 4.10 – Comparaison de la dynamique de l'ISL au cours de l'étape II pour différentes températures de substrat. Cette comparaison montre que plus la température est élevée, plus la diminution de l'ISL est rapide, ce qui est cohérent avec une plus grande vitesse d'évaporation.

est clair que plus la température de la puce est élevée, plus la diminution de l'ISL est rapide au cours du temps. En effet, pour de plus grandes températures de substrat,

la vitesse d'approche de l'interface air/eau augmente, du fait de la dépendance en température du coefficient de diffusion qui dirige le processus d'évaporation. Sur la figure 4.8, en mesurant l'épaisseur d'eau à partir de laquelle l'ISL commence à décroître, on trouve que l'interaction entre la queue évanescente du mode optique et l'interface air/eau commence pour une épaisseur d'eau $2e = 300\mu m$, ce qui confirme que la goutte peut être considérée comme plate à l'instant où cette interaction débute. Une telle portée d'interaction a déjà été observée dans la référence [66] à travers des modes de substrats. Cette propriété est bien connue de la communauté des télécommunication, car elle peut induire une diaphonie entre différents guides d'ondes et ainsi perturber la transmission d'un message.

4.2.4 Suivi de l'évolution de la masse de la goutte au cours de son évaporation ; vers des mesures de perte de masse par le biais de circuits optiques résonants

En plus de l'effet de l'évaporation sur la forme de la goutte et sur l'évolution du mode optique résonant, des mesures de masse ont été réalisées sur une goutte en évaporation par une balance de précision (Sartorius MC BA 200). En ce qui concerne ces mesures, seuls les derniers instants de l'évaporation sont intéressants. En effet, comme la puce photonique n'est sensible qu'à courte portée, la comparaison entre les mesures optiques et les mesures de masse doit se faire aux derniers instants. La Figure 4.11 représente l'évolution de la masse d'une goutte durant les 25 dernières minutes du processus d'évaporation. Ce graphe montre une décroissance constante de la masse de 0.1 mg.min^{-1} . À partir de ces mesures de masse et des mesures photoniques en signaux résonants, on peut déduire la variation de l'ISL normalisé par unité de masse. En effet, $\frac{\Delta(ISL)}{\Delta m} = \frac{\Delta(ISL)/\Delta t}{\Delta m/\Delta t} = 8.4.10^{-2} \text{ mg}^{-1}$. En utilisant la même méthode de calcul pour la variation d'ISL par unité d'épaisseur de la couche d'eau, on déduit $\frac{\Delta(ISL)}{\Delta(2e)} = 4.5.10^{-1} \text{ mm}^{-1}$. À partir de ces deux valeurs, on peut déterminer la variation de masse par unité d'épaisseur de couche : $\frac{\Delta m}{\Delta(2e)} = 5.44 \text{ mg.mm}^{-1}$. Comme la goutte évolue vers une forme plate au cours de l'évaporation, elle peut être modélisée approximativement par un cylindre de hauteur $2e$ et de rayon r . Dans le cadre de ce modèle, les variations de masse et d'épaisseur d'eau sont donc liées

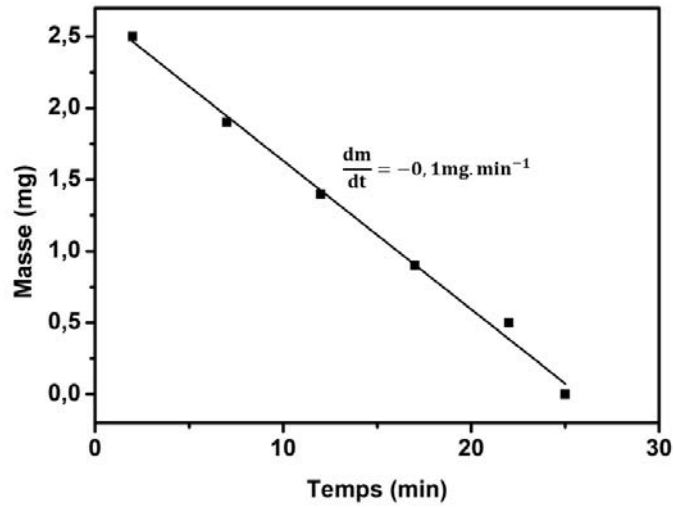


FIGURE 4.11 – Évolution de la masse d’une goutte d’eau de $20\mu L$ durant les 25 dernières minutes de son évaporation. La variation de masse mesurée $\frac{dm}{dt}$ est de $0.1mg.min^{-1}$.

de la manière suivante : $\frac{\Delta m}{\rho} = \Delta(2e).\pi r^2$, avec ρ la masse volumique de l’eau et r le rayon de la base de la goutte. À partir de cette expression, on peut calculer $\frac{\Delta m}{\Delta(2e)} = 12.6mg.mm^{-1}$, avec $\rho = 1000kg.m^3$ et $r = 2mm$, ce qui est relativement en accord avec la valeur précédente. Le lien entre l’ISL, la masse et l’épaisseur de la couche d’eau au dessus des circuits résonants peut être représenté et vu de cette manière, et montre la possibilité de mesures différentielles de masse par le biais de ce type de circuits. Une analogie peut être faite entre ces mesures de masse via des structures résonantes optiques et les mesures de masse via des résonances acoustiques de surface, qui sont utilisées dans les micro-balances à cristal de quartz. En effet, le principe de fonctionnement d’une micro-balance à cristal de quartz consiste en la mesure des propriétés résonantes acoustiques d’un cristal de quartz, notamment du décalage en fréquence de la résonance, en fonction d’une quantité de matière déposée dessus. De la même manière que le fonctionnement des micro-balances à quartz est basé sur une relation entre le décalage en fréquence de la résonance et un changement de masse en fonction des propriétés viscoélastiques du matériau à peser, les circuits photoniques présentés ici permettent une relation entre la variation de l’ISL et le changement de masse en fonction des propriétés optiques du matériau à peser.

4.3 Mesures de vitesse de sédimentation par des circuits et signaux photoniques résonants

La sédimentation est un phénomène décrivant la chute de particules solides dans un fluide (liquide ou gazeux). En fonction de la nature de la particule en question, ainsi que des propriétés du fluide dans lequel elles sédimentent, la vitesse varie. La connaissance précise de la vitesse de sédimentation de certaines espèces dans un milieu donné est primordiale dans différents domaines d'application. Par exemple, dans le secteur médical, la connaissance de la vitesse de sédimentation des globules rouges (encore appelées hématies ou érythrocytes) est utilisée pour réaliser un diagnostic préliminaire. En effet, en cas d'inflammation, la présence de protéines particulières dans le sang a pour effet d'augmenter l'aggrégation des globules rouges, augmentant ainsi leur vitesse de sédimentation. La mesure de ces vitesses de sédimentation dans le secteur pétrolier est utilisé comme un indicateur très important. Les produits pétroliers, après raffinement, sont caractérisés afin d'optimiser leur utilisation. En particulier, la présence de sédiments risque de provoquer des incidents lors de leur utilisation, notamment l'usure de pièces mécaniques (moteurs...), l'obstruction de filtres, ou des risques de contamination bactériologique [67].

Dans cette section, nous montrerons la possibilité de mesurer la vitesse de sédimentation d'un "nuage" de nano-particules (de silice par exemple) par le biais de la plateforme photonique présentée précédemment et prouver ainsi qu'un signal résonant quasi-surfacique en est capable. En plaçant le circuit résonant au fond d'un réservoir contenant des particules en sédimentation, la queue évanescente (au sens de Fresnel [68, 69]) du mode optique interagit avec ces particules, au fur et à mesure que ces dernières s'approchent de la surface de la puce au cours du temps. On peut alors se représenter une forme d'intégrale (spatiale) de recouvrement entre la queue évanescente et le nuage dispersé de nano-particules. Ce nuage de nano-particules plongé dans de l'eau est, au sens de l'optique, un milieu composite [70, 71]. Cette interaction entre le mode résonant et les particules en sédimentation a pour effet une modification des conditions de résonance associées à ce mode, notamment une modification de la valeur propre qui lui est associée, ce qui provoque une modification dynamique des caractéristiques spectrales du signal comme l'ISL. Un modèle

théorique simple sera utilisé pour interpréter les résultats obtenus via les mesures sous signal optique résonant. La première partie de cette section est consacrée au modèle théorique, puis le protocole expérimental est développé dans la seconde partie, et enfin la présentation et l'interprétation des résultats expérimentaux seront proposés en troisième partie. Ce travail a fait l'objet de dépôts de brevets [54, 55].

4.3.1 Description physique de la sédimentation : mécanique de Newton, d'Archimède et de Stokes

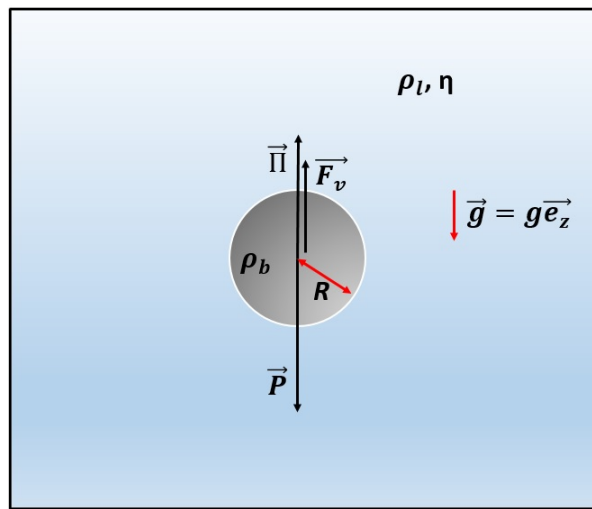


FIGURE 4.12 – Représentation schématique d'une particule sphérique de masse volumique ρ_b et de rayon R en sédimentation dans un fluide de masse volumique ρ_l et de viscosité dynamique η . Cette particule est soumise à son poids \vec{P} , à la poussée d'Archimède $\vec{\Pi}$ et aux forces de frottements visqueux \vec{F}_v décrites par la loi de Stokes.

Une particule solide plongée dans un fluide est soumise à trois types de forces ; le poids \vec{P} , la poussée d'Archimède $\vec{\Pi}$ (une force verticale dirigée de bas en haut proportionnelle à la masse de fluide déplacé) et les frottement visqueux \vec{F}_v (voir Figure 4.12). L'application de la deuxième loi de Newton à cette particule solide s'exprime de la manière suivante

$$\vec{P} + \vec{\Pi} + \vec{F}_v = m \vec{a} = m \frac{d\vec{v}}{dt} \quad (4.2)$$

avec m la masse de la particule étudiée, \vec{v} sa vitesse et \vec{a} son accélération. On étudie ici le comportement d'une particule solide sphérique de masse volumique ρ_b et de

rayon R dans un fluide de masse volumique ρ_l et de viscosité dynamique η . Dans cette situation, les forces définies précédemment qui s'appliquent à cette particule s'expriment de la manière suivante :

$$\begin{cases} \vec{P} &= \frac{4}{3}\pi R^3 \rho_b g \vec{e}_z \\ \vec{\Pi} &= -\frac{4}{3}\pi R^3 \rho_l g \vec{e}_z \\ \vec{F}_v &= -6\pi\eta v R \vec{e}_z \end{cases} \quad (4.3)$$

avec \vec{e}_z le vecteur unitaire vertical dirigé vers le bas (voir Figure 4.12). Avec cette définition des différentes forces et du vecteur unitaire, l'équation 4.2 se réécrit en notations scalaires (projeté sur l'axe Oz) :

$$\frac{4}{3}\pi R^3 \rho_b g - \frac{4}{3}\pi R^3 \rho_l g - 6\pi\eta v R = m \frac{dv}{dt} \quad (4.4)$$

une équation différentielle ordinaire de premier ordre en v dont la résolution détermine l'équation du mouvement par la solution $v = f(t)$. Cette solution s'écrit de la manière suivante :

$$v(t) = \frac{2g(\rho_b - \rho_l)R^2}{9\eta} [1 - \exp(-\frac{9}{2} \frac{\eta}{R^2 \rho_b} t)] \quad (4.5)$$

La Figure 4.13 représente l'évolution de la vitesse de sédimentation d'une nano-particule de silice dans de l'eau au cours du temps, d'après l'expression précédente. Les paramètres de calcul de cette courbe sont : $\rho_b = 2650 \text{ kg.m}^{-3}$ la masse volumique de la silice, $R = 400 \text{ nm}$ le rayon de la nano-particule, $\rho_l = 1000 \text{ kg.m}^{-3}$ la masse volumique de l'eau et $\eta = 0.001 \text{ Pa.s}$ sa viscosité dynamique. Le terme $1 - \exp(-\frac{9}{2} \frac{\eta}{R^2 \rho_b} t)$ implique que pour des temps longs, cette vitesse tend vers une vitesse limite v_l dont la valeur est donnée par :

$$v_l = \frac{2}{9} \frac{gR^2(\rho_b - \rho_l)}{\eta} \quad (4.6)$$

Cette vitesse limite a été calculée pour différentes tailles de nano-particules sphériques de rayon 250, 300 et 400 nm ; les résultats sont résumés en Table 4.3. La Figure 4.13 montre par ailleurs que la vitesse limite de sédimentation est atteinte en une fraction de seconde : moins d'1 μs dans le cas d'une particule de 400 nm de rayon, ce qui est plusieurs ordres de grandeurs en dessous de la précision temporelle de la plateforme photonique résonante décrite au cours de ce travail. Cette propriété permet de faire l'approximation que la vitesse limite est atteinte instantanément lorsque les particules sont introduites dans l'eau.

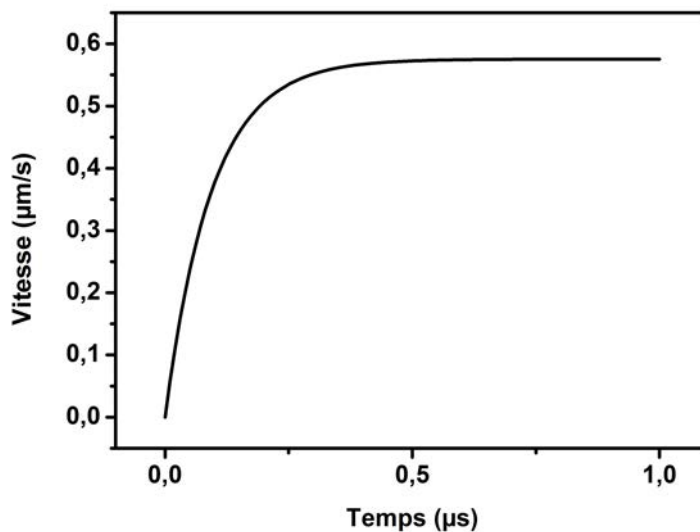


FIGURE 4.13 – Évolution de la vitesse d’une nano-particule sphérique de silice de masse volumique $\rho_b = 2650 \text{ kg.m}^{-3}$ et de rayon $R = 400 \text{ nm}$ en sédimentation en fonction du temps. Cette dernière se produit dans de l’eau, de masse volumique $\rho_l = 1000 \text{ kg.m}^{-3}$ et de viscosité dynamique $\eta = 0.001 \text{ Pa.s}$.

$R \text{ (nm)}$	250	300	400
$v_{th} \text{ (}\mu\text{m.min}^{-1}\text{)}$	13.49	19.42	34.53

TABLE 4.3 – Vitesses de sédimentation théoriques v_{th} dans l’eau de nano-particules sphériques de silice de rayon 250, 300 et 400 nm

4.3.2 Description du protocole expérimental

Afin de déterminer le comportement du mode résonant lorsque des nano-particules de silice sont en sédimentation au dessus, une cuve millimétrique de dimensions 7.5 x 7.5 x 8 mm sans fond est disposée à la surface de la puce, comme photographié en Figure 4.14. Cette cuve est ensuite remplie d’eau avant d’y ajouter les nano-particules. Les expériences ont été menées avec des volumes de 112 μL , 168 μL et 225 μL afin d’obtenir des hauteurs d’eau correspondantes de 2, 3 et 4 mm au dessus des résonateurs. Les nano-particules de silice ont été achetées à l’entreprise Corpuscular Inc sous forme de suspension monodisperse dans de l’eau, à une concentration de 10 mg/mL. Les nano-particules utilisées ont des rayons de 250, 300 et 400 nm.

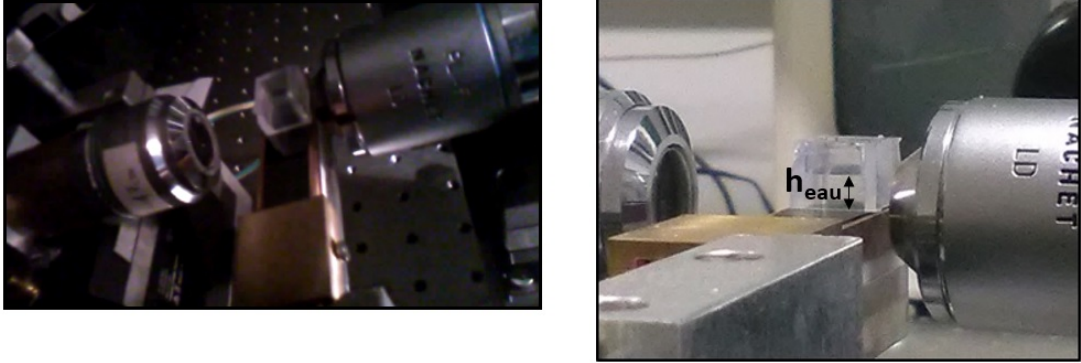


FIGURE 4.14 – Photographies du dispositif d’injection ; une cuve millimétrique sans fond est disposée sur la surface de la puce avant l’injection photonique et est ensuite remplie d’eau afin d’effectuer les expériences de sédimentation. L’eau ajoutée dans cette cuve à une profondeur h_{eau} . Aucune fuite d’eau n’est à déplorer dans cette technique d’ajout de cuve au dessus sans aucun processus de microtechnologie en salle blanche.

Après avoir été mélangée à l’aide d’un agitateur vortex, $5 \mu L$ de solution de nanoparticules sont prélevés et injectés dans la cuve contenant l’eau grâce à une pipette micro-litre. L’acquisition des spectres est déclenchée avant l’introduction des nanoparticules dans l’eau, et est poursuivie pendant plusieurs heures afin de s’assurer que la sédimentation est terminée lors de l’arrêt des mesures. Une fois les spectres acquis, ils sont traités afin d’en extraire l’ISL au cours du temps. Chacune de ces mesures a été réalisée à température ambiante.

4.3.3 Mesures photoniques de résonance et résultats expérimentaux

Les expériences de sédimentation menées au cours de ce travail de thèse laissent une signature générique sur la dynamique de l’ISL. En effet, comme présenté en Figure 4.15 il augmente pendant un certain temps avant d’atteindre une valeur maximale puis de diminuer jusqu’à une valeur plateau, supérieure à la valeur initiale de l’ISL. L’instant correspondant à la valeur maximale de l’ISL est interprété comme étant l’instant auquel les premières nano-particules arrivent en contact avec le substrat. Les valeurs des vitesses de sédimentation correspondante sont reportées en Table 4.4. Les valeurs expérimentales de vitesses de sédimentation mesurées montrent un écart relatif compris entre 10 et 20 % par rapport aux vitesses théoriques

préditent précédemment par l'équation 4.6. Cet écart est dû au fait que la valeur théorique est obtenue à partir d'un modèle qui ne prend pas compte de la composante de la vitesse due au mouvement Brownien. Lorsque les nano-particules sont

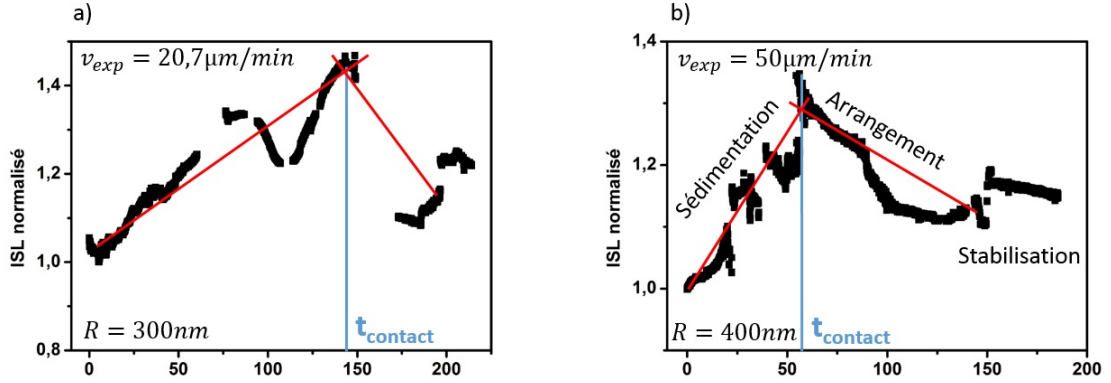


FIGURE 4.15 – Évolution de l'ISL normalisé par rapport à sa valeur initiale (avec de l'eau en gaine supérieure) au cours du temps lors d'une expérience de sédimentation de nano-particules de silice de a) 300 nm et b) 400 nm de rayon lorsque le volume initial d'eau est de $168 \mu L$ c'est à dire pour une hauteur d'eau $h_{eau} = 3 \text{ mm}$. La vitesse est calculée à partir du temps de contact de la manière suivante : $v_{exp} = \frac{h_{eau}}{t_{contact}}$

$R \text{ (nm)}$	250	300	400
$v_{th} \text{ (}\mu\text{m}\cdot\text{min}^{-1}\text{)}$	13.49	19.42	34.53
$v_{exp} \text{ (}\mu\text{m}\cdot\text{min}^{-1}\text{)}$	15.5	17.5	42.8
<i>erreur relative (%)</i>	12	10	19

TABLE 4.4 – Tableau comparatif des vitesses de sédimentation théoriques v_{th} et expérimentales v_{exp} . Les vitesses expérimentales reportées ici sont des moyennes sur les différentes mesures avec différents volumes d'eau initiaux (donc différentes épaisseur d'eau initiales). Les mesures donnent sensiblement les mêmes résultats sur la vitesse expérimentale quelque soit le volume d'eau initial considéré. L'erreur relative entre les deux est comprise entre 10 et 20 %.

ajoutées à l'eau initialement dans la cuve déposée sur les résonateurs, elles forment un "nuage" qui sédimente au cours du temps. Étant donné que ces nano-particules ont une taille inférieure ou du même ordre de grandeur que la longueur d'onde de la lumière résonante, ce "nuage" de nano-particules se comporte comme un milieu com-

posite (au sens de la théorie des milieux composites [70]), d'indice optique supérieur à l'eau. Comme la solution de nano-particules utilisée est monodisperse, il est raisonnable de considérer qu'elles sédimentent toutes à une même vitesse moyenne. Ce processus correspond donc, en terme de théorie de guidage, à l'approche progressive d'une couche d'indice optique supérieur à celui de l'eau, et est associé à une diminution de l'épaisseur d'eau entre ce nuage et les résonateurs. Le fait que le nuage de nano-particules plongé dans l'eau ait un indice supérieure à l'eau explique l'augmentation de l'ISL dans la première partie de l'évolution dynamique de l'ISL. En effet, l'augmentation de la valeur de l'indice de la gaine supérieure du guide d'onde provoque une diminution de l'indice effectif de mode, comme indiqué par l'équation 2.5, ce qui provoque une augmentation de la valeur de l'ISL (voir eq 2.24). Ensuite, après le contact entre le nuage et la puce, les nano-particules s'ordonnent, ce qui a pour effet de réduire l'épaisseur de la couche de nano-particules à la surface de la puce. Ce "tassement" des nano-particules a pour effet de réduire la valeur de l'indice de la gaine supérieure, donc d'augmenter la valeur de l'indice effectif du mode et de diminuer la valeur de l'ISL, ce qui correspond donc à la partie décroissante de l'évolution temporelle de l'ISL. Ce processus évoluant au cours du temps est schématisé en Figure 4.16. Enfin, lorsque les particules sont arrangées de manière

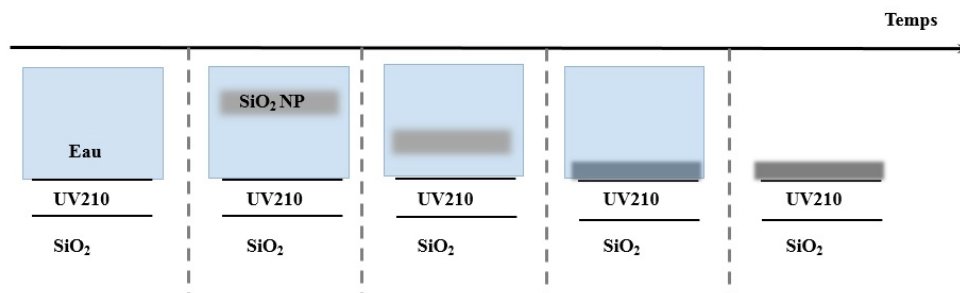


FIGURE 4.16 – Description schématique du processus de sédimentation d'un nuage de nano-particules (NP) de silice dans de l'eau au cours du temps. Le nuage s'approche progressivement de la surface de la puce puis, après le contact entre ces NPs et la surface, ces dernières se compactent jusqu'à atteindre un empilement stable qui séchera en totalité au final, au-delà du diagramme précédent.

stable, la valeur de l'ISL devient constante au cours du temps. La Figure 4.17 est une image obtenue par microscopie à force atomique de la surface de la puce après

sédimentation, et après que toute l'eau initialement contenue dans la cuve se soit évaporée.

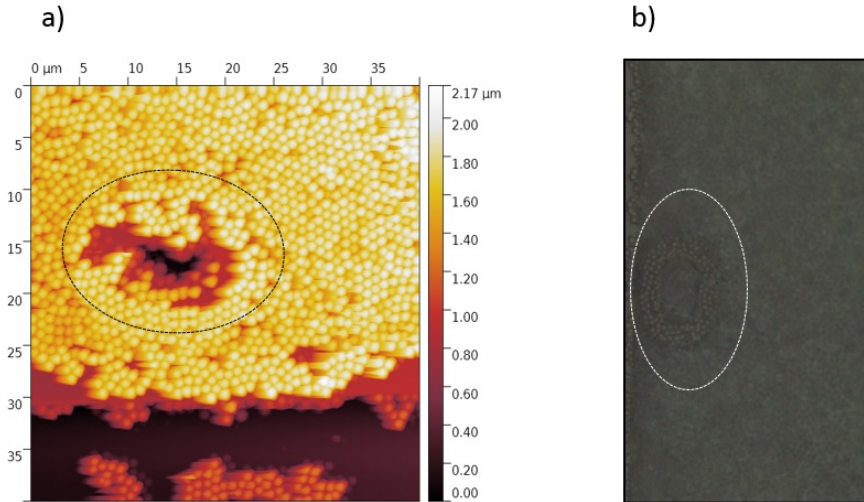


FIGURE 4.17 – a) Imagerie par microscopie à force atomique de la surface de la puce après une expérience de sédimentation et une fois que la totalité de l'eau s'est évaporée. On peut y distinguer la forme de hippodrome du résonateur recouvert de nano-particules quant à elles bien visibles. b) Imagerie par microscopie optique d'un résonateur recouvert de nano-particules de silice après sédimentation et évaporation de l'eau.

Ce travail initiateur a montré la possible détermination des vitesses de sédimentations de “nuage” de nano-particules de silice dans de l'eau par l'utilisation et le traitement d'un signal optique résonant quasi-surfacique. Le suivi dynamique de l'intervalle spectral libre associé au mode résonant montre en effet une évolution générique quelque soit la taille des particules testées en sédimentation (diamètre de $[0.5-0.8]$ μm dans cette étude). Cette évolution met en jeu une augmentation de l'ISL jusqu'au contact entre les particules et la surface de la puce, puis une diminution le temps que le “nuage” entier sédimente et se stabilise à la surface de la puce formant une gaine supérieure à la structure guidante. Une fois cette gaine supérieure établie et stable, la valeur de l'ISL ne varie plus. La méthode décrite pour réaliser ces mesures de sédimentation utilisant des micro-résonateurs photonique à fait l'objet de dépôts de brevets [54, 55].

4.4 Détection et dynamique de transition de phase d'espèces biochimiques : applications en biologie et cosmétique

Dans chacune des sections précédentes présentant nos résultats expérimentaux, les phénomènes étudiés étaient des processus dynamiques présentant des évolutions au cours du temps à température fixée. Dans cette section, il sera cette fois question de processus basés sur une dynamique induite par un changement de température : les transitions de phase.

4.4.1 Résultats préliminaires : détection d'une transition de phase du 1er ordre gel/fluide de la sphingomyéline en biologie

Au début des travaux menés durant cette thèse, nous avons, au sein de l'équipe, effectué des études sur le comportement en température d'un sphingolipide constituant fondamental de la gaine de myéline des nerfs du corps humain : la sphingomyéline (SM). La sphingomyéline est un type de sphingolipide composant les membranes cellulaires des mammifères. La SM est un des constituants principaux de la myéline, une gaine membranaire qui recouvre et isole les axones et de nombreux nerfs. Chez les mammifères, la SM représente 80 % des sphingolipides et jusqu'à 15 mol % en moyenne des lipides de la membrane plasmique ; les plus grandes concentrations se trouvent dans les tissus nerveux, les cellules sanguines mais aussi les zones oculaires. Ce composant des membranes plasmiques assure aussi la transmission d'information par les stimuli électriques. Ce composé organique (représenté schématiquement en Figure 4.18 a)) présente une transition de phase gel/fluide. L'objet de cette étude préliminaire porte sur l'étude de la possible détermination de la température à laquelle se produit cette transition (schématisée en Figure 4.18 b)) à l'aide des signaux surfaciques photoniques résonants. Afin de caractériser ces mesures optiques, elles seront corrélées à des mesures effectuées par calorimétrie différentielle à balayage ("Differential Scanning Calorimetry", DSC, DSC Q20 ; TA Instruments). La DSC est une technique qui consiste en la mesure de l'énergie sous forme de chaleur à apporter à un système pour que sa température augmente. À la température de transition, l'énergie apportée au système sous forme de chaleur aura pour effet de modifier la structure de ce système (changement de phase) sans aug-

gure 4.19 tirés de nos travaux [43] représentent d’une part l’évolution de l’ISL et de la FWHM du mode résonant en fonction de la température et d’autre part les résultats obtenus par calorimétrie différentielle à balayage. Les résultats obtenus par DSC montrent qu’à partir d’une température d’environ 31°C, la quantité de chaleur à apporter au système pour augmenter sa température croît très rapidement, ce qui montre que l’énergie apportée de cette manière est utilisée par le système pour opérer la transition de phase gel/fluide. Concernant les mesures photoniques résonantes de surface, la transition de phase est visible à travers les ruptures de pentes dans l’évolution en fonction de la température des paramètres spectraux, respectivement de l’ISL et de la FWHM, et se produisent également à proximité de cette température de 31 °C. Cette rupture de pente est particulièrement visible sur l’évolution de la FWHM. L’ISL, dont la définition est donnée par l’équation 2.24 ne dépend que d’une seule variable : l’indice effectif total du mode résonant. La FWHM quant à elle, dont l’expression est donnée par l’équation 2.27 dépend à la fois de l’indice effectif et des paramètres de perte et de couplage (inclus dans les paramètres A et K). Le fait que la différence de comportement entre les deux phases de la FWHM soit plus important que celui de l’ISL montre, au travers de leur dépendance respective aux paramètres optiques (indice effectif, perte et couplage) que cette transition de phase ne met pas en jeu une modification drastique de l’indice optique de la couche de sphingomyéline, mais de sa configuration morphologique qui a un impact sur les pertes par diffraction au cours de la propagation du mode résonant au sein de la cavité, et du couplage entre le guide d’accès et cette cavité. En effet, le facteur de qualité (qui est inversement proportionnel à la FWHM selon l’équation 2.30) peut se décomposer en plusieurs termes [72] :

$$\frac{1}{Q} = \frac{1}{Q_{diff}} + \frac{1}{Q_{rad}} + \frac{1}{Q_{abs}} \quad (4.7)$$

avec Q_{diff} , Q_{rad} et Q_{abs} les contributions liées à la diffraction, la radiation et l’absorption respectivement. Cette étude préliminaire a permis de montrer que, par le biais de circuits photoniques résonants, il est possible de mesurer une température de transition de phase de premier ordre avec changement d’état gel/fluide d’une espèce biologique (la sphingomyéline). Cette détection de transition de phase a été corrélée à une mesure par DSC, et montre un besoin en matière première 10^7 fois

moins important que pour ces mesures par DSC. Cette étude a également fait l'objet de publications dans des revues internationales à comité de lecture [43, 73].

4.4.2 Transition de phase morphologique de structures auto-assemblées d'acide gras en solution aqueuse

La micro-encapsulation est un procédé utile pour le transport, l'isolation et la protection de composés biochimiques, et les structures supra-moléculaires auto-assemblées telles que les micelles, les vésicules ou les phases lamellaires représentent une grande opportunité pour l'encapsulation. Une structure qui peut être remplie avec des composés bio-chimiques est en effet un candidat potentiel pour l'inoculation de médicament, pour les sciences de l'environnement, les cosmétiques et l'agroalimentaire [74–76]. Ces applications dépendent du contrôle des auto-assemblages intrinsèques de structures supra-moléculaires. Dans la famille des lipides, les acides gras sont importants pour un grand nombre d'applications biotechnologiques, qui vont de sources de nourriture pour animaux, aux produits cosmétiques en passant par l'inoculation de médicaments. Les propriétés microscopiques de ces auto-assemblages sont liées aux propriétés macroscopiques de la solution, comme sa viscosité par exemple. Ces auto-assemblages, qui se forment en solution aqueuse, dépendent des conditions environnementales dans lesquelles ils se trouvent, et peuvent se faire de différentes manières en fonction de la température, de la présence de CO_2 ou encore du pH de la solution dans laquelle ils sont dilués. Afin de démontrer la possibilité de détecter une transition de phase entre deux assemblages différents d'un même composé chimique en fonction de la température à l'aide de nos structures photoniques, nous avons sélectionné un composé chimique appartenant à la famille des acides gras présentant à la fois une bonne bio-dégradabilité et une faible toxicité. Parmi ces acides gras, l'acide 12-hydroxystéarique (que l'on nommera 12-HSA dans la suite), une fois associé à des contre-ions d'alcools aminés, présente des auto-assemblages dépendants de la température. À basse température, des tubes multi-lamellaires auto-assemblés (avec des longueurs typiques de quelques dizaines de μm et des diamètres de l'ordre de quelques μm) se forment du fait des interactions ioniques entre le 12-HSA et l'alcool aminé. Au dessus d'une certaine température critique, ces tubes disparaissent pour laisser place à des micelles

nano-métriques. La température de transition de phase dépend du ratio molaire ($R = \frac{n_{12-HSA}}{n_{12-HSA} - n_{contre-ion}}$) entre le 12-HSA et son contre-ion, et dépend aussi du choix de l'alcool aminé; elle peut de cette manière être ajustée de 18 à 70 °C. Ainsi, une transition structurale à une échelle supra-moléculaire se produit dans ce système chimique, ce qui en fait un candidat idéal pour le test de tels circuits photoniques résonants pour ces transitions de phase morphologiques et mutli-échelles.

Préparation des échantillons et mesures de leurs propriétés macroscopiques

Le 12-HSA (Sigma-Aldrich, 99% de pureté) peut être associé à différents alcools aminés et leurs ratios molaires R peuvent varier afin de fixer la température de transition de phase. Ici, nous avons sélectionné des conditions expérimentales qui mènent à une transition proche de la température ambiante. Cela correspond au choix du pentanolamine (5-amino-1-pentanol, noté C5 par la suite) dans la famille des alcools aminés, et à un ratio molaire $R = 0.3$ [77]. Les espèces chimiques 12-HSA et C5 sont pesés et ajoutés à de l'eau milli-Q de manière à atteindre $R = 0.3$, puis la solution est chauffée à 80°C afin d'assurer une dispersion complète des molécules dans l'eau. Le diagramme de phase du composé C5/12-HSA montre un polymorphisme supra-moléculaire, qui va de longs tubes cylindriques à des micelles sphériques. La structure de ce composé, à basse température, a été largement étudié par différentes techniques (diffusion de neutrons et diffraction de rayon X) et a montré que les molécules de 12-HSA s'auto-assemblent en tubes multi-lamellaires [77]. Les Figure 4.20 (a) et 4.20 (b) montrent la morphologie du composé C5/12-HSA obtenu à une température $T = 7.5^\circ C$ par microscopie optique et par microscopie électronique en transmission respectivement. À basse température, une étude statistique de répartition montre que ces tubes présentent une longueur d'environ $30 \pm 15 \mu m$ et un diamètre de $2 \pm 1 \mu m$. Au dessus de la température de transition, la solution initialement blanchâtre du fait de la présence de ces micro-tubes lamellaires devient totalement transparente, comme montré en Figure 4.20 (c), et seules des micelles de quelques dizaines de nano-mètres sont présentes [77]. La Figure 4.20 (d), quant à elle, montre l'évolution de l'absorption optique des échantillons à différentes températures. L'absorption a été mesurée par le biais d'un spectrophotomètre UV/Vis (JENWAY 6405 UV/Vis).

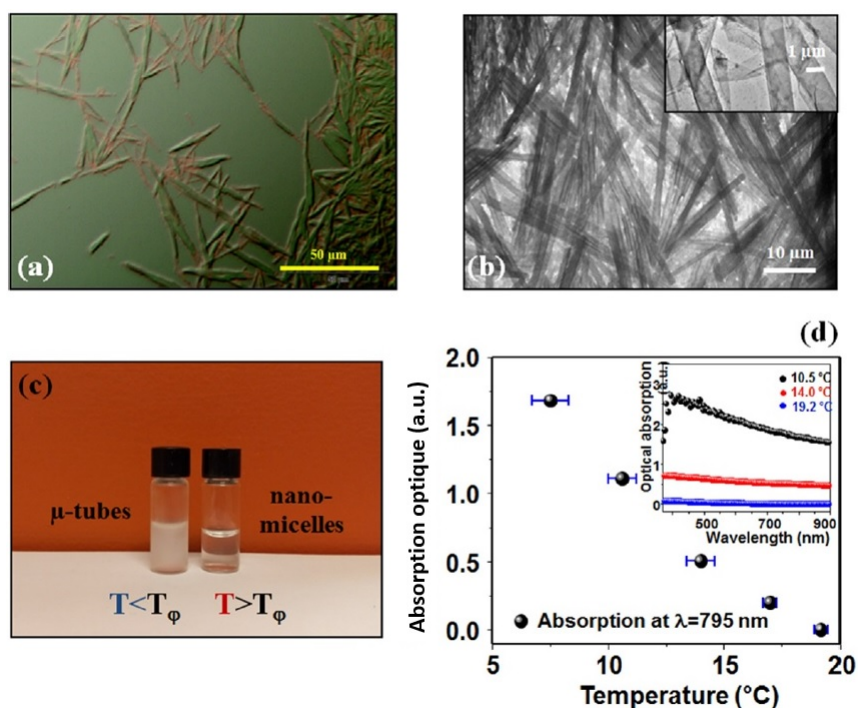


FIGURE 4.20 – (a) Photographie par microscopie optique classique du composé C5/12-HSA à 7.5°C. (b) Image par microscopie électronique en transmission des tubes multi-lamellaires. (c) Photographie de deux échantillons du composé C5/12-HSA à deux température différentes ; une en dessous de la température de transition de phase T_{Φ} et une au dessus. La turbidité de l'échantillon à $T < T_{\Phi}$ est due à la présence des micro-tubes. (d) Mesures de l'absorption optiques des échantillons à différentes températures par spectrohphotomètre UV/Vis.

Les données consistent en trois spectres de l'échantillon à différentes températures. Ces mesures d'absorption ont été réalisées autour de 795 nm, ce qui correspond à la longueur d'onde utilisé lors des mesures par la plateforme photonique. À la fois une chute radicale de l'absorbance et une solution transparente sont observées quand la température augmente ; au-delà d'une certaine température, l'absorption due à la présence des tubes n'est plus observée par les mesures spectroscopiques. Ensuite, afin de corroborer ces résultats, des mesures de viscosité ont été réalisées par le biais d'un viscosimètre cône et plan (Anton Paar MCR 301). Le taux de cisaillement était fixé à $0.5s^{-1}$ et la viscosité à été investiguée sur une gamme de température allant de 12 à 25 °C. La viscosité dynamique mesurée de cette manière est présentée en Figure 4.21 ; elle décroît d'un facteur ~ 100 tandis que la température varie de 16 à 24 °C. À la lumière de précédents travaux [77], on peut lier cette décroissance

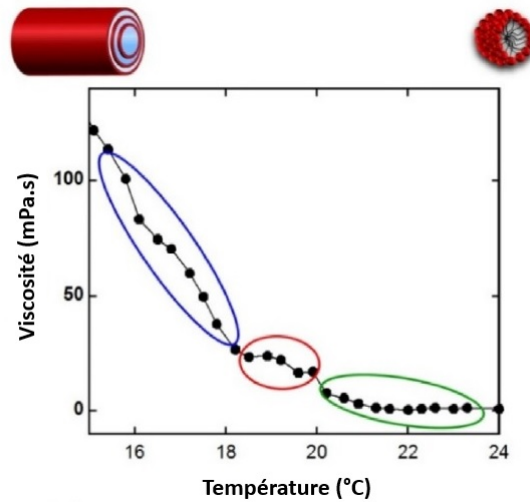


FIGURE 4.21 – Étude de la viscosité dynamique du composé C5/12-HSA mettant en évidence différents régimes : $T < 18.5^{\circ}C$, $18.5^{\circ}C < T < 20^{\circ}C$ et $T > 20^{\circ}C$. La viscosité a été mesurée par le biais d’un viscosimètre cône et plan.

à la transition de phase tube/micelle. La viscosité trouvée pour des températures supérieures à $20^{\circ}C$ est en effet en accord avec une solution micellaire formant un fluide Newtonien (en vert sur la Figure 4.21). Pour des températures inférieures à $20^{\circ}C$, où la viscosité est plus grande du fait de la présence de larges structures tubulaires dans la solution, on peut séparer la courbe en deux parties (en rouge et en bleu sur la Figure 4.21) : un état intermédiaire peut être identifié entre 18.5 et $20^{\circ}C$, correspondant probablement à des structures intermédiaires entre les tubes à basse température et les micelles à haute température.

Résultats expérimentaux relatifs aux mesures photoniques

Afin de réaliser les mesures par le biais des circuits résonants, une goutte de $20\mu L$ de solution aqueuse de C5/12-HSA est déposée à leur surface. Les expériences ont été menées de $17^{\circ}C$ à $24^{\circ}C$ par pas de $0.5^{\circ}C$. L’évolution en fonction de la température des paramètres FWHM et ISL sont représentés en Figure 4.22 a) et b). Ces graphes (Figure 4.22) représentant le FWHM (respectivement l’ISL) sont normalisés par rapport à la valeur du FWHM (respectivement de l’ISL) à $17^{\circ}C$. De plus, la dépendance en température de ces paramètres a été mesurée (Figure 4.22c) et d)) pour le résonateur “nu”, c’est à dire sans la solution à sa surface, et

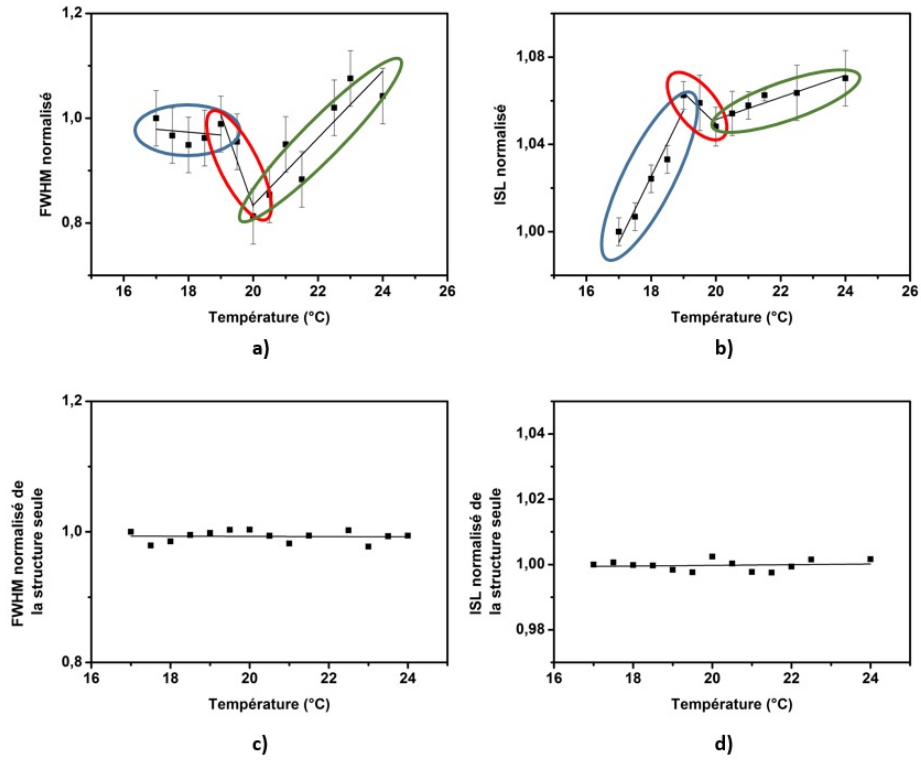


FIGURE 4.22 – Évolution a) du FWHM et b) de l'ISL normalisés en fonction de la température des circuits résonant recouverts d'une solution aqueuse de C5/12-HSA. Mesures a) du FWHM et b) de l'ISL en fonction de la température des circuits résonants seuls ; ces mesures ont été soustraites aux données brutes pour obtenir les graphes a) et b). Les comportements en température du FWHM et de l'ISL montrent une transition de phase en deux étapes de 18.5 à 20°C, en accord avec les mesures de viscosité.

soustraits évidemment aux résultats obtenus par la mesure de la transition de phase morphologique. En effet, de cette manière, les effets dus à la transition de phase peuvent être discriminés de l'évolution intrinsèque en fonction de la température des caractéristiques spectrales des résonateurs. Les données obtenues par les mesures optiques montrent sans ambiguïté une dépendance vis à vis de la température ; deux inversions de pentes y sont visibles menant à l'identification de trois régimes différents comme représenté en Figure 4.22. De 17 à 18.5°C, l'ISL augmente en fonction de la température, ce qui correspond à une diminution de la valeur de l'indice effectif, tandis que le FWHM reste constant. Comme l'ISL et le FWHM ont la même dépendance vis à vis de $\frac{1}{n_g}$, on peut déduire de la valeur constante du FWHM sur la plage [17°C ; 18.5°C] que les variations du facteur $\text{Arccos}\left(\frac{2AK}{1+A^2K^2}\right)$ dans son expres-

sion (Equation 2.27) compense les variations de l'indice effectif. Ensuite, sur la plage [18.5°C; 20°C], la pente de l'ISL s'inverse (ce qui correspond à une augmentation de l'indice effectif), de même que pour le FWHM. La diminution de, à la fois l'ISL puis le FWHM montre que, d'après leurs expressions (équations 2.24 et 2.27), la contribution du facteur $\frac{1}{n_g}$ apparaît plus importante que la contribution du facteur $Arccos(\frac{2AK}{1+A^2K^2})$; la contribution principale aux variations de FWHM est donc la variation de l'indice effectif, et non la variation des pertes et du couplage. Enfin, le troisième régime ($T > 20^\circ C$) révèle une autre inversion de pente à la fois de l'ISL et du FWHM. Encore une fois, le fait que l'ISL et le FWHM varient dans le même sens montre que les variations de l'indice effectif sont prépondérantes sur les variations de couplage et de pertes de la structure totale. En effet, en dessus de la température de transition de phase, le produit est composé de micro-tubes ayant des dimensions supérieure à la longueur d'onde, ce qui cause de la diffraction qui modifie grandement les pertes et le couplage. À l'inverse, au-delà de cette température, les micelles ont une dimension clairement sub-longueur d'onde, de telle manière que la solution aqueuse agit comme un milieu homogène effectif par rapport à la queue évanescence du mode résonant réduisant ainsi les pertes, qui deviennent négligeables devant les variations d'indice effectif. Les mesures réalisées à l'aide des structures photoniques résonantes présentent deux inversions de pentes nettes, qui permettent de déduire un état intermédiaire entre les deux phases morphologiques du composé étudié. Cet état intermédiaire n'est pas aussi visible sur la caractéristique de viscosité du fait de la monotonie de son évolution sur la gamme de température étudiée. La comparaison entre ces deux méthodes de mesures montre donc un avantage de la méthode reposant sur les circuits photoniques résonants par rapport aux mesures rhéologiques. Cette étude a fait l'objet d'une publication dans une revue internationale à comité de lecture [78].

Troisième partie

Développements théoriques pour la description de structures guidantes soumises à des fluctuations géométriques

Chapitre 5

Analyse mathématique de structures guidantes avec paramètres géométriques fluctuants et dépendants du temps

La description théorique de la propagation de la lumière dans une structure guidante est d'une grande importance dans le secteur des télécommunications et celui des technologies des capteurs optiques. Principalement deux types de familles de guides d'ondes peuvent être décrits de manière analytique par une équation aux valeurs propres : ceux comportant une symétrie cylindrique (ex : la fibre optique) et ceux dont la symétrie est planaire, composées de plusieurs couches d'indices optiques différents. La plupart des autres géométries de structures guidantes nécessitent l'utilisation d'approximations (comme par exemple la méthode Galerkin ou une méthode équivalente [79, 80], ou la méthode de Marcatili [81]), ou de résolution numérique pas à pas par une discrétisation de l'espace et du temps (comme la méthode des différences finies [82], ou un formalisme matriciel multi-couche associé à une transformation conforme du plan complexe [83]). Au cours de ce chapitre, nous recher-

chons de manière théorique la corrélation entre des variations des caractéristiques géométriques de guides (tout d'abord plans) en fonction du temps, et les effets sur les valeurs des familles de constantes de propagation effectives (valeurs propres) qui leurs sont associées, et donc sur l'ensemble des courbes de dispersion existantes. À ce titre, un opérateur équivalent de dérivation temporelle $\frac{d}{dt}$ est appliqué à l'équation aux valeurs propres de guides composés de trois ou quatre couches, en considérant ainsi les valeurs des dimensions géométriques de la structure fluctuantes et dépendantes du temps ($dim \equiv dim(t)$), qui impliquent spectralement des valeurs de constante de propagation effectives dépendantes du temps elles aussi ($\beta \equiv \beta(t)$). Les valeurs d'indices et de longueur d'onde d'excitation sont constantes. Cette opération est en quelque sorte équivalente à un propagateur d'évolution appliqué sur les équations aux valeurs propres provoquant la variation des géométries. Nous démontrons qu'un tel procédé donne lieu à des relations analytiques de la forme $\frac{d(dim)}{dt} = f\left(\frac{d\beta}{dt}\right)$ qui rendent possible la représentation de déplacements globaux le long des courbes de dispersion à mesure que les dimensions géométriques de la structure guidante varient. L'opérateur de dérivation temporelle est appliqué sur l'équation aux valeurs propres

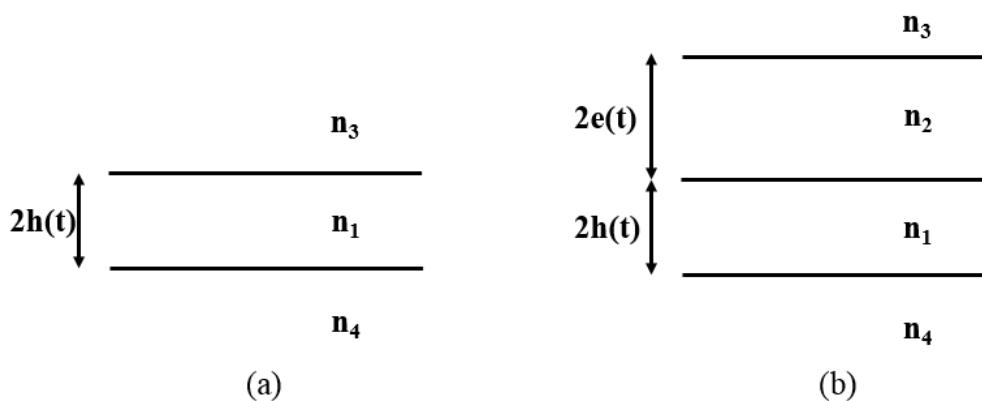


FIGURE 5.1 – a) Représentation schématique d'un guide plan à trois couches; la couche guidante à un indice n_1 et une hauteur $2h$, la gaine supérieure n_3 et la gaine inférieure n_4 sont considérées comme semi-infinies. b) Représentation schématique d'une guide à quatre couches; les indices n_1 et n_2 sont associés respectivement à la couche guidante et à la première gaine supérieure dont les hauteurs sont respectivement $2h$ et $2e$. Les gaines supérieure et inférieure d'indice n_3 et n_4 respectivement sont considérées comme semi-infinies.

de deux structures guidantes de base, ou cas d'école pour le développement de cette technique : les guides plans constitués de trois ou quatre couches. On considère que les variations temporelles des caractéristiques géométriques sont suffisamment lentes pour faire l'approximation d'une évolution adiabatique de la constante de propagation effective. Pour le guide plan trois couches (représenté en Figure 5.1 a)), on considère une évolution temporelle de l'unique dimension au problème, à savoir la hauteur $2h(t)$ de la couche guidante. En ce qui concerne le guide quatre couches, (Figure 5.1 b)), deux cas sont considérés : premièrement, on considère une variation temporelle de la hauteur de la couche guidante $2h(t)$ et une valeur constante de la hauteur de la gaine supérieure $2e(t)$, avant de considérer le cas inverse. Pour ces deux cas de guides plans quatre couches, les deux familles de modes guidés sont étudiées [84].

5.1 Opérateur d'évolution appliqué au cas du guide plan à 3 couches

La Figure 5.1 est une représentation schématique d'un guide plan composé de trois couches. On considère la couche d'indice n_1 ($n_1 > n_3, n_4$) de hauteur $2h \equiv 2h(t)$ comme étant la couche guidante d'une telle structure. Toutes les constantes de propagation des modes guidés doivent donc vérifier $n_1 > n_{eff} > n_3, n_4$, c'est à dire appartenir au cône de lumière de la structure. L'équation aux valeurs propres décrivant un guide trois couches est, comme rappelé au chapitre 2 :

$$2h(t)q = \text{Arctg}\left(\frac{p}{q}\right) + \text{Arctg}\left(\frac{r}{q}\right) + m\pi \quad (5.1)$$

avec $q = \sqrt{(k_0 n_1)^2 - \beta^2}$, $r = \sqrt{\beta^2 - (k_0 n_3)^2}$, $p = \sqrt{\beta^2 - (k_0 n_4)^2}$ et m un entier désignant l'ordre du mode considéré. Les indices optiques agissent dans l'expression de la projection du vecteur d'onde perpendiculaire au plan des couches (en considérant le paradigme de l'optique géométrique, la propagation en "zig-zag" des rayons lumineux et le théorème de Pythagore). On considère la variation temporelle de h et son effet sur la variation temporelle de la constante de propagation effective $\beta \equiv \beta(t)$. Pour ce faire, l'équation précédente est réécrite :

$$h = \frac{\text{Arctg}(\frac{p}{q}) + \text{Arctg}(\frac{r}{q}) + m\pi}{2q} \quad (5.2)$$

Ensuite, un opérateur de dérivation temporelle $\frac{d}{dt}$ est appliqué dans le but d'exprimer $\frac{dh}{dt}$ en fonction de $\frac{d\beta}{dt}$. La première étape du calcul est de déterminer la dérivée des paramètres p , q et r , en considérant des valeurs dépendantes du temps de β , et des valeurs constantes de $k = \frac{2\pi}{\lambda_0}$ et de chaque n_i ($i = 1, 3, 4$).

$$\frac{dq}{dt} = \frac{-\beta}{q} \frac{d\beta}{dt}, \quad \frac{dp}{dt} = \frac{\beta}{p} \frac{d\beta}{dt}, \quad \frac{dr}{dt} = \frac{\beta}{r} \frac{d\beta}{dt} \quad (5.3)$$

À la suite de quoi, les dérivées des arguments de la fonction Arctg dans l'équation 5.2 sont calculées :

$$\frac{d}{dt}(\frac{p}{q}) = \frac{q^2 + p^2}{pq^3} \beta \frac{d\beta}{dt}, \quad \frac{d}{dt}(\frac{r}{q}) = \frac{q^2 + r^2}{rq^3} \beta \frac{d\beta}{dt} \quad (5.4)$$

Ce qui permet de déterminer les dérivées temporelles des deux termes variables présents au numérateur de l'équation 5.2 :

$$\frac{d}{dt}(\text{Arctg}(\frac{p}{q})) = \frac{1}{pq} \beta \frac{d\beta}{dt}, \quad \frac{d}{dt}(\text{Arctg}(\frac{r}{q})) = \frac{1}{rq} \beta \frac{d\beta}{dt} \quad (5.5)$$

À partir de ces expressions, la dérivée de la hauteur de la couche guidante s'écrit :

$$\frac{dh}{dt} = (\frac{1}{2q}(\frac{1}{pq} + \frac{1}{rq}) + \frac{1}{2q^3}(\text{Arctg}(\frac{p}{q}) + \text{Arctg}(\frac{r}{q}) + m\pi)) \beta \frac{d\beta}{dt} \quad (5.6)$$

Ce résultat peut être réécrit et reformulé dans une forme générique :

$$\frac{dh}{dt} = \frac{\alpha_1 + \xi_1(\text{Arctg}(\frac{p}{q}) + \text{Arctg}(\frac{r}{q}) + m\pi)}{\sigma_1} \beta \frac{d\beta}{dt} \quad (5.7)$$

avec $\alpha_1 = (r + p)q$,

$\xi_1 = rp$,

et $\sigma_1 = 2pq^3r$

5.2 Opérateur d'évolution appliqué au cas du guide plan à 4 couches

En ce qui concerne le guide plan à quatre couches, deux cas sont considérés : premièrement on considère une valeur dépendante du temps de la hauteur de la couche guidante et une valeur constante de la hauteur de la première gaine supérieure ($h \equiv h(t)$ à $e = \text{constante}$); et deuxièmement, le cas inverse ($e \equiv e(t)$ à $h = \text{constante}$). Pour chacune de ces configurations, deux familles de modes guidés existent : (i) une famille de modes fortement confinés avec des valeurs d'indice effectif qui vérifient $n_1 > n_{eff} > n_2 > n_3, n_4$ et (ii) une famille de modes plus faiblement confinés qui vérifient $n_1 > n_2 > n_{eff} > n_3, n_4$. Ces deux familles sont étudiées en parallèle grâce à une double notation dans les équations suivantes : la notation supérieure $\left| \blacksquare \right|$ correspond à la famille de modes vérifiant la condition (i) et la notation inférieure $\left| \blacksquare \right|$ se reporte à la condition (ii). La structure d'un guide plan à quatre couches est schématisée en Figure 5.1. L'équation aux valeurs propres décrivant le comportement d'un tel guide d'onde est :

$$2hq = \text{Arctg}\left(\frac{p}{q}\right) + \text{Arctg}\left(\frac{s}{q} \left| \begin{array}{l} th(\text{Arcth}(\frac{r}{s}) + 2es) \\ tg(\text{Arctg}(\frac{r}{s}) - 2es) \end{array} \right| \right) \quad (5.8)$$

avec q , r et p définis de manière similaire au guide à trois couches, puis $s = \frac{\sqrt{\beta^2 - (k_0 n_2)^2}}{\sqrt{(k_0 n_2)^2 - \beta^2}}$. De manière à obtenir les effets de variation de hauteur de la couche guidante, l'équation 5.8 est réécrite :

$$h = \frac{\text{Arctg}\left(\frac{p}{q}\right) + \text{Arctg}\left(\frac{s}{q} \left| \begin{array}{l} th(\text{Arcth}(\frac{r}{s}) + 2es) \\ tg(\text{Arctg}(\frac{r}{s}) - 2es) \end{array} \right| \right) + m\pi}{2q} \quad (5.9)$$

Les dérivées temporelles de q , r et p sont données dans l'équation 5.3, et $\frac{ds}{dt}$ vérifie :

$$\frac{ds}{dt} = \frac{\left| \begin{array}{c} + \\ - \end{array} \right| \beta}{s} \frac{d\beta}{dt} \quad (5.10)$$

Ce qui permet de calculer les dérivées des différents rapports :

$$\frac{d}{dt} \left(\frac{p}{q} \right) = \frac{q^2 + p^2}{pq^3} \beta \frac{d\beta}{dt}, \quad \frac{d}{dt} \left(\frac{r}{s} \right) = \frac{s^2 \left| \begin{array}{c} - \\ + \end{array} \right| r^2}{rs^3} \beta \frac{d\beta}{dt}, \quad \frac{d}{dt} \left(\frac{s}{q} \right) = \frac{s^2 \left| \begin{array}{c} + \\ - \end{array} \right| q^2}{sq^3} \beta \frac{d\beta}{dt} \quad (5.11)$$

Ainsi que les dérivées des fonctions Arctg et Arcth :

$$\frac{d}{dt} (\text{Arctg}(\frac{p}{q})) = \frac{1}{pq} \beta \frac{d\beta}{dt}, \quad \frac{d}{dt} \left(\frac{\text{Arcth}(\frac{r}{s})}{\text{Arctg}(\frac{r}{s})} \right) = \frac{1}{rs} \beta \frac{d\beta}{dt} \quad (5.12)$$

Afin de continuer les calculs et d'alléger les notations, on définit :

$$\tau_h = \left| \frac{\text{th}(\text{Arcth}(\frac{r}{s}) + 2es)}{\text{tg}(\text{Arctg}(\frac{r}{s}) - 2es)} \right| \quad (5.13)$$

La dérivée de cette quantité par rapport au temps s'écrit sous la forme :

$$\frac{d\tau_h}{dt} = \frac{(1 \left| \begin{array}{c} + \\ - \end{array} \right| 2ers) \left| \begin{array}{c} - \\ + \end{array} \right| (1 \left| \begin{array}{c} + \\ - \end{array} \right| 2ers) \tau_h^2}{rs} \beta \frac{d\beta}{dt} \quad (5.14)$$

Ce qui permet de déduire la dérivée du deuxième terme du numérateur de l'équation 5.9 :

$$\frac{d}{dt} (\text{Arctg}(\frac{s}{q} \tau_h)) = \frac{\Theta}{\Gamma} \beta \frac{d\beta}{dt} \quad (5.15)$$

avec tous calculs menés, $\Theta = (sq^2 \left| \begin{array}{c} + \\ - \end{array} \right| 2erq^2s^2) + (rs^2 \left| \begin{array}{c} + \\ - \end{array} \right| rq^2) \tau_h \left| \begin{array}{c} - \\ + \end{array} \right| (sq^2 \left| \begin{array}{c} + \\ - \end{array} \right| 2erq^2s^2) \tau_h^2$,

et $\Gamma = (rsq^3 + rqs^3)\tau_h^2$

Ensuite, en combinant les résultats précédents et en simplifiant les expressions, la dérivée temporelle de la hauteur de la couche guidante est alors donnée par :

$$\frac{dh}{dt} = \frac{\alpha_h + \gamma_h\tau_h + \kappa_h\tau_h^2 + \xi_h(\text{Arctg}(\frac{p}{q}) + \text{Arctg}(\frac{s}{q}\tau_h) + m\pi)}{\sigma_h + \chi_h\tau_h^2} \beta \frac{d\beta}{dt} \quad (5.16)$$

avec une fois agencée, $\alpha_h = rsq^3 + psq^3 \left| \begin{array}{c} + \\ - \end{array} \right| 2eprs^2q^3$,

$$\gamma_h = prqs^2 \left| \begin{array}{c} + \\ - \end{array} \right| prq^3,$$

$$\kappa_h = prs^3 + psq^3 \left| \begin{array}{c} + \\ - \end{array} \right| 2eprs^3q^3,$$

$$\xi_h = 2prs^2 + 2prs^3,$$

$$\sigma_h = 2prs^5,$$

$$\chi_h = 2prq^3s^3\tau_h^2$$

Bien que l'équation 5.9 soit pertinente pour étudier le premier cas ($h \equiv h(t)$ et $e = \text{constante}$), elle est de forme peu appropriée pour le second. Ainsi pour étudier le cas $h = \text{constante}$ et $e \equiv e(t)$, elle est reformulée en :

$$e = \frac{\left| \begin{array}{c} -\text{Arcth} \\ \text{Arctg} \end{array} \right| \left(\frac{r}{s} \right) \left| \begin{array}{c} +\text{Arcth} \\ -\text{Arctg} \end{array} \right| \left(\frac{q}{s} \text{tg}(2hq - m\pi - \text{Arctg}(\frac{p}{q})) \right)}{2s} \quad (5.17)$$

Ici, dans le but de déterminer une relation entre $\frac{de}{dt}$ et $\frac{d\beta}{dt}$, la même méthodologie que celle utilisée auparavant est appliquée. Le calcul de la dérivée temporelle du rapport $\frac{q}{s}$ permet donc de déterminer :

$$\frac{d}{dt} \left(\frac{q}{s} \right) = \frac{\left| \begin{array}{c} - \\ + \end{array} \right| q^2 - s^2}{qs^3} \beta \frac{d\beta}{dt} \quad (5.18)$$

Ensuite on définit un paramètre τ_e analogue au paramètre τ_h introduit précédemment, de manière à calculer sa dérivée temporelle :

$$\tau_e = tg(2hq - m\pi - Arctg(\frac{p}{q})) \quad (5.19)$$

$$\frac{d\tau_e}{dt} = \frac{(-2hp - 1) - (2hp + 1)\tau_e^2}{pq} \beta \frac{d\beta}{dt} \quad (5.20)$$

Ensuite le calcul de la dérivée du second terme du numérateur de l'équation 5.17 est mené :

$$\frac{d}{dt} \left(\left| \frac{Arcth}{Arctg} \right| \left(\frac{q}{s} \tau_e \right) \right) = \frac{\Delta}{Z} \beta \frac{d\beta}{dt} \quad (5.21)$$

avec, après agencement, $\Delta = (-2hpqs^2 - qs^2) + \left(\left| \frac{-}{+} \right| pq^2 - ps^2 \right) \tau_e - (2hpqs^2 + qs^2) \tau_e^2$,

$$Z = pq s^2 \left| \frac{-}{+} \right| psq^3 \tau_e^2$$

Enfin, en combinant les résultats précédents, la dérivée temporelle de e s'exprime :

$$\frac{de}{dt} = \frac{\alpha_e + \gamma_e \tau_e + \kappa_e \tau_e^2 \left| \frac{-}{+} \right| \xi_e \left(\left| \frac{Arcth}{Arctg} \right| \left(\frac{r}{s} \right) - \left| \frac{Arcth}{Arctg} \right| \left(\frac{q}{s} \tau_e \right) \right)}{\sigma_e + \chi_e \tau_e^2} \beta \frac{d\beta}{dt} \quad (5.22)$$

$$\text{avec } \alpha_e = \left| \frac{-}{+} \right| (2hpqrs^3 + pqs^3 + prs^3),$$

$$\gamma_e = -(prsq^2 + prs^3),$$

$$\kappa_e = \left| \frac{-}{+} \right| (2pqr s^3 \left| \frac{-}{+} \right| psq^3 + rqs^3),$$

$$\xi_e = pqr s^2 \left| \frac{-}{+} \right| prq^3 \tau_e^2,$$

$$\sigma_e = 2pqr s^5,$$

$$\chi_e = \left| \frac{-}{+} \right| prs^3 q^3$$

Cette analyse fournit un lien analytique (avec symétries dans les expressions) entre la variation des caractéristiques géométriques de structures photoniques guidantes (ici

des guides plans à trois et quatre couches), et les changements induits des constantes de propagation correspondant aux familles de courbes de dispersions spectrales de toutes les structures de ce type. Chaque cas étudié ici résulte dans la même architecture générique de relation, bien que des différences sont remarquables. Les différences entre les guides à trois et quatre couches sont facilement identifiables ; elles reposent sur la présence du facteur τ_h (respectivement τ_e) défini par l'équation 5.13 (respectivement l'équation 5.19) aussi présent dans l'équation finale 5.16 (respectivement l'équation 5.22). Concernant les expressions de la variation de la couche guidante de la famille des guides à quatre couches pour les modes fortement et faiblement guidés du cône de lumière, les seules différences concernent leur signe et l'expression de τ_h . De telles différences de signe sont partiellement dues à la définition du paramètre s dont la dérivée temporelle n'est différente que par le signe entre les modes fortement et faiblement guidés. L'autre cause de ces changements de signe est due à la fois aux fonctions tangente hyperbolique et arctangente hyperbolique dans la configuration des modes fortement confinés, à la place des fonctions tangente puis arctangente conventionnelles dans la famille des modes faiblement guidés. Naturellement, la dérivation temporelle de ces fonctions ne produit que des signes différents. Enfin, la différence principale entre les relations décrivant la variations temporelles de la couche guidante, et celles décrivant les variations temporelles de la première gaine supérieure est leur dépendance vis-à-vis de l'ordre m du mode considéré. En effet, dans le cas d'une variation temporelle de la couche guidante, cette dépendance est proportionnelle au facteur ξ_h tandis que dans le cas d'une variation temporelle de la première gaine supérieure, l'ordre m du mode est présent dans l'expression de τ_e . Par conséquent, l'influence de l'ordre du mode est plus importante dans le cas d'une variation temporelle de la hauteur de la première gaine supérieure.

5.3 Implémentations numériques et discussions

Des implémentations numériques des relations précédentes ont été réalisées à l'aide de programmes Matlab. Ces implémentations ont pour but de visualiser la dérivée temporelle de l'indice effectif ($\frac{dn_{eff}}{dt} = \frac{1}{k} \frac{d\beta}{dt}$) en fonction du temps pour différents ensembles de paramètres opto-géométriques et pour différents **taux de**

variation des caractéristiques géométriques de la structure étudiée ($\frac{dh}{dt}$ et $\frac{de}{dt}$). Pour tous les calculs suivants, nous considérons des valeurs négatives de $\frac{dh}{dt}$ et $\frac{de}{dt}$, c'est à dire des valeurs décroissantes de h et e en fonction du temps, une longueur d'onde $\lambda = 0.8\mu m$, et seul le premier mode ($m = 0$) est étudié. Considérons

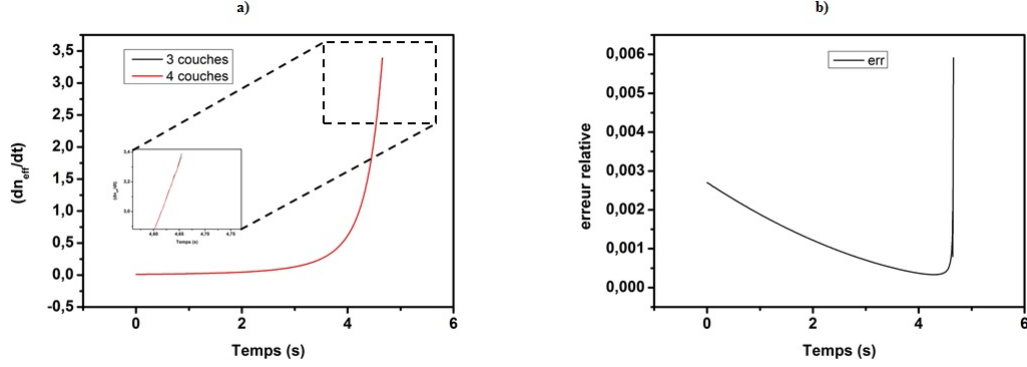


FIGURE 5.2 – Cas asymptotique. a) Tracé de $\frac{dn_{eff}}{dt}$ en fonction du temps pour deux structures différentes : la courbe noire concerne un guide à trois couches (équation 5.7) et la courbe rouge un guide à quatre couches (équation 5.16) pour lequel la hauteur e de la première gaine supérieure tend vers l'infini. Les autres paramètres sont : $2h_{t=0s} = 1\mu m$, $\frac{dh}{dt} = -0.1\mu m.s^{-1}$ et $(n_1; n_3; n_4) = (2; 1.5; 1)$ pour le guide à trois couches et $(n_1; n_2; n_3; n_4) = (2; 1.5; 1; 1)$ pour le guide à quatre couches. b) Erreur relative entre les deux cas décrits en a).

tout d'abord le cas asymptotique. La Figure 5.2 a) représente $\frac{dn_{eff}}{dt}$ en fonction du temps pour un guide à trois couches et un guide à quatre couches pour lesquels $2e \mapsto \infty$. Ces deux structures présentent le même ensemble de paramètres (indices de réfraction, hauteur initiale de la couche guidante, taux de variation de cette hauteur) dans le but de comparer les résultats de manière pertinente. L'erreur relative entre ces deux courbes est représentée en Figure 5.2 b). Ce graphe montre que ces deux cas sont numériquement équivalents, avec une erreur relative maximale de 0.6%. L'erreur relative maximale se produit à la fin de la décroissance de la hauteur de la couche guidante, c'est à dire quand $2h$ est proche de la hauteur de coupure du mode. Regardons maintenant l'influence du taux de variation des caractéristiques géométriques. Pour ce faire, nous traçons $\frac{dn_{eff}}{dt}$ en fonction du temps (Figure 5.3 a)) pour une structure à quatre couches et un taux de variation de la hauteur $2h$ de la couche guidante pour trois valeurs différentes de ce taux : $\frac{dh}{dt} = -0.1\mu m.s^{-1}; -0.5\mu m.s^{-1}; -1\mu m.s^{-1}$. Les autres paramètres sont la

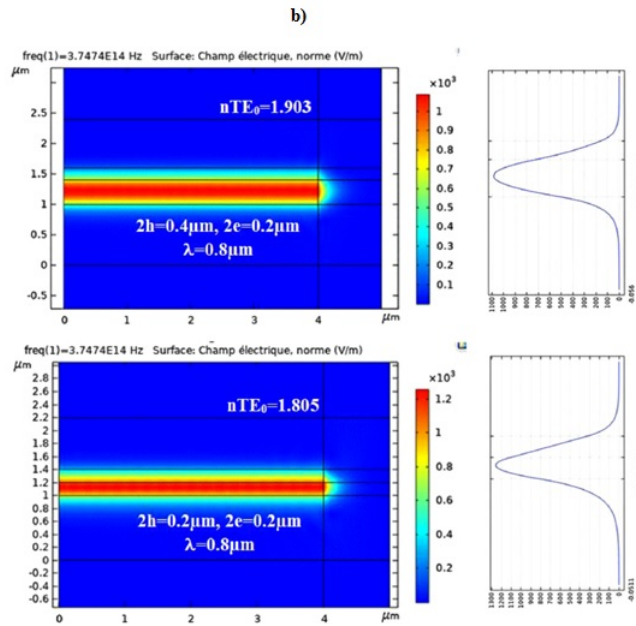
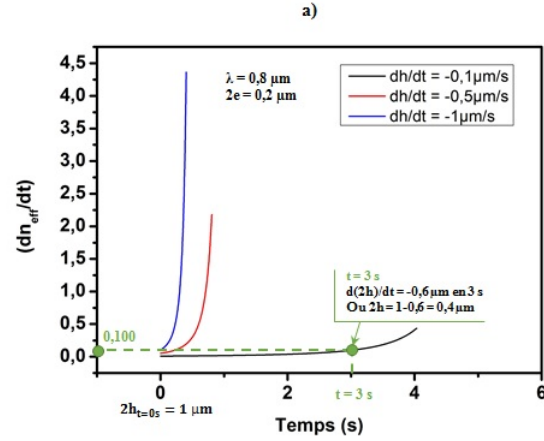


FIGURE 5.3 – a) Tracé de $\frac{dn_{eff}}{dt}$ en fonction du temps pour le premier mode fortement guidé d'un guide à quatre couches (équation 5.16) pour trois taux de variations de la hauteur h différents : $\frac{dh}{dt} = -0.1 \mu m.s^{-1}$; $-0.5 \mu m.s^{-1}$; $-1 \mu m.s^{-1}$. Les autres paramètres sont : $2h_{t=0s} = 1 \mu m$, $2e = 0.2 \mu m$ et $(n_1; n_2; n_3; n_4) = (2; 1.8; 1; 1.5)$. Par exemple, dans le premier cas, la pente à $t = 3s$ (ou $2h = 0.4 \mu m$) est de $\Delta n_{eff} = 0.100$. b) Les simulations réalisées à l'aide du logiciel COMSOL associé au point $2h = 0.4 \mu m$ de la courbe précédente. Avec COMSOL, la pente est calculée par la différence Δn_{eff} entre deux structures fixes pour lesquelles $2h = 0.4 \mu m$ ($t = 3s$) et $2h = 0.2 \mu m$ ($t = 4s$) : $\Delta n_{eff} = 0.098$.

hauteur initiale de la couche guidante, $2h_{(t=0s)} = 1 \mu m$, la hauteur de la première gaine supérieure $2e = 0.4 \mu m$ et le jeu d'indices $(n_1; n_2; n_3; n_4) = (2; 1.8; 1; 1.5)$. La

Figure 5.3 a) montre que les rapports entre les différentes valeurs de $\frac{dn_{eff}}{dt}$ sont égaux aux rapports entre les valeurs de $\frac{dh}{dt}$, ce qui est facilement prédictible via l'équation 5.9. Concernant les valeurs des temps au bout desquels le mode disparaît, leurs rapports sont égaux à l'inverse des rapports entre les $\frac{dh}{dt}$ correspondant. De plus, une simulation réalisée à l'aide du logiciel commercial COMSOL corrobore ces résultats, cette fois en considérant deux structures proches et en calculant le taux de variation Δn_{eff} (Figure 5.3 b)). L'influence du jeu d'indices est quant à elle étudiée sur la Figure 5.4, qui représentent l'évolution de $\frac{dn_{eff}}{dt}$ en fonction du temps pour un guide à quatre couches dont la valeur de la hauteur de la première gaine supérieure varie, dans le cas de modes fortement et faiblement guidés respectivement. Les paramètres utilisés pour cette simulation sont : $2h_{t=0} = 0.4\mu m$, $2e_{t=0} = 1\mu m$, $\frac{de}{dt} = -0.1\mu m.s^{-1}$ et les jeux d'indices étudiés sont $(n_1; n_2; n_3; n_4) = (2; 1.5; 1; 1); (2; 1.8; 1; 1.5); (2; 1.8; 1.5; 1.5)$. On peut voir sur ces graphes que plus le mode est confiné (grande différence entre les valeurs d'indices), plus la pente est abrupte. Une autre propriété remarquable est que la courbe rouge commence à croître avant la bleue, qui elle-même commence à croître avant la noire. La raison en est que la partie évanescente (mode fortement confiné) ou la partie oscillante (mode faiblement confiné) présentes dans la couche d'indice n_2 sont plus sensibles à l'indice n_3 dans le cas représenté par la courbe rouge parce que la différence $n_2 - n_3$ est plus grande. Concernant la courbe noire, comme la différence $n_1 - n_2$ est plus grande que pour les deux autres cas, il y a moins d'énergie dans la couche d'indice n_2 donc l'influence de la couche d'indice n_3 est moins grande. De manière similaire, les simulations réalisées à l'aide du logiciel COMSOL prouvent la correspondance en termes de variation de la valeur propre à mesure que les dimensions de la structure évoluent au cours de temps (Figure 5.4 b)).

Ce travail présente la dérivation temporelle des équations aux valeurs propres (analytiques) de différentes familles de structures guidantes à trois et quatre couches, dans le cas d'une évolution temporelle de leurs caractéristiques géométriques. Cette opération fournit un lien analytique entre l'évolution de ces caractéristiques géométriques et celle de la constante de propagation effective de la structure considérée. Comme les relations trouvées sont entièrement analytiques, elles sont facilement implémentables pour obtenir une résolution numérique.

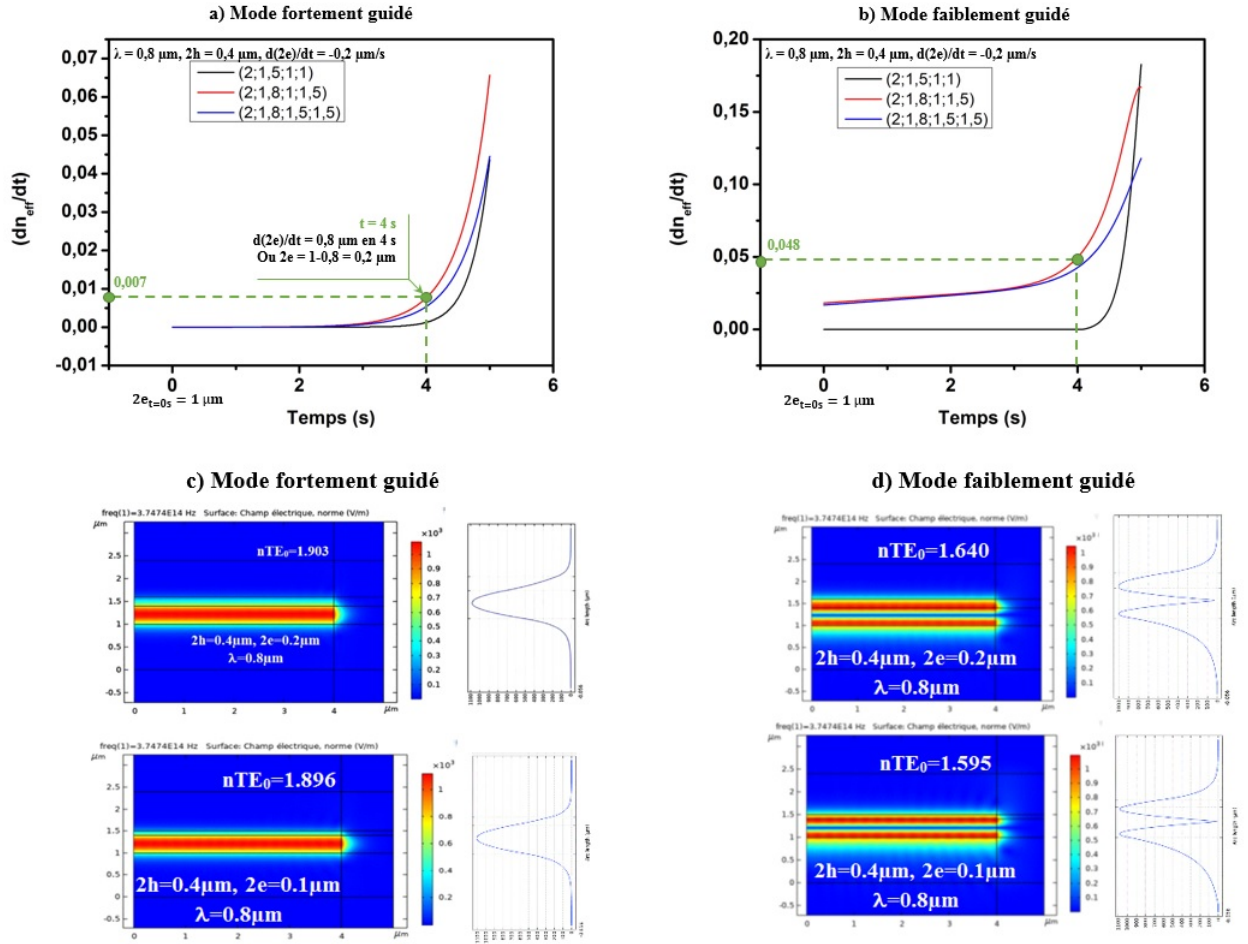


FIGURE 5.4 – Tracé de $\frac{dn_{eff}}{dt}$ en fonction du temps pour a) le premier mode fortement guidé et b) le premier mode faiblement guidé d'un guide plan à quatre couches dans le cas d'une variation de la hauteur e de la première gaine supérieure (équation 5.22) et pour différents jeux d'indices : $(n_1; n_2; n_3; n_4) = (2; 1.5; 1; 1); (2; 1.8; 1; 1.5); (2; 1.8; 1.5; 1.5)$. Les autres paramètres sont $2h = 0.4\mu m$, $2e_{t=0} = 1\mu m$ et $\frac{de}{dt} = -0.1\mu m.s^{-1}$. Par exemple, la pente à $t = 4s$ est respectivement $\Delta n_{eff} = 0.007$ et 0.048 pour les modes fortement et faiblement guidés. c) et d) représentent les simulations COMSOL associées aux points particuliers en a) et b). Avec COMSOL, la pente est calculée par une différence Δn_{eff} entre deux structures fixes $2e = 0.5\mu m$ ($t = 4s$) et $2e = 0.1\mu m$ ($t = 4.5s$) : $\Delta n_{eff} = 0.007$ et 0.045 respectivement.

Chapitre 6

Vers une description théorique des courbes de dispersion d'une structure de type résonateur par la formulation variationnelle des couches : applications à des phénomènes de sédimentation, croissance ou dépôt puis attaque de couches

Ce chapitre a pour but d'explorer les possibilités précédemment développées sur les structures planes adaptées pour la description théorique de résonateurs photoniques (tout d'abord circulaires), et notamment de leurs caractéristiques spectrales et de leurs évolutions au cours du temps en présence d'un phénomène de sédimentation, de dépôt/croissance ou encore d'attaque de couches. Dans la première section, il est question de la description analytique d'un guide plan courbé et la possibilité de

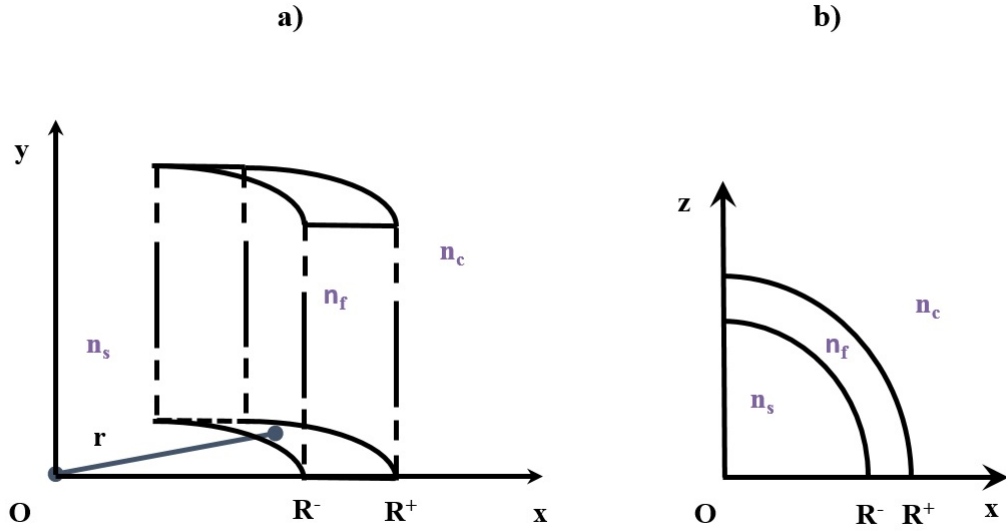


FIGURE 6.1 – Représentation schématique d’un guide plan comportant un rayon de courbure. La dimension du guide suivant la direction y est infinie.

déterminer numériquement ses courbes de dispersion modales et constantes de propagation effectives associées. La deuxième section quant à elle, porte sur l’application de la méthode de Marcatili ‘greffée’ à un guide courbé de section rectangulaire, ainsi qu’à l’utilisation des expressions développées au cours du chapitre précédent dans le but de décrire, en associant ces deux méthodes, le comportement de micro-structures résonantes avec la couche supérieure variant au cours du temps.

6.1 Étude théorique d’un guide d’onde plan présentant un rayon de courbure

Afin de décrire le champ électrique dans un guide courbé (représenté en Figure 6.1), le système de coordonnées cylindriques est choisi. Dans ce système de coordonnées, et en considérant le mode TE le champ électrique vérifie l’équation de Bessel *d’ordre complexe* $\nu = \gamma R$:

$$\frac{\partial^2 E_y}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial E_y}{\partial r} + \left(n^2 k^2 - \frac{\gamma^2 R^2}{r^2} \right) E_y = 0 \quad (6.1)$$

avec n l'indice de réfraction de la couche considérée, k le nombre d'onde dans le vide, R le rayon de courbure moyen du guide, et $\gamma = \beta - i\alpha$ la constante de propagation du mode ; β et α sont des réels positifs et représentent donc autant les mécanismes liés à la propagation et aux pertes. La prise en compte des pertes est non négligeable du fait de la courbure du guide (lorsque R est faible), qui a pour effet une plus grande interaction entre la queue évanescente et le milieu environnant. Les conditions limites de résolution de cette équation sont $E_y(0) \mapsto 0$ et $E_y(+\infty) \mapsto 0$, ce qui détermine le choix des fonctions de Bessel pour chaque zone [85, 86] ; il vient :

$$E_y(r) = \begin{cases} A_s J_\nu(n_s k r) & , \quad 0 \leq r \leq R^- \\ A_f J_\nu(n_f k r) + B_f Y_\nu(n_f k r) & , \quad R^- \leq r \leq R^+ \\ A_c H_\nu^{(2)}(n_c k r) & , \quad r \geq R^+ \end{cases} \quad (6.2)$$

Avec A_s, A_f, B_f et A_c des constantes d'intégration, n_s, n_f et n_c les indices optiques associés à chacune des zones considérées, R^- et R^+ les rayons intérieur et extérieur du guide (voir Figure 6.1), J_ν et Y_ν les fonctions de Bessel du premier et du deuxième ordre, et $H_\nu^{(2)}$ la fonction de Haenkel du second ordre. Le choix des fonctions utilisées dans chacune des régions est déterminé par les conditions limites explicitées précédemment.

Pour trouver l'équation aux valeurs propres et les relations entre les différentes constantes d'intégration (de manière à diminuer leur nombre et exprimer certaines en fonction d'autres), on utilise la continuité du champ électrique et de sa dérivée par rapport à la composante r aux différentes interfaces :

$$\left\{ \begin{array}{l} A_s J_\nu(n_s k R^-) = A_f J_\nu(n_f k R^-) + B_f Y_\nu(n_f k R^-) \quad (1) \\ n_s A_s J'_\nu = n_f A_f J'_\nu(n_f k R^-) + B_f Y'_\nu(n_f k R^-) \quad (2) \\ A_f J_\nu(n_f k R^+) + B_f Y_\nu(n_f k R^+) = A_c H_\nu^{(2)}(n_c k R^+) \quad (3) \\ n_f A_f J'_\nu(n_f k R^+) + n_f B_f Y'_\nu(n_f k R^+) = n_c A_c H_\nu^{(2)'}(n_c k R^+) \quad (4) \end{array} \right. \quad (6.3)$$

6.1.1 Détermination de l'équation aux valeurs propres

En divisant l'équation 6.3 (1) par l'équation 6.3 (2), la constante A_s s'élimine et une relation peut ainsi être établie entre A_f et B_f :

$$\frac{1}{n_s} \frac{J_\nu(n_s k R^-)}{J'_\nu(n_s k R^-)} = \frac{1}{n_f} \frac{A_f J_\nu(n_f k R^-) + B_f Y_\nu(n_f k R^-)}{A_f J'_\nu(n_f k R^-) + B_f Y'_\nu(n_f k R^-)} \quad (6.4)$$

À partir de cette équation, il est facilement démontrable que :

$$\frac{A_f}{B_f} = \frac{\frac{Y_\nu(n_f k R^-)}{J_\nu(n_s k R^-)} - q_s \frac{Y'_\nu(n_f k R^-)}{J'_\nu(n_s k R^-)}}{q_s \frac{J'_\nu(n_f k R^-)}{J'_\nu(n_s k R^-)} - \frac{J_\nu(n_f k R^-)}{J_\nu(n_s k R^-)}} \quad (6.5)$$

avec $q_s = \frac{n_f}{n_s}$. Par la même méthode mais en procédant avec les équations 6.3 (3) et 6.3 (4), une autre expression de $\frac{A_f}{B_f}$ émerge :

$$\frac{A_f}{B_f} = \frac{q_c \frac{Y'_\nu(n_f k R^+)}{H_\nu^{(2)'}(n_c k R^+)} - \frac{J_\nu(n_f k R^+)}{H_\nu^{(2)}(n_c k R^+)}}{\frac{J_\nu(n_f k R^+)}{H_\nu^{(2)}(n_c k R^+)} - q_c \frac{J'_\nu(n_f k R^+)}{H_\nu^{(2)'}(n_c k R^+)}} \quad (6.6)$$

avec $q_c = \frac{n_f}{n_c}$. En égalisant ces deux expressions puis en les réorganisant, l'équation aux valeurs propres se déduit :

$$\frac{\frac{J_\nu(n_f k R^-)}{J_\nu(n_s k R^-)} - q_s \frac{J'_\nu(n_f k R^-)}{J'_\nu(n_s k R^-)}}{\frac{Y_\nu(n_f k R^-)}{J_\nu(n_s k R^-)} - q_s \frac{Y'_\nu(n_f k R^-)}{J'_\nu(n_s k R^-)}} = \frac{\frac{J_\nu(n_f k R^+)}{H_\nu^{(2)}(n_c k R^+)} - q_c \frac{J'_\nu(n_f k R^+)}{H_\nu^{(2)'}(n_c k R^+)}}{\frac{Y_\nu(n_f k R^+)}{H_\nu^{(2)}(n_c k R^+)} - q_c \frac{Y'_\nu(n_f k R^+)}{H_\nu^{(2)'}(n_c k R^+)}} \quad (6.7)$$

Une fois l'équation aux valeurs propres déterminée, il faut désormais en déduire des relations entre les différentes constantes d'intégration afin de pouvoir déterminer l'expression générique du champ dans le guide.

6.1.2 Détermination des constantes d'intégration

Afin de se débarrasser des constantes d'intégration dans l'expression du champ électrique dans l'équation 6.3, la méthode utilisée est d'exprimer toutes les constantes en fonction d'une seule (ici A_s) puis de diviser le champ par cette constante. Deux relations entre A_f et B_f ont déjà été obtenues, la première sera utilisée. Pour plus

de clarté, on pose $Q_{X_i Y_i} = \frac{X_i}{Y_i}$ avec $X, Y = A, B$ et $i, j = s, f, c$. La relation entre A_f et B_f peut donc s'écrire :

$$Q_{B_f A_f} = \frac{q_s \frac{J'_\nu(n_f k R^-)}{J'_\nu(n_s k R^-)} - \frac{J_\nu(n_f k R^-)}{J_\nu(n_s k R^-)}}{\frac{Y_\nu(n_f k R^-)}{J_\nu(n_s k R^-)} - q_s \frac{Y'_\nu(n_f k R^-)}{J'_\nu(n_s k R^-)}} \quad (6.8)$$

L'équation 6.3 (1) peut donc se reformuler et s'écrire :

$$A_s J_\nu(n_s k R^-) = A_f J_\nu(n_f k R^-) + Q_{B_f A_f} A_f Y_\nu(n_f k R^-) \quad (6.9)$$

D'où l'expression de $Q_{A_f A_s}$ est déduite :

$$Q_{A_f A_s} = \frac{\frac{Y_\nu(n_f k R^-)}{J_\nu(n_s k R^-)} - q_s \frac{Y'_\nu(n_f k R^-)}{J'_\nu(n_s k R^-)}}{\frac{2J_\nu(n_f k R^-)Y'_\nu(n_f k R^-)}{J_\nu^2(n_s k R^-)} - \frac{J_\nu(n_f k R^-)Y'_\nu(n_f k R^-) + Y_\nu(n_f k R^-)J'_\nu(n_f k R^-)}{J_\nu(n_s k R^-)J'_\nu(n_s k R^-)}} \quad (6.10)$$

À partir de ces deux expressions, il semble évident que :

$$Q_{B_f A_s} = Q_{B_f A_f} Q_{A_f A_s} = \frac{\frac{J_\nu(n_f k R^-)}{J_\nu(n_s k R^-)} - q_s \frac{J'_\nu(n_f k R^-)}{J'_\nu(n_s k R^-)}}{\frac{2J_\nu(n_f k R^-)Y_\nu(n_f k R^-)}{J_\nu^2(n_s k R^-)} - \frac{J_\nu(n_f k R^-)Y'_\nu(n_f k R^-) + Y_\nu(n_f k R^-)J'_\nu(n_f k R^-)}{J_\nu(n_s k R^-)J'_\nu(n_s k R^-)}} \quad (6.11)$$

A_c est la dernière constante à exprimer en fonction de A_s . En réécrivant l'équation 6.3 (3) en tenant compte des relations obtenues précédemment, il vient :

$$Q_{A_f A_s} A_s J_\nu(n_f k R^+) + Q_{B_f A_s} A_s Y_\nu(n_f k R^+) = A_c H_\nu^{(2)}(n_c k R^+) \quad (6.12)$$

D'où il est possible de déduire :

$$Q_{A_c A_s} = \frac{\frac{J_\nu(n_f k R^+)Y'_\nu(n_f k R^-) - Y_\nu(n_f k R^+)J'_\nu(n_f k R^-)}{J_\nu(n_s k R^-)} - q_s \frac{J_\nu(n_f k R^+)Y'_\nu(n_f k R^-) - Y_\nu(n_f k R^+)J'_\nu(n_f k R^-)}{J'_\nu(n_s k R^-)}}{\frac{2J_\nu(n_f k R^-)Y_\nu(n_f k R^-)H_\nu^{(2)}(n_c k R^+)}{J_\nu^2(n_s k R^-)} - q_s \frac{J_\nu(n_f k R^-)Y'_\nu(n_f k R^-)H_\nu^{(2)}(n_c k R^+) + Y_\nu(n_f k R^-)J_\nu(n_f k R^-)H_\nu^{(2)}(n_c k R^+)}{J_\nu(n_s k R^-)J'_\nu(n_s k R^-)}} \quad (6.13)$$

À partir de ces expressions, on peut ré-exprimer l'expression du champ E_y considéré :

$$\frac{E_y(r)}{A_s} = \begin{cases} J_\nu(n_s kr) & , \quad 0 \leq r \leq R^- \\ Q_{A_f A_s} J_\nu(n_f kr) + Q_{B_f A_s} Y_\nu(n_f kr) & , \quad R^- \leq r \leq R^+ \\ Q_{A_c A_s} H_\nu^{(2)}(n_c kr) & , \quad r \geq R^+ \end{cases} \quad (6.14)$$

La résolution numérique de l'équation aux valeurs propres 6.7 nécessite une implémentation des fonctions de Bessel *d'ordre complexe* qui ne sont pas disponibles dans les bibliothèques de la plupart des logiciels de calcul (comme Matlab). Les fonctions de Bessel n'ayant pas de formulation analytique connue, il est donc nécessaire d'utiliser des approximations asymptotiques de ces différentes fonctions. Les expressions utilisées dans ce cas sont [85, 87, 88] :

$$H_\nu^{nkr} = \sqrt{\frac{1}{nkr}} e^{-i(nkr - \nu\pi/2 - \pi/4)} \quad (6.15)$$

$$J_\nu(\nu z) = \left(\frac{4\xi}{1-z^2}\right)^{1/4} \left[\frac{Ai(\nu^{2/3}\xi)}{\nu^{1/3}} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{a_k(\xi)}{\nu^{2k}} + \frac{Ai'(\nu^{2/3}\xi)}{\nu^{5/3}} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{b_k(\xi)}{\nu^{2k}} \right] \quad (6.16)$$

$$Y_\nu(\nu z) = -\left(\frac{4\xi}{1-z^2}\right)^{1/4} \left[\frac{Bi(\nu^{2/3}\xi)}{\nu^{1/3}} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{a_k(\xi)}{\nu^{2k}} + \frac{Bi'(\nu^{2/3}\xi)}{\nu^{5/3}} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{b_k(\xi)}{\nu^{2k}} \right] \quad (6.17)$$

avec : $\xi = \left(\frac{3}{2}\right)^{2/3} \left[\ln\left(\frac{1+\sqrt{1-z^2}}{z}\right) - \sqrt{1-z^2} \right]$, Ai et Bi les fonctions d'Airy de première et deuxième espèces, $a_k = \sum_{s=0}^{2k} \mu_s \xi^{-3s/2} u_{2k-s} [(1-z^2)^{-1/2}]$, $b_k = -\xi^{-1/2} \sum_{s=0}^{2k+1} \lambda_s \xi^{-3s/2} u_{2k-s} [(1-z^2)^{-1/2}]$ où $\lambda_s = \frac{\Gamma(3s+1/2)}{9^s \sqrt{\pi} \Gamma(2s+1)}$, $\mu_s = -\frac{6s+1}{6s-1} \lambda_s$, $u_{k+1}(t) = \frac{1}{2} t^2 (1-t^2) u'_k(t) + \frac{1}{8} \int_0^t (1-5t^2) u_k(t') dt'$ $\mu_0 = \lambda_0 = u_0 = 1$.

Cette implémentation ne sera pas effectuée au cours de ce doctorat, mais la méthode de la couche variante au cours du temps à suivre est clairement définie.

6.2 Vers un passage au résonateur photonique circulaire

Au cours du travail réalisé dans la section précédente, le guide, dont les valeurs propres sont déterminées par l'équation 6.7, est considéré comme ayant une dimension infinie dans la direction y . Afin de déterminer la valeur propre d'un résonateur de

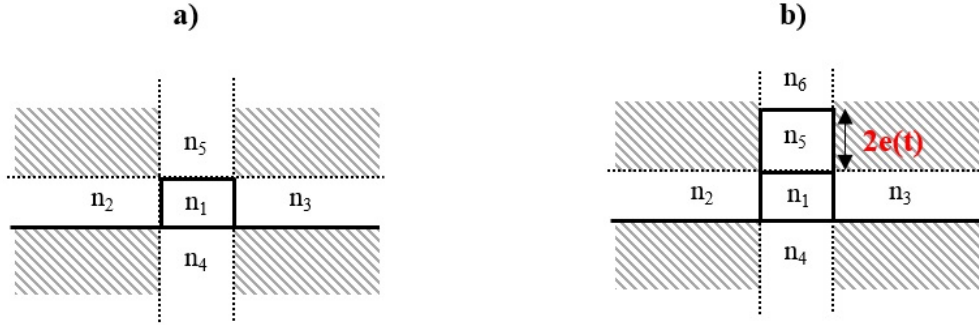


FIGURE 6.2 – Représentation schématique de la méthode de Marcatili a) pour un guide rectangulaire et b) pour un guide rectangulaire comportant une gaine supérieure supplémentaire (4 couches verticales). La hauteur $2e(t)$ de la couche d'indice n_5 varie au cours du temps, de manière analogue au cas traité dans le chapitre précédent.

section carrée, il est nécessaire de faire des approximations. Ici, nous nous intéressons à la possibilité d'utiliser la méthode de Marcatili [81] couplée à la méthode variationnelle du chapitre précédent de manière à déterminer avec le plus de précision possible l'ensemble complet des courbes de dispersion de la structure variante. En effet, il n'existe pas d'équation aux valeurs propres analytiques correspondant au cas d'un guide d'onde rectangulaire (schématisé en Figure 6.2 a)). Afin de calculer une valeur approchée de la constante de propagation, Marcatili a proposé l'idée de séparer le problème en la résolution de l'équation aux valeurs propres de deux guides plans selon les deux directions perpendiculaires. Dans le cas schématisé Figure 6.2 a), en considérant le guide plan comportant les couches d'indice n_1 , n_2 et n_3 (guide 1 g_1), en calculant la valeur propre qui lui est associée, puis en calculant la valeur propre associée à un guide d'onde plan dont les couches ont pour indice n_4 , n_1 et n_5 (guide 2 g_2), la valeur propre de la structure rectangulaire est donnée par :

$$\beta_{rect} = \sqrt{(k_0 n_1)^2 - \beta_{g_2}^2 - \beta_{g_1}^2} \quad (6.18)$$

avec β_{g_1} la valeur propre associée au guide g_1 et β_{g_2} celle associée au guide g_2 . Les indices des régions de l'espace qui sont hachurées sur le schéma (appelées zones d'ombre) ne sont pas prises en compte. Ici, la constante β_{g_1} est obtenue en résolvant l'équation aux valeurs propres associée à un guide dont les couches ont pour indices n_1 , n_2 et n_3 tandis que β_{g_2} est obtenue en résolvant l'équation aux valeurs propres

associée à un guide dont les couches ont pour indices n_1 , n_4 et n_5 . Dans le cas d'un guide d'onde courbé, β_{g_1} est obtenue en résolvant l'équation 6.7, tandis que la valeur de β_{g_2} est obtenue par le biais de l'équation aux valeurs propres du guide plan 2.5. Considérons maintenant le cas où un tel résonateur circulaire possède une couche d'épaisseur variant au cours du temps (croissance dépôt ou attaque de couche). Ce cas de figure est représenté en Figure 6.2 b). Dans ce cas, pour le calcul de β_{g_2} , le guide est composé de quatre couches ; il faut donc utiliser l'équation 5.8. De plus, étant donné la variation au cours du temps de la hauteur de la première gaine supérieure $2e(t)$ provoquant une valeur dépendante du temps de $\beta_{g_2} \equiv \beta_{g_2}(t)$. La valeur de la constante de propagation dans le guide rectangulaire $\beta_{rect} \equiv \beta_{rect}(t)$ est donc aussi dépendante du temps d'après l'équation 6.18. Il est par ailleurs possible de calculer sa dérivée par rapport au temps :

$$\frac{d\beta_{rect}(t)}{dt} = \frac{d}{dt} \sqrt{(k_0 n_1)^2 - \beta_{g_2}(t)^2 - \beta_{g_1}^2} \quad (6.19)$$

et vérifie donc

$$\frac{d\beta_{rect}(t)}{dt} = \frac{-2\beta_{g_2}(t) \frac{d\beta_{g_2}}{dt}}{2\sqrt{(k_0 n_1)^2 - \beta_{g_2}(t)^2 - \beta_{g_1}^2}} \quad (6.20)$$

avec $\frac{d\beta_{g_2}}{dt}$ qui vérifie l'équation 5.17. De cette manière, il est donc possible, à l'aide de programmes numériques, de déterminer l'évolution des courbes de dispersion d'un résonateur photonique circulaire en fonction du temps dans le cas d'une variation de la hauteur de la couche. Au cours de ce chapitre, l'équation aux valeurs propres d'un guide possédant un rayon de courbure a été calculée. Ensuite, en combinant cette équation avec la méthode de Marcatili d'une part et les équations aux valeurs propres associées à des structures guidantes dont les dimensions des couches varient au cours du temps d'autre part, nous avons montré la voie à suivre pour modéliser des phénomènes de croissance, de dépôt, ou d'attaque de couches.

Quatrième partie

Conclusion générale et
perspectives

L'objectif de ce travail de thèse de doctorat a été d'explorer les possibles utilisations de signaux optiques quasi-surfaciques et résonants, créés par des micro-résonateurs photoniques, pour le suivi de processus dynamiques propres à la *matière molle* en étant au contact direct de ces substances tels que des gels, colloïdes crèmes, mousses... (voir Figure 6.3)

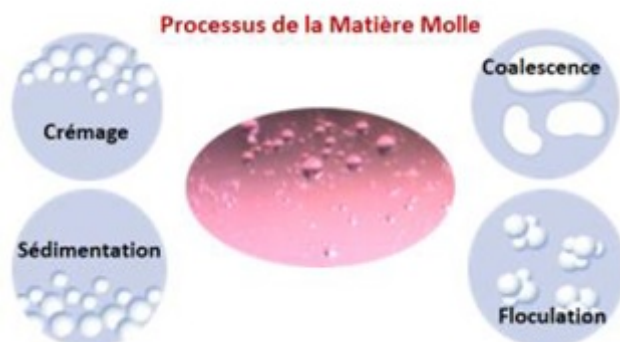


FIGURE 6.3 – Schémas de quelques processus à l'échelle macroscopique de la matière molle (liste non exhaustive).

En première partie de ce travail de thèse, il a été nécessaire de se familiariser avec l'optique intégrée et en particulier les guides d'ondes (dont les 'tapers') puis les composants de types micro-résonateurs. Ces derniers ont été réalisés grâce au développement puis à la maîtrise de procédés de micro-technologie réalisés en salle blanche (NanoRennes - IETR CNRS) en utilisant d'ailleurs le flashage en UV profond suivi d'un développement spécifique au matériau organique utilisé. Ensuite, une plateforme de mesures avec développement de codes d'acquisition et de traitement des données spectrales a été mise en place ainsi que des protocoles d'injection, de test et de caractérisation. Enfin, la prospection des sondes de lumière résonante directement en contact avec des substances de la matière molle pour le suivi de processus dynamiques a fait l'objet des travaux finaux de ce doctorat. En conclusion, il a ainsi été démontré la possibilité de mesurer des transitions de phases gel/fluide de lipides en biologie et d'acides gras en agroalimentaire et cosmétique sur ce principe électromagnétique (lumière) résonant avec plusieurs millions de fois moins de quantité de matière que les méthodes conventionnelles comme la calorimétrie différentielle à balayage (pour la sphingomyéline) et la rhéologie (pour les acides gras). De plus,

dans le cadre des détections et suivi des transitions de phases des acides gras, la technologie résonante de sonde électromagnétique directement mise en contact montre une sensibilité de détection plus fine et une visibilité directe de la transition de phase et modification de la viscosité par rapport aux méthodes conventionnelles utilisées actuellement comme la rhéologie. Nous avons remarqué en effet des comportements non-monotones et d'inversion de pentes des paramètres spectraux de résonances (la pseudo-périodicité des résonances spectrales ou 'ISL', la finesse de celles-ci et la largeur à mi-hauteur 'FWHM'). Enfin, la technologie de sonde résonante a aussi permis de prouver que l'on pouvait suivre et déterminer d'autres phénomènes et processus de la matière molle à son contact comme les vitesses de sédimentation (particules solides au sein d'un fluide) et de crémage (deux phases fluides ensemble).

L'ensemble de ces 'états' et types de substances se retrouvent très généralement

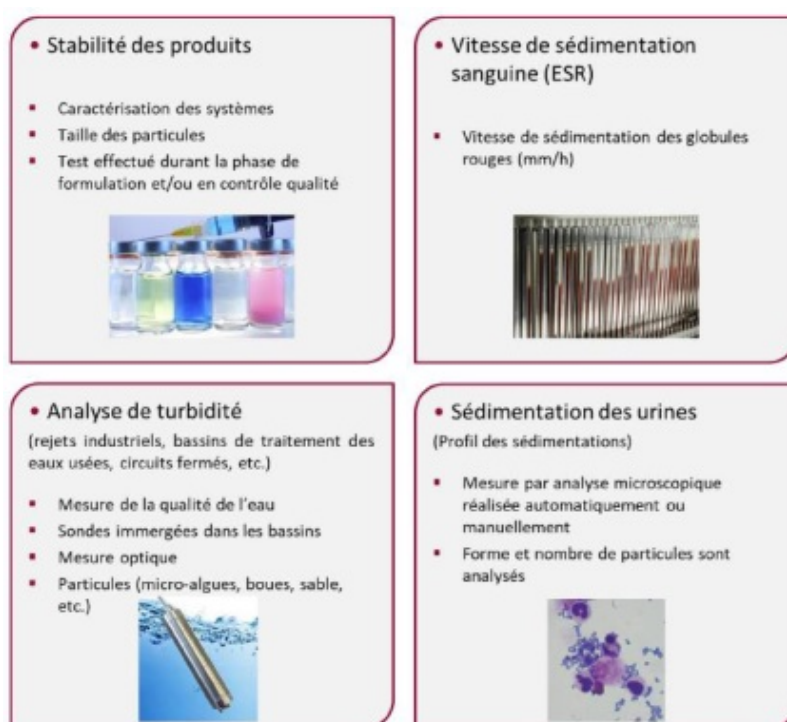


FIGURE 6.4 – Applications potentielles et segmentation de quelques marchés.

dans les industries cosmétiques, agroalimentaire, biomédicales, de pharmacologie galénique, pétrolières... De plus, à différentes étapes de transformation des produits, il est parfois nécessaire d'obtenir une qualification de la substance (forme de contrôle qualité d'une propriété macroscopique spécifique comme la turbidité, la viscosité, la

perte de masse lors d'un séchage) ou encore de suivre une transformation au cours du temps lors d'un stockage sous certaines conditions propres au secteur industriel concerné. Assez naturellement, en étant attentif à certaines substances qu'utilisent ou bien transforment certains industriels, il ressort que les champs d'applications en qualification et stabilité de produits, ou encore suivi de transition de phases (au sens très large du terme) de certaines substances, peuvent émerger dans de nombreux domaines. La Figure 6.4 présente quelques applications potentielles possibles qui pourraient un jour émerger.

En conclusion, durant ce travail de doctorat défini autour de la prospection d'utilisation de lumière résonante en contact direct avec la 'matière molle fluctuante', de nombreuses signatures génériques ont pu être identifiées. Ainsi, la capacité de suivre en dynamique et en direct les processus d'évolution de substances actives (sédimentation, crémage, changement d'état, variation de stabilité/péremption, transitions de phase, changement de viscosité, perte de masse) de manière sensible par ces dites sondes de lumière localisée et connectée à un analyseur de spectres optiques par un logiciel de contrôle et de mesures précédemment développé, a été clairement démontrée. Une perspective pourrait être dorénavant de se focaliser sur certains types d'applications avec marchés ciblés : les mesures de transitions de phases de produits et substances colloïdales à fortes valeurs ajoutées en nutrition et agroalimentaire, lors des transformations industrielles et des stockages (stabilité nutrition et qualification de tels produits), la détermination de la teneur (et de son évolution) en corps gras solides dans certaines colloïdes (actuellement déterminé par RMN pulsée), les déterminations des vitesses de sédimentations des globules rouges (hématies) dans le sang pour le diagnostic médical, l'analyse de 'corps noirs' fortement absorbants qui sont actuellement un enjeu dans certaines industries spécifiques de transformation, ou encore le suivi de disparition/coalescence de charges au sein d'électrolytes spécifiques.

Table des matières

I Une histoire de la résonance	
et	
le minimum théorique à savoir.	6
1 Résonances et résonateurs : histoire du concept et de ses applications	7
1.1 De la musique à la cosmologie : l'harmonie de Pythagore	8
1.2 Les résonances orbitales	9
1.3 Les figures de Chladni	11
1.4 Résonateur de Helmholtz et analyseur de Koenig	12
1.5 Résonances de Schumann	15
1.6 Résonances moléculaires et atomiques : la spectroscopie optique . . .	17
1.7 Quelques exemples d'applications technologiques modernes des résonateurs	19
1.7.1 Laser	19
1.7.2 Micro-balance à quartz	19
1.7.3 Structures anti-sismiques	20
1.8 Conclusion	21
2 Micro-résonateurs photoniques intégrés : le minimum théorique	22
2.1 Propagation de la lumière dans un guide plan ; base du formalisme .	23
2.2 Le couplage évanescent	26
2.3 Fonction de transfert d'un micro-résonateur photonique	28
2.4 Le micro-résonateur photonique pour des applications capteurs . . .	32
2.4.1 Modes de détection	32
2.4.2 Modes d'utilisation	34

II	Microtechnologies et fabrication, Montage et description de la plateforme Applications au suivi de processus dynamiques de la matière molle	37
3	Réalisation des micro-structures résonantes et présentation de la plateforme de tests et caractérisations	38
3.1	Conception et fabrication des circuits résonants	39
3.2	Plateforme expérimentale et description des équipements pour la ca- ractérisation des structures résonantes	43
3.3	Acquisition et traitement de l'information ; codes Matlab	49
4	Mise en oeuvre expérimentale de la plateforme de tests pour des applications en métrologie fine des processus de la matière molle	53
4.1	Suivi du phénomène de condensation/évaporation d'eau	54
4.2	Étude et suivi dynamique du mécanisme d'évaporation d'une goutte d'eau sessile : mesure de perte de masse et micro-balance photonique	59
4.2.1	Description physique du phénomène d'évaporation	60
4.2.2	Détermination de la loi d'évolution dynamique de l'épaisseur de la goutte durant l'évaporation : imagerie de profil	62
4.2.3	Suivi du mécanisme dynamique d'évaporation sous signal op- tique résonant	63
4.2.4	Suivi de l'évolution de la masse de la goutte au cours de son évaporation ; vers des mesures de perte de masse par le biais de circuits optiques résonants	66
4.3	Mesures de vitesse de sédimentation par des circuits et signaux pho- toniques résonants	68
4.3.1	Description physique de la sédimentation : mécanique de New- ton, d'Archimède et de Stokes	69
4.3.2	Description du protocole expérimental	71
4.3.3	Mesures photoniques de résonance et résultats expérimentaux	72
4.4	Détection et dynamique de transition de phase d'espèces biochimiques : applications en biologie et cosmétique	76

4.4.1	Résultats préliminaires : détection d'une transition de phase du 1er ordre gel/fluide de la sphingomyéline en biologie . . .	76
4.4.2	Transition de phase morphologique de structures auto-assemblées d'acide gras en solution aqueuse	79
III Développements théoriques pour la description de structures guidantes soumises à des fluctuations géométriques		85
5	Analyse mathématique de structures guidantes avec paramètres géométriques fluctuants et dépendants du temps	86
5.1	Opérateur d'évolution appliqué au cas du guide plan à 3 couches . .	88
5.2	Opérateur d'évolution appliqué au cas du guide plan à 4 couches . .	90
5.3	Implémentations numériques et discussions	94
6	Vers une description théorique des courbes de dispersion d'une structure de type résonateur par la formulation variationnelle des couches : applications à des phénomènes de sédimentation, crois- sance ou dépôt puis attaque de couches	99
6.1	Étude théorique d'un guide d'onde plan présentant un rayon de courbure	100
6.1.1	Détermination de l'équation aux valeurs propres	102
6.1.2	Détermination des constantes d'intégration	102
6.2	Vers un passage au résonateur photonique circulaire	104
IV Conclusion générale et perspectives		107
V Annexes		123
A Vers la mesure de vitesse de crémage par sonde optique résonante		124
B Formations suivies au cours de la thèse - Participation à la vie de l'Institut et de l'Université		127
C Quelques articles rédigés durant la thèse		128

Bibliographie

- [1] Mouhouche A. et El-Hajjami A. : Histoire de la résonance et stabilité des systèmes résonants : des planètes à l'atome. *Educational Journal of the University of Patras UNESCO Chair*, 3(2):46–53, 2016.
- [2] Pire B. : Ondes, physique. <https://www.universalis.fr/encyclopedie/ondes-physique/>.
- [3] De Laplace P. S. : *Exposition du système monde*. Hachette Bnf, 1796.
- [4] Chladni E. F. F. : *Traité d'Acoustique*. Hachette Bnf, 1802.
- [5] Von Helmholtz H. L. F. : *On the sensations of tone as a physiological basis for the theory of music*. Longmans, Green and Co, 1863.
- [6] Bernard D. : *Un trésor scientifique redécouvert*. Rennes en Sciences, 2018.
- [7] Schuman W. O. : Über die strahlungslosen eigenschwingungen einer leitenden kugel, die von einer luftschicht und einer ionosphärenhülle umgeben ist. *Z. Naturforsch*, 7a:149–154, 1952.
- [8] Schumann W. O. : Über die dämpfung der elektromagnetischen eigenschwingungen des systems erde-luft-ionosphäre. *Z. Naturforsch*, 7a:250–252, 1952.
- [9] Schumann W. O. : Über die ausbreitung sehr langer elektrischer wellen um die erde und die signale des blitzes. *Z. Naturforsch*, 9(12):1116–1138, 1952.
- [10] Schumann W. O. et König H. : Über die beobachtung von "atmospherics" bei geringssten frequenzen. *Naturwissenschaften*, 41(8):183–184, 1954.
- [11] Balsler M. et Wagner C. A. : Observations of earth-ionosphere cavity resonance. *Nature*, 188(4751):638–641, 1960.
- [12] Schlegel K. et Füllekrug M. : 50 years of schumann resonance. *Physik in unserer Zeit*, 33(6):256–261, 2002. Traduction : Catarina Geoghan, 2007.

- [13] Shvets A. V., Hobara Y. et Hayakawa M. : Variations of the global lightning distribution revealed from three-station schumann resonance measurements. *Journal of Geophysical Research*, 115(A12316):1–12, 2010.
- [14] Williams E. R. : The schumann resonance : A global tropical thermometer. *Science*, 1992.
- [15] Schlegel K. et Füllekrug M. : Schumann resonance parameter changes during high-energy particle precipitation. *Journal of Geophysical Research*, 1999.
- [16] De Broglie L. : *Recherches sur la théorie des Quanta*. Thèse de doctorat, Université de Paris, 1924.
- [17] Yariv A. : *Quantum Electronics, Third edition*. John Wiley and Sons, 1989.
- [18] Pérez J.-P. : *Optique : Fondements et applications, Septième édition*. Dunod, 2004.
- [19] Firedt J.-M. : Introduction à la microbalance à quartz : aspects théoriques et expérimentaux. *Bulletin de l'union des physiciens*, 852:429–440, 2003.
- [20] Brûlé S., Enoch S. et Guenneau S. : Emergence of seismic metamaterials : Current state and future perspectives. *Physics Letter A*, 384:126034, 2020.
- [21] Veselago V. G. : The electrodynamics of substances with simultaneous negative values of ϵ and μ . *Soviet Physics Uspekhi*, 10(4):509–514, 1968.
- [22] Snyder A. W. et Love J. D. : *Optical Waveguide Theory*. Kluwer Academic Publishers, 2000.
- [23] Vahala K. : *Optical Microcavities*. World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd., 2004.
- [24] Rabus D. G. : *Integrated ring resonators the compendium*. Springer, 2007.
- [25] Hunsperger R. G. : *Integrated Optics*. Springer, 1995.
- [26] Tamir T. : *Guided-Wave Optoelectronics*. Springer, 1990.
- [27] Scheuer J. et Yariv A. : Fabrication and characterization of low-loss polymeric waveguides and micro-resonators. *Journal of the European Optical Society - Rapid Publications*, 1:06007, 2006.

- [28] Yao Z., Wu K., Tan B. X., Wang J., Li Y., Zhang Y. et Poon A. W. : Integrated silicon photonics microresonators : Emerging technologies. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 24(6):5900324, 2018.
- [29] Matsko A. B. : *Practical applications of microresonators in optics and photonics*. CRC Press Taylor and Francis Group, 2009.
- [30] Lebental M. : *Chaos quantique et micro-lasers organiques*. Thèse de doctorat, Ecole Normale Supérieure de Cachan, Université Paris-Sud, 2007.
- [31] Arnaud C. : *Etude de fonctions actives et/ou passives à base de micro-résonateurs à modes de galerie*. Thèse de doctorat, Université de Rennes 1, 2004.
- [32] Lebental M., Lauret J. S., Hierle R. et Zyss J. : Highly directional stadium-shaped polymer microlasers. *Appl. Phys. Lett.*, 88:031108, 2006.
- [33] Rabiei P., Steier W. H., Zhang C. et Dalton L. R. : Polymer micro-ring filters and modulators. *Journal of Lightwave Technology*, 20(11):1968–1975, 2002.
- [34] Delezoide C. : *Polymer microring resonators for optofluidic evanescent field sensors*. Thèse de doctorat, Ecole Normale Supérieure de Cachan, Université Paris-Sud, 2012.
- [35] Castro-Beltran R., Huby N., Vié V., Lhermite H., Camberlein L., Gaviot E. et Bêche B. : A laterally coupled uv210 polymer racetrack micro-resonator for thermal tunability and glucose sensing capability. *Advanced Device Materials*, 1(2):80–87, 2015.
- [36] Chauvin D. : *Réalisation d'un capteur optofluidique à champ évanescent à base de microrésonateurs polymères pour la détection ultrasensible d'espèces (bio)chimiques à haute toxicité*. Thèse de doctorat, Ecole Normale Supérieure de Cachan, Université Paris-Saclay, 2016.
- [37] Qavi A. J., Kindt J. T., Gleeson M. A. et Bailey R. C. : Anti-dna :rna antibodies and silicon photonics microring resonators : Increased sensitivity for multiplexed microrna detection. *Analytical Chemistry*, 83:5949–5956, 2011.
- [38] Delezoide C., Salsac M., Lautru J., Leh H., Nogues C., Zyss J., Buckle M., Ledoux-Rak I. et Nguyen C. T. : Vertically coupled polymer microracetrack re-

- sonatos for label-free biochemical sensors. *IEEE Photonics Technology Letters*, 24(4):270–272, 2012.
- [39] Meziane F., Raimbault V., Hallil H., Joly S., Conédéra V., Lachaud J. L., Béchou L., Rebière D. et Dejous C. : Study of a polymer optical microring resonator for hexavalent chromium sensing. *Sensors and Actuators B : Chemical*, 209:1049–1056, 2015.
- [40] Chauvin D., Bell J., Leray I., Ledoux-Rak I. et Nguyen C. T. : Label-free optofluidic sensor based on polymeric microresonator for the detection of cadmium ions in tap water. *Sensors and Actuators B : Chemical*, 280:77–85, 2019.
- [41] Chauvin D., Bell J., Leray I., Ledoux-Rak I. et Nguyen C. T. : Label-free optofluidic sensor based on polymeric microresonator for the detection of cadmium ions in tap water. *Sensors and Actuators B : Chemical*, 280:77–85, 2019.
- [42] Vollmer F. et Arnold S. : Whispering-gallery-mode biosensing : label-free detection down to single molecules. *Nature Methods*, 5(7):591–596, 2008.
- [43] Li Q., Vié V., Lhermite H., Gaviot E., Bourlieu C., Moreac A., Morineau D., Dupont D., Beaufile S. et Bêche B. : Polymer resonators sensors for detection of sphingolipid gel/fluid phase transition and melting temperature measurement. *Sensors and Actuators A : Physical*, 263:707–717, 2017.
- [44] Huby N., Pluchon D., Coulon N., Belloul M., Moreac A., Gaviot E., Panizza P. et Bêche B. : Design of organic 3d microresonators with microfluidics coupled to thin-film processes for photonic applications. *Optics Communications*, 283:2451–2456, 2010.
- [45] Knight J. C., Dubreuil N., Sandoghdar V., Hare J., Lefèvre-Seguin V., Raymond J. M. et Haroche S. : Characterizing whispering-gallery modes in microspheres by direct observation of the optical standing-wave pattern in the near field. *Optics letters*, 21(10):698–700, 1996.
- [46] El Abed A. et Taly V. : Real-time detection of whispering gallery mode resonance in high-throughput flowing monodisperse microdroplets. *Optical Materials*, 36(1):64–68, 2013.

- [47] Pluchon D. : *Conception de Micro-Résonateurs 2D et 3D en Photonique Intégrée sur Polymère : de l'Approche Théorique à la Caractérisation Optique*. Thèse de doctorat, Université de Rennes 1, 2012.
- [48] Specht M., Huby N., Lhermite H., Castro-Beltran R., Loas G. et Bêche B. : Fabrication and optical characterization of pedestal micro-structures on duv210 polymer : waveguides structures towards micro-resonators. *European Physical Journal Applied Physics*, 71:10501, 2015.
- [49] Lu X., Lee J. Y. et Lin Q. : High-frequency silicon carbide optomechanical microresonators. *Scientific Reports*, 5:17005, 2015.
- [50] <https://ipr.univ-rennes1.fr/interlocuteurs/bruno-bechesection4>.
- [51] Castro-Beltran R., Huby N., Loas G., Lhermite H., Pluchon D. et Bêche B. : Improvement of efficient coupling and optical resonances by using taper-waveguides coupled to cascade of uv210 polymer micro-resonators. *J. Micro-mech. Microeng.*, 24:125006, 2014.
- [52] Heiblum M. et Harris J. H. : Analysis of curved optical waveguides by conformal transformation. *IEEE JQE*, 11:75–83, 1975.
- [53] Bêche B., Cormerais H., Garnier L., Pin O. et Liddell Q. : Rast Logiciel France, N de brevet : Declaration Logiciel, IDDN FR 001420019000SP201900030640, 2019.
- [54] Bêche B., Lhermite H., Vié V. et Garnier L. : Méthode de détermination d'une vitesse de sédimentation, France, N de brevet, France n 18/00110, 2018.
- [55] Bêche B., Lhermite H., Vié V. et Garnier L. : Method for determining a sedimentation or creaming rate, N de brevet, International PCT/EP2019/051103, 2019.
- [56] Garnier L., Lhermite H., Vié V., Li Q., Berges M., Cazin V., Cormerais H., Weiss J., Gaviot E. et Bêche B. : Photonic micro-resonators for steam evaporation dynamic sensing. *European Physical Journal : Applied Physics*, 84(1):10502.1–10502.7, 2018.
- [57] Garnier L., Lhermite H., Vié V., Pin O., Liddell Q., Cormerais H., Gaviot E. et Bêche B. : Monitoring the evaporation of a sessile water droplet by

- means of integrated photonic resonator. *Journal of Physics D : Applied Physics*, 53:125107.1–125107.10, 2020.
- [58] Castro-Beltran R., Garnier L., Saint-Jalmes A., Lhermite H., Gicquel E., Cormerais H., Fameau A.-L. et Bêche B. : Microphotonics for monitoring the supramolecular thermoresponsive behavior of fatty acid surfactant solutions. *Optics Communication*, 468:15773.1–15773.7, 2020.
- [59] Garnier L., Lhermite H., Vié V., Li Q., Berges M., Cazin V., Cormerais H., Weiss J., Gaviot E. et Bêche B. : About detecting steam condensation by means of polymer racetrack micro-resonators : highlighting the dynamics of such a soft-matter processes. *Proceedings of SPIE, The International Society for Optical Engineering, Photonics : Optical Micro- and Nanometrology*, 10678:11–1/6, 2018.
- [60] Picknett R., G. et Bexon R. : The evaporation of sessile or pendant drops in still air. *J. Colloid Interface Sci.*, 61:336–50, 1976.
- [61] Hu H. et Larson R. G. : Evaporation of a sessile droplet on a substrate. *J. Phys. Chem. B*, 202:1334–44, 2002.
- [62] Preter E., Katzman M., Oren Z., Ronen M., Gerber D. et Zadok A. : Fiber-optic evaporation sensing : monitoring environmental conditions and urinalysis. *J. Lightwave Technol.*, 34:4486–92, 2016.
- [63] Giordani N., Camberlain L., Gaviot E., Polet F., Pelletier N. et Bêche B. : Design and experimental validation of SU-8 based micro-psychrometers. *IEEE Trans. Instrum. Meas. Tech.*, 56:102–6, 2007.
- [64] Landau L. D. et Lifshitz E. M. : *Course of Theoretical Physics VI : Fluid Mechanics*. Oxford : Pergamon, 1982.
- [65] Barash L. Y., Bigioni T. P., Vinokur V. N. et Shchur L. N. : Evaporation and fluid dynamics of a sessile drop of capillary size. *Phys. Rev. E*, 79:046301, 2009.
- [66] Bêche B., Jimenez A., Courbin L., Camerlein L., Artzner F. et Gaviot E. : Functional silica nano-connections based on fluidic approach for integrated photonics. *IEE Electron. Lett.*, 46:356–8, 2010.

- [67] Guibet J. C. : Caractéristiques des produits pétroliers. *Techniques de l'ingénieur*, 1997.
- [68] Vigoureux J. M. : De l'onde évanescente de fresnel au champ proche optique. *Annales de la Fondation Louis de Broglie*, 28(3-4):525–548, 2003.
- [69] de Fornel F. : *Les ondes évanescentes en optique et en optoélectronique*. Eyrolles, 1999.
- [70] Berthier S. : *Optique des Milieux Composites*. Polytechnica, 1999.
- [71] Préault V. : *Méthodes d'homogénéisation pour la modélisation électromagnétique de matériaux composites*. Thèse de doctorat, Université Paris-Sud, 2013.
- [72] Pluchon D., Huby N., Vié V., Panizza P. et Bêche B. : AFM analysis on polymer optical micro-resonators : Investigation on quality factor origin. *Optics and Photonics Journal*, 3:291–295, 2013.
- [73] Li Q., Garnier L., Vié V., Lhermite H., Moréac A., Morineau D., Bourlieu-Lacanal C., Ghoufi A., Gaviot E., Gicquel E. et Bêche B. : Sphingolipid gel/fluid phase transition measurement by integrated resonance probe light. *Sensors and Transducers*, 225(9):41–48, 2018.
- [74] Fameau A.-L., Cousin F., Navailles L., Nallet F., Boué F. et Douliez J.-P. : Multiscale structural characterizations of fatty acid multilayered tubes with a temperature-tunable diameter. *J. Phys. Chem. B*, 115:9033–9039, 2011.
- [75] Kulkarni C. V. : Lipid self-assemblies and nanostructured emulsions for cosmetic formulations. *Cosmetics*, 3(37):1–15, 2016.
- [76] Salerno C., Chiappetta D. A., Arechavala A., Gorzalczyk S., Scioscia S. L. et Bregni C. : Lipid-based microtubes for topical delivery of amphotericin b. *Colloids Surf. B*, 107:160–166, 2013.
- [77] Fameau A. L., Cousin F. et Saint-Jalmes A. : Morphological transition in fatty acid self-assemblies : A process driven by the interplay between the chain-melting and surface-melting of the hydrogen bonds. *Langmuir*, 33:12943–12951, 2017.
- [78] Castro-Beltrán R., Garnier L., Saint-Jalmes A., Lhermite H., Cormerais H., Fameau A.-L., Gicquel E. et Bêche B. : Microphotonics for monitoring the

- supramolecular thermoresponsive behavior of fatty acid surfactant solutions. *Optics Communications*, 468:125773/1–125773/7, 2020.
- [79] Marcuse D. : Solution of the vector wave equation for general dielectric waveguides by the Galerkin method. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 28(2):459–465, 1992.
- [80] Gallawa R. L., Goyal I. C., Tu Y. et Ghatak A. K. : Optical waveguide modes : an approximate solution using Galerkin’s method with hermite-gauss basis functions. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 27(3):518–522, 1991.
- [81] Marcatili E. A. J. : Dielectric rectangular waveguide and directional coupler for integrated optics. *Bell System Technical Journal*, 48(7):2071–2102, 1969.
- [82] Bêche B., Jouin J. F., Gorassard N., Gaviot E. et Zyss J. : PC software analysis of versatile integrated optical waveguides by polarised semi-vectorial finite difference method. *Sensors and Actuators A : Physical*, 114(1):59–64, 2004.
- [83] Garnier L., Saavedra C., Castro-Beltran R., Lucio J. L., Gaviot E. et Bêche B. : Hybrid composed method associating conformal transformation with matrix formulation for computing eigenvalues and eigenvectors in bended optical waveguides. *Optik*, 142(number):536–540, 2017.
- [84] Bêche B., Gaviot E., Renault A., Zyss J. et Artzner F. : Another way to shape the comprehensive analytical approach describing electromagnetic energy distribution through four-slab-layer structures. *Optik*, 121:188–194, 2010.
- [85] Hiremath K. R., Hammer M., Stoffer R., Prkna L. et Ctyriky J. : Analytic approach to dielectric optical bent slab waveguide. *Journal of Optical and Quantum Electronics*, 37(1):37–61, 2005.
- [86] Prkna L., Ctyroky J. et Hubalek M. : Ring microresonator as a photonic structure with complex eigenfrequency. *Journal of Optical and Quantum Electronics*, 36:259–269, 2004.
- [87] Abramowitz M. et Stegun I. A. : *Handbook of mathematical function*. National Bureau of Standards, 1964.
- [88] Jentschura U. D. et Lötstedt E. : Numerical calculation of bessel, hankel and airy functions. *Computer Physics Communications*, 183:506–519, 2012.

[89] <https://www.youtube.com/channel/ucjshwkljldjaaifbakopug>.

Cinquième partie

Annexes

Annexe A

Vers la mesure de vitesse de crémage par sonde optique résonante

Le crémage est un phénomène de la matière molle ayant lieu dans les émulsions. Une émulsion est un mélange entre deux liquides non miscibles, et est généralement instable dans le temps. L'eau et l'huile, par exemple, ne sont pas miscibles et lorsqu'elles sont mélangées forment une émulsion. Dans un mélange eau/huile dans lequel la quantité d'eau est largement supérieure à la quantité d'huile, cette dernière formera des gouttelettes en suspension dans l'eau. Ces gouttelettes au sein de l'émulsion, soumises à la gravité et à la poussée d'Archimède (à l'instar des particules en sédimentation dans la section 4.3.1), obéissent à la Loi de Stokes ; leur vitesse verticale limite vérifie (voir l'équation 4.6) :

$$v_l = \frac{2gR^2(\rho_h - \rho_e)}{9\eta} \quad (\text{A.1})$$

avec ρ_h et ρ_e les masses volumiques de l'huile et de l'eau respectivement. Cependant, comme l'huile a une masse volumique inférieure à celle de l'eau, la vitesse limite est négative, ce qui correspond à une migration des gouttelettes vers le haut. Ce phénomène s'appelle le crémage. Des films ont été réalisés afin de mesurer la vitesse de crémage des gouttes en fonction de leur volume. La Figure A.1 a) représente trois

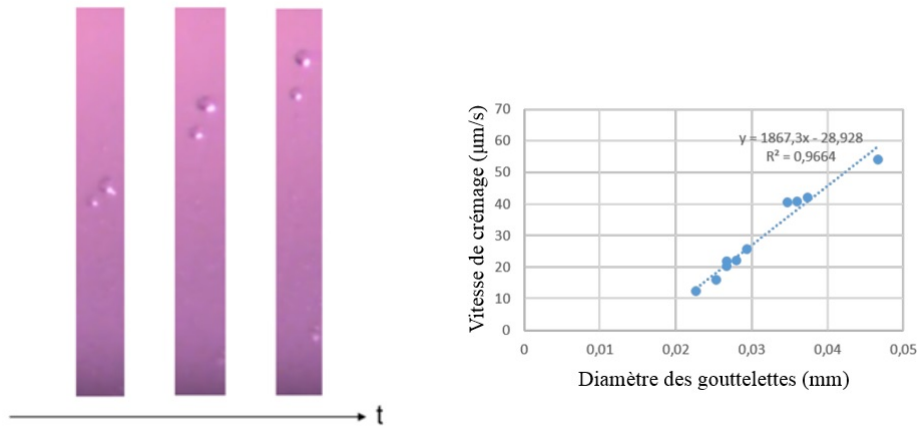


FIGURE A.1 – a) Photographies extraites d’un film vu de côté à différents instant au cours du phénomène de crépage. b) Vitesse de crépage en fonction du diamètre des gouttes.

images extraites d’un de ces films à différents instant. La Figure A.1 b) représente quant à elle la vitesse de crépage en fonction du diamètre des gouttes d’huile. Cette vitesse évolue linéairement avec le diamètre tandis que la vitesse de Stokes prévoit une dépendance quadratique. Cette différence entre la mesure et la théorie montre que d’autres effets entrent en jeu dans le processus de crépage. Ensuite, nous étudions le phénomène de crépage à l’aide de résonateurs photoniques intégrés. L’huile utilisée est de l’huile de lentisque, et est mélangée à de l’eau milli-Q dans des proportions 1/32. La solution obtenue est ensuite mélangée à l’aide d’une cuve à ultra-sons, puis $400 \mu L$ sont introduits dans une cuve sans fond déposée à la surface d’une puce, par le même protocole que dans le cas des expériences de mesure de vitesses de sédimentation. À la suite de l’acquisition des spectres durant plusieurs heures pour s’assurer que le phénomène s’est entièrement terminé, ces derniers sont traités afin d’en extraire l’intervalle spectral libre. La Figure A.2 représente l’évolution de l’ISL en fonction du temps. Étant donné que l’huile a un indice optique supérieur à celui de l’eau et que les gouttelettes d’huile migrent vers le haut, le résultat attendu est une diminution de l’ISL, au même titre que celui-ci augmente lors de la sédimentation de nano-particules de silice qui ont elles aussi un indice de réfraction supérieur à celui de l’eau. Cependant, sur la Figure A.2, on observe une augmentation de l’ISL pendant environ 150 minutes avant de diminuer puis de se stabiliser. L’interprétation que nous donnons à ce résultat est que, comme la surface

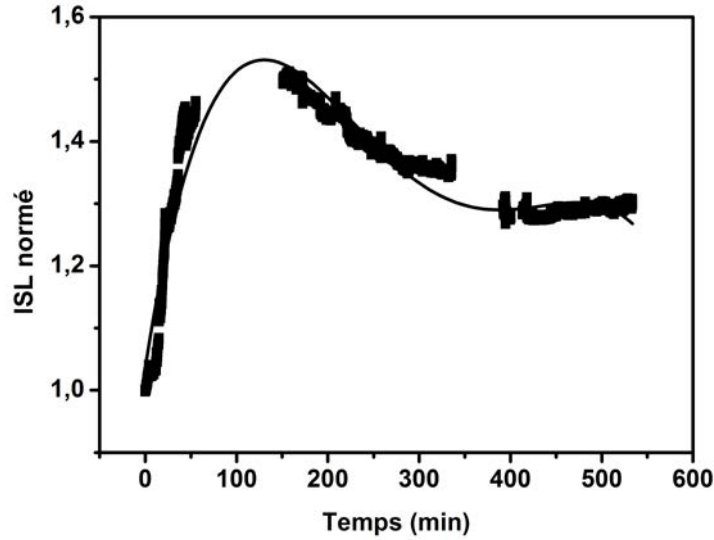


FIGURE A.2 – Évolution de l’ISL au cours du temps lors d’une expérience de crémage. La partie croissante de la courbe (de $t = 0 \text{ min}$ à $t \approx 150 \text{ min}$) correspond à la formation d’une couche d’huile à la surface de la puce due à l’hydrophobicité de cette surface, la partie décroissante allant de $t = 150 \text{ min}$ à $t = 400 \text{ min}$ est la signature du phénomène de crémage, et à partir de $t = 400 \text{ min}$ l’ISL ne varie plus, ce qui signe la fin du phénomène de crémage dans la portée d’interaction de l’onde évanescente associée au mode résonant.

de la puce est hydrophobe, l’huile a tendance à former une couche jouant le rôle de gaine supérieure des structures guidantes. De ce fait, comme la différence entre l’indice du guide et celui de l’huile est plus petite que la différence entre l’indice du guide et celui de l’eau, l’indice effectif du mode est inférieur dans le cas où la gaine supérieure est composé d’huile, ce qui a pour effet d’augmenter l’ISL (voir équation 2.24). On peut en déduire que durant la partie croissante de la courbe d’évolution de l’ISL, une couche d’huile se forme à la surface de la puce. Ensuite, une fois cette couche formée, le phénomène de crémage se poursuit et est visible à partir de $t = 150 \text{ min}$. Une fois que toutes les gouttelettes d’huile ont migré hors de la portée d’interaction de l’onde évanescente, l’ISL se stabilise.

Annexe B

Formations suivies au cours de la thèse - Participation à la vie de l'Institut et de l'Université

Épistémologie des sciences de la nature : 24 h - Janvier **2018**

Initiation à la théorie de l'information : 18 h - Mai **2018**

Introduction à l'éthique de la recherche et à l'intégrité scientifique : 4 h - Novembre
2019

Interfaçage et acquisition de données sous Labview : 30 h - Octobre **2019**

Formation à la construction d'un projet professionnel : 28 h - Mai **2020**

Participation à la cellule de communication de l'IPR (préparation des conférences
de l'IPR [89] avec ma direction de thèse) année **2019-2020**

Enseignement de TP de Thermodynamique en L2 Physique : 33 h - 2ème semestre
2018-2019

Annexe C

Quelques articles rédigés durant la thèse

- **L. Garnier, H. Lhermite, V. Vié, Q. Li, M. Berges, V. Cazin, H. Cormerais, J. Weiss, E. Gaviot, B. Bêche**, ‘Photonic micro-resonators for steam evaporation dynamic sensing’, *European Physical Journal : Applied Physics*, EDP Sciences, **vol. 84(1)**, pp 10502.1-10502.7, **2018**.
DOI : [10.1051/epjap/2018180170](https://doi.org/10.1051/epjap/2018180170)

Résumé : En plus de présenter l’ensemble des procédés technologiques, les types de structures résonantes puis l’environnement plateforme, cet article investigate le comportement de la ligne de mesure et des capteurs à une soudaine et rapide condensation pour souffle humide et tempéré. Nous démontrons en quelque sorte qu’une *application éthylotest optique* serait envisageable et intéressante en terme de valorisation.

- **L. Garnier, H. Lhermite, V. Vié, O. Pin, Q. Liddell, H. Cormerais, E. Gaviot, B. Bêche**, ‘Monitoring the evaporation of a sessile water droplet by means of integrated photonic resonators’, *Journal of Physics D : Applied Physics*, IOP Publishing, **vol. 53**, pp.125107.1-10, **2020**.
DOI : <https://doi.org/10.1088/1361-6463/ab651d>

Résumé : Cet article et étude scientifique présente le suivi d'un processus d'évaporation d'une goutte unique sous un signal photonique surfacique résonant à différentes températures ambiantes. Une signature du processus thermodynamique est clairement mise en évidence puis explicitée. Une corrélation forte est étudiée avec une balance à quartz commerciale. *Nous estimons donc, à juste titre, que cet article est le premier qui en quelque sorte présente une mesure de masse (différentielle, ici d'eau) avec un concept de signal résonant de surface et d'origine photonique.*

- Q. Li, L. Garnier, V. Vié, H. Lhermite, A. Moréac, D. Morineau, C. Bourlieu-Lacanal, A. Ghoufi, E. Gaviot, E. Gicquel, B. Bêche, 'Spingolipid gel/fluid phase transition measurements by integrated resonance probe light', *Sensors and Transducers Journal*, International Frequency Sensors Association (IFSA), vol. 225, pp.41-48, 2018.

DOI : https://www.sensorsportal.com/HTML/DIGEST/P_3011.htm

Résumé : L'article mentionne par un contact direct de la substance *myéline* (biologie et technique de déposition) avec les sondes de lumière résonante, la possibilité de détecter une *transition de phase du 1er ordre en température*. Une corrélation forte est démontrée avec les mesure obtenues par *calorimétrie différentielle à balayage* nécessitant quant à elle des quantités de produit plus importantes.

- R. Castro-Beltrán, L. Garnier, A. Saint-Jalmes, H. Lhermite, E. Gicquel, H. Cormerais, A.-L. Fameau, B. Bêche, 'Microphotonics for monitoring the supramolecular thermoresponsive behavior of fatty acid surfactant solutions', *Optics Communications*, vol. 468, pp.125773.1-7, 2020.

DOI : <https://doi.org/10.1016/j.optcom.2020.125773>

Résumé : En cosmétique et agroalimentaire certaines substances peuvent s'altérer au cours du temps ou suite à un procédé de stockage, séchage ou

autre... se modifier et ne plus satisfaire à la qualification du dit produit. Cette étude démontre une détection, directement par contact de la substance (ici des acides gras) avec les sondes résonantes, d'une *transition de phase morphologique* (auto-assemblage μ -tubulaires \Leftrightarrow nano-micelles). Une étude transverse de *rhéologie* a été menée corroborant le suivi et la *modification de la propriété viscosité* du produit.

- **L. Garnier, A. Dolivera, F. Mahé, E. Gaviot, B. Bêche**, ‘Temporal derivation operator applied on the historic and school case of slab waveguides families eingenvale equations : another method for the computation of variational expressions’, *European Physical Journal : Applied Physics*, EDP Sciences, **vol. 87(1)**, pp. 10501.1-10501.9, **2019**.
DOI : <https://doi.org/10.1051/epjap/2019190092>

Résumé : Cet article théorique pose les bases de l’obtention des familles de modes propres de guides en faisant varier toutes les caractéristiques géométriques des structures à partir des différentielles successives de l’équation aux valeurs propres (reflétant l’opto-géométrie des structures); ceci correspondra à un déplacement (ou au tracé et donc l’obtention) des courbes de dispersion dans l’‘espace’ des constantes de propagation effectives. *Ce formalisme variationnel en quelque sorte, pourrait être étendu aux configurations et structures plus complexes (résonantes) et définir ainsi une voie schématique pour obtenir l’ensemble de leurs courbes de dispersion modales.*

Photonic micro-resonators for steam evaporation dynamic sensing

Lucas Garnier^{1,*}, Hervé Lhermite², Véronique Vié¹, Qingyue Li¹, Mathieu Berges³, Vincent Cazin³,
Hervé Cormerais³, Jacques Weiss³, Etienne Gavio⁴, and Bruno Bêche^{1,*}

¹ Institut de Physique de Rennes, IPR CNRS 6251, Université de Rennes 1, 35042 Rennes, France

² Institut d'Electronique et de Télécommunication de Rennes, IETR CNRS 6164, Université de Rennes 1, 35042 Rennes, France

³ CentraleSupélec, Campus de Rennes, 35510 Cesson-Sévigné, France

⁴ Laboratoire d'Acoustique de l'Université du Maine, LAUM CNRS 6313, Université du Maine, 72000 Le Mans, France

Received: 5 June 2018 / Received in final form: 14 September 2018 / Accepted: 5 October 2018

Abstract. We have investigated the effect of sudden water condensation processes and the behavior of its condensed water prior evaporation, with an integrated resonant photonic structure and dynamic tracking of its transduced signal. The aim of this analysis is to develop a water condensation lab-on-chip sensor, with the possibility of data treatment with an embedded system. Integrated photonic micro-resonator (MR) devices have been designed and fabricated with polymer UV210 by means of Deep-UV photolithography. Thanks to this technique, we have achieved racetrack shaped micro-resonators coupled to suited access waveguides. We have assessed such MRs with different geometrical characteristics while changing, respectively, the coupling length (L_C), the radius of curvature (R) and the width (w) of the guides. The chosen values for the set of parameters L_C - R - w (in μm) are 5-5-3 and 10-10-3. The laser source used with the injection bench is a Gaussian broadband laser ($\lambda_{\text{central}} = 790 \text{ nm}$, FWHM = 40 nm) allowing us to visualize several resonances at the same time in order to multiplex the relevant measurements. The transduced spectrum is then acquired with an optical spectrum analyzer (OSA) linked to a computer with Labview and MATLAB software recording and processing data in real time. Then, relevant characteristics to be tracked are the Free Spectral Range (FSR) and the transmitted energy; these quantities can be linked to the physical characteristics of the structure considering both the effective refractive index and the absorption coefficient. The experimental setup also includes various movies with a top-view imaging camera of the chip (MRs) recording the soft matter process steps, so as to correlate the changes in the transduced spectrum and the behavior of the condensed water mechanisms (condensation, coalescence and evaporation). Then, the chip is fitted with a temperature controller, so as to carry out measurements at different temperatures: 20, 24 and 28 °C.

1 Introduction and background

The accurate knowledge of humidity conditions in a gaseous environment is an important piece of information in numerous cases. Indeed, many industrial sectors need precise monitoring of the humidity in the air [1]. For example, in food industry, the conservation of edible products needs to be ensured with a well-controlled atmosphere in order to avoid the development of moisture. Various technical solutions may be considered to monitor humidity: capacitive hygrometers [2], resistive hygrometers [3], psychrometers [4,5] and dew-point hygrometers and so on. Technical solutions to monitor humidity via photonic structures are already investigated by several research teams [6]. In this article, the interest is focused on the possibility to measure humidity with integrated photonic micro-resonators by studying the influence of water condensation and evaporation on the mode propagating in such photonic structures. Photonic

micro-resonator sensors have known a large expansion in the past few years [7]. Indeed, specific properties of these devices foster significant advantages compared to many other sensing techniques. The integration of such sensors on relevant chips allows designing lab-on-chip sensors [8], which facilitate both miniaturization and transportability [9]. This kind of structure also provides very precise measurements, with low limit of detection and high sensitivity [10]. As miniaturizable and most accurate, photonic micro-resonator sensors come up as very efficient in following small-scale phenomena or in detecting sparsely concentrated chemical species [11]. These characteristics are most interesting for both environmental monitoring [12] and biology together with biomedical or biophysics [13] fundamental research (among other fields). However, with a large majority of scientific works using integrated micro-resonator sensors focusing on static phenomena [9,11–13], most often the transduced signal of the photonic structure is monitored against concentration values of given species or versus temperature. Then, noteworthy variations of the signal versus time, so as to measure dynamic reactions, are rarely

* e-mail: lucas.garnier@univ-rennes1.fr

investigated. In this paper, integrated micro-resonators are used to perform a dynamic tracking of water condensation and evaporation mechanisms on the acting surface of the sensor.

The transduced signal of a micro-resonator coupled to an access waveguide depends on two phenomena. The first one is the coupling which is an optic tunnel effect between the access waveguide and the resonator. The opto-geometric parameters of the structure determine the quality of the coupling. The second phenomenon is the resonance caused by the excitation of stationary modes in the resonator. This phenomenon is driven, for a given geometry, by the refractive index of the surrounding medium. The transfer function associated to a micro-resonator coupled to an access waveguide is given in reference [14]:

$$T(\Phi) = (1 - \gamma) \left[1 - \frac{(1 - a^2)(1 - \tau^2)}{(1 - a\tau)^2 + 4a\tau \sin^2\left(\frac{\Phi}{2}\right)} \right], \quad (1)$$

where $\Phi = \beta P$, the phase delay inside the resonator for a single trip (with β the propagation constant of the mode and P the opto-geometrical perimeter), γ is the intensity-insertion-loss coefficient, τ is the internal amplitude transmission coefficient which corresponds to the quantity of energy that is not coupled from the access waveguide to the resonator and vice versa. Finally, $a = \sqrt{1 - \gamma e^{-\rho L_{mc}}}$ is the total amplitude loss factor, related to ρ the amplitude attenuation coefficient in the resonator and L_{mc} the mean circumference of the resonator excluding the coupling part. These different parameters (β , τ , γ , ρ and a) are suddenly perturbed by the condensation of water and continuously vary during its evaporation. The measurable spectral characteristics that can be related to these parameters are the quality factor Q , the finesse F , the full width at half maximum FWHM and the free spectral range (FSR). Each one of these quantities strongly depends on several of the above parameters, except the FSR, that only depend on the effective refractive index $n_{\text{eff}}^g = \frac{\beta}{k}$, where k is the wave-number associated with the mode. As the refractive index of water is superior to the index of air, the effective index of the mode is correlated to the presence or not of condensed water on the sensor. The relevant parameter to track is in the free spectral range, i.e. the distance between two consecutive resonances in the spectral domain. The FSR is given in reference [15]:

$$\text{FSR} = \frac{\lambda_0^2}{P n_{\text{eff}}^g}, \quad (2)$$

where λ_0 is the central wavelength, P the opto-geometrical perimeter of the resonator and n_{eff}^g the effective group refractive index associated to the mode, which depends on the optical index of both the waveguide itself and its close environment. By tracking the FSR, we are so able to track any change in the refractive index above the resonator.

Water condensation on a surface depends on the relative humidity (RH) of its surrounding environment. The quantity RH is defined as the ratio between the partial pressure of water vapor $p_{\text{H}_2\text{O}}$ and the saturation vapor

pressure (in equilibrium) noted p_e : $\text{RH}\% = 100 \cdot \frac{p_{\text{H}_2\text{O}}}{p_e}$. The saturation vapor pressure depends on the temperature of the air: the greater the temperature, the higher the equilibrium vapor pressure. The condensation occurs when the RH value reaches 100%. As the RH increases when temperature decreases (because p_e decreases), the condensation occurs when the air is cooled down (until $p_e = p_{\text{H}_2\text{O}}$): for example, during the night, in humid regions, dew appears when the temperature becomes sufficiently low (reaching the so-called dew point t_d) or when the air is in contact with a cold surface (with a temperature $t < t_d$).

In the second section, the fabrication of the structures is detailed. The experimental setup is presented in the third section, with relevant results exposed and discussed in Section 4.

2 Structure fabrication

2.1 Materials

In the literature, two types of materials are mainly used for the fabrication of integrated photonic structures: semiconductors and polymers [15]. In this study, the chosen material is the polymer DUV210 [16], for the following reasons: first, refractive indices of polymers are smaller than the ones of semiconductors; for an upper cladding composed of air or water, which is often the case for sensing applications, the evanescent wave of the propagating mode is then larger for polymer resonators than for semiconductor structures. This difference implies better sensing properties for polymers based on resonators. Secondly, polymers are quite less expensive than semiconductors, reducing then the fabrication cost and facilitating industrial large-scale production. Eventually, among other polymers, we have selected the DUV210 as a chemically amplified positive resin due to its specific absorption band at 248 nm [17], allowing performing deep-UV photolithography most suited to design submicronic gaps. An advantageous substrate for such structures is a SiO₂/Si wafer, with a SiO₂ layer 1 μm in thickness obtained by thermal oxidation. This layer stands as the lower cladding for the waveguides.

2.2 Geometrical characteristics

Beyond the choice of the material, the shape and the geometrical characteristics of the structure are determinant factors with a view to sensing properties. The structure hinges on a mono-mode access waveguide laterally coupled from either side to four identical mono-mode racetrack shaped micro-resonators as depicted in Figure 1. The mono-mode nature of these structures has first been confirmed in a theoretical way by a FDTD simulation of the propagation of the optical power inside the overall structure, then in an experimental way by imaging both the cross-sectional output by the means of a CCD camera and the top of the chip under injection. The presence of multiple resonators leads to a greater extinction ratio and quality factor, and allow more precise measurements [18]. The resonators are characterized by four quantities: the coupling length L_C , the radius of curvature R associated with the bent part of the

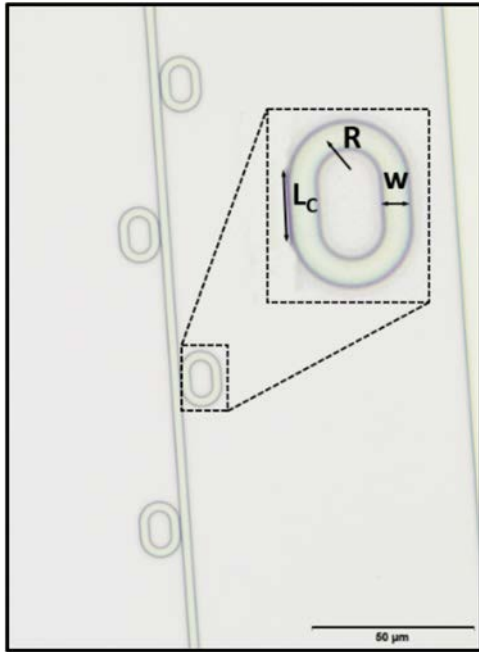


Fig. 1. Optical imaging of the photonic structure.

resonator, the gap g between the access waveguide and the resonator and the width w , made equal for each resonator and its access waveguide as shown in **Figure 2**. The study has been performed on structures with L_c - R - w set values equal to 5-5-3 and 10-10-3 in micrometers ($g = 0.4 \mu\text{m}$ for each) in order to estimate the impact of the size of a resonator on its sensing properties. Using lateral coupling allows fabricating the chip by way of a single deep-UV insolation, reducing then the fabrication costs and allowing eradication of any misalignment hazard in case of necessary multiple insolation.

2.3 Fabrication process

The structures have been fabricated in a class 100 cleanroom. The wafer supporting the photonic circuits is a silicon wafer on which has been performed a thermal oxidation to obtain a SiO_2 layer of $1 \mu\text{m}$. The UV210 is spread on the wafer by spin coating, with the relevant speed and acceleration values in order to get a 800-nm thick layer. This thickness is necessary to make all the structures monomode. The sample is then exposed to deep-UV via a mercury lamp to reproduce structure's shapes previously designed on a photolithography mask. Then, development is ensured with tetramethylammonium hydroxide (TMAH). Each one of these steps is followed by a softbake to consolidate the structure. A quality control is then performed on these structures to verify their geometrical characteristics such as the width of the guides as well as the gap separating the access waveguide and the resonators.

3 Experimental setup

So as to carry out the measurements, the resonators are placed on an injection bench as depicted in **Figure 3**. The laser source used in this bench is a Gaussian broadband

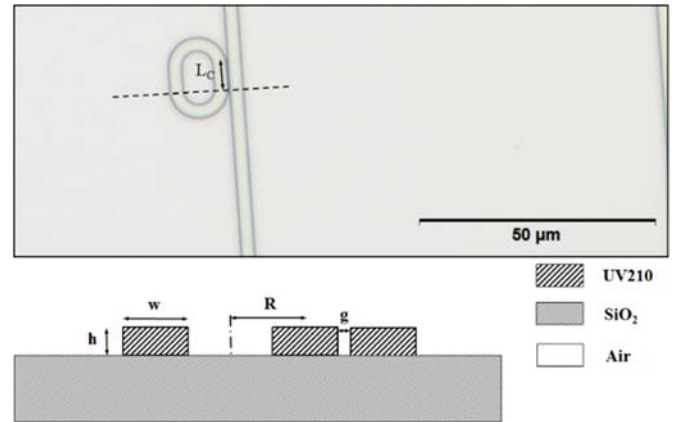


Fig. 2. Optical top-view imaging and schematic sectional view of the photonic device.

laser diode with $\lambda_0 = 790 \text{ nm}$ central wavelength and $\text{FWHM} = 40 \text{ nm}$. The light is then TE-polarized before being injected in the access waveguide in order to excite only the TE_{00} mode. The latter operation is performed by way of microscope objectives focusing the light within the guide, and defocusing it after proceeding through the photonic structure. Any resulting ray of light is then split by a beamsplitter prior respective analysis with a CCD camera (Pulnix CCD camera) and an optical spectrum analyzer (OSA Ando AQ-6315E). A top-view imaging camera is placed above the chip to link the spectral results to a visual of the process. The width of the optical spectrum produced by the laser allows us to visualize several resonances together with each spectrum acquired by the OSA. The OSA is remotely controlled by a MATLAB software¹ which allows defining every parameter of the acquisition (span, resolution, etc.). A program has also been implemented for both the acquisition of the spectra and the data treatment in real time. The FSR is extracted from each spectrum by computing its Fast Fourier Transform (FFT) and extracting its maximum value by a Lagrange polynomial interpolation. Finally, the photonic circuit is thermally controlled so as to quantify the influence of temperature on the behavior of this circuit, while a top-view imaging camera allows correlating the steam behavior with the modifications in the transduced optical signal.

4 Results and discussions

Once the setup is ready, the spectra are continuously acquired. A few seconds after the beginning of the acquisition, the water condenses on the sensor. The water condensation is obtained by blowing a hot flow of humid air; its contact with a cooler surface (the chip) leads to the condensation of part of the water contained in this air stream. The RH of the room we perform the experiments in is approximately 50%. After whole evaporation of the water, acquisition is carried further out for a short amount of time to

¹ <https://fr.mathworks.com/matlabcentral/fileexchange/32721-getosatrace>

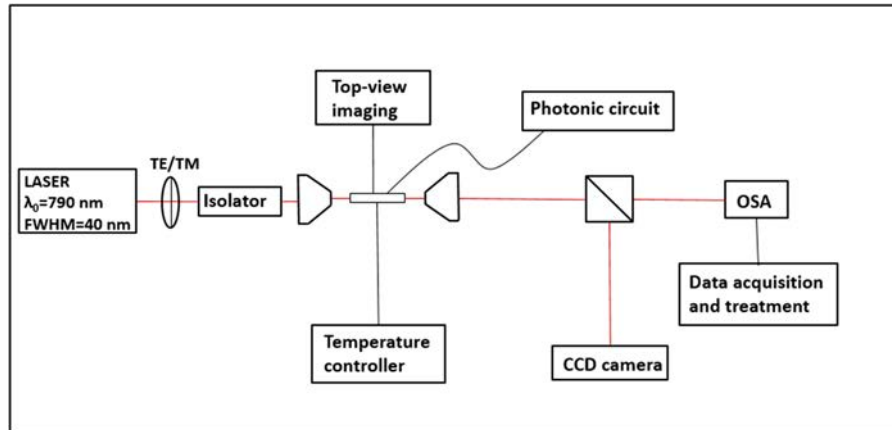


Fig. 3. Schematic representation of the experimental setup; the acquisition and treatment of data is made in real time.

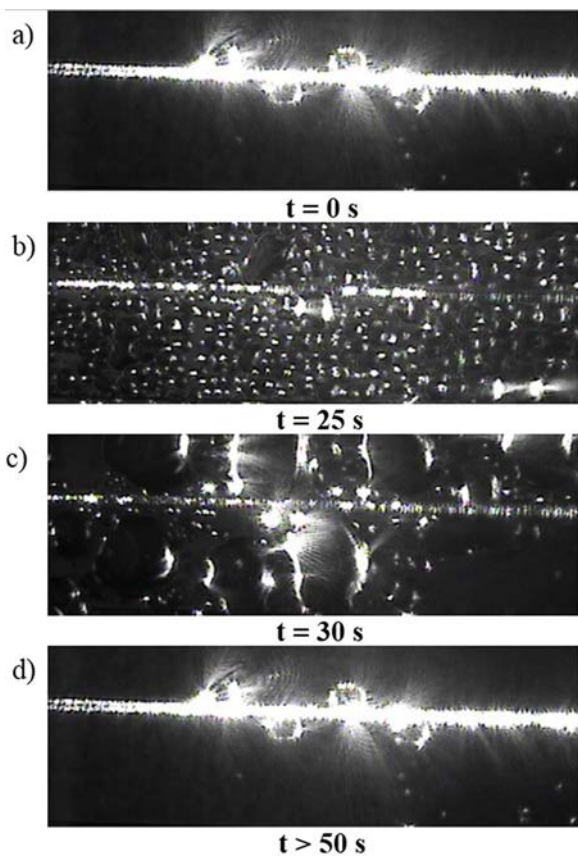


Fig. 4. Top-view imaging of the chip under injection during the condensation/evaporation process at (a) $t = 0$ s, (b) $t = 25$ s, (c) $t = 30$ s and (d) $t > 50$ s.

ensure the resonator being reset back to its initial state. [Figure 4](#) shows photos extracted from a movie of the surface of the chip at different times, corresponding to different phases in the condensation/evaporation process. [Figures 4a](#) and [4d](#) correspond to initial and final state, i.e. before the water condenses and after it evaporates. [Figures 4b](#) and [4c](#) show the condensed water before and after coalescence, respectively. When water condenses on a surface, small drops appear; the coalescence phenomenon is the fusion of several

of these small drops into bigger ones in order to decrease the surface energy and reach a more stable configuration. This coalescence phenomenon occurs to rapidly be investigated with our setup; the present study focuses on evaporation dynamics. [Figure 5](#) represents spectra at different times during this process, for two different mono-mode resonant structures. This graph yields that, considering mono-mode resonators, the greater the perimeter of the resonator, the smaller the free spectral range as predicted in equation (2).

For each spectrum, the FSR and the maximum intensity are extracted by means of an automatized data treatment program. Evolution of these characteristics over time is depicted in [Figure 6](#).

A strong correlation comes up between the FSR and the maximum intensity, owing to the fact that as water condenses on the sensor, the upper cladding of the photonic structure changes from air to condensed water. This upper cladding change yields two major effects on the intensity. Firstly, as the cladding index changes, the acceptance cone of the access waveguide is also modified, leading to a lower coupling strength between the laser ray and the access waveguide, with then a diminished amount of optical power in the structure. Secondly, as the cladding index is increased, the evanescent wave of the propagating mode enlarges itself and is partly absorbed by the condensed water. Intensity variations are also confirmed by the photos in [Figure 4](#). Such effects being difficult to quantify and decorrelate, the present study is focused on the FSR dynamics. The graphs representing the evolution of the FSR can be sliced in four zones (A, B, C and D) as shown in [Figure 6a](#). Zones A and D correspond to the bare sensor, i.e. a resonator with air as upper cladding. In zone B, as the water has just condensed, the amount of water is sufficient to form a semi-infinite cladding; hence, as long as the amount of water is sufficient, the FSR does not vary. This value of the FSR corresponds to the test value of these structures when the upper cladding is entirely composed of water. This situation is equivalent to the spontaneous condensation of water in case relative humidity is 100%. Finally, in Zone C, the water is progressively evaporating, yielding the FSR to decrease until reaching again its initial value when the water is entirely evaporated. [Figure 7](#) shows the schematic representation of this process accomplished in four steps.

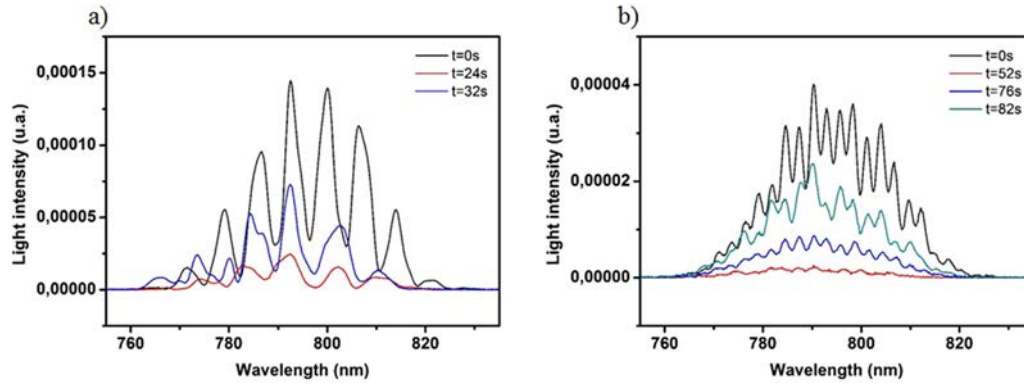


Fig. 5. Examples of spectra acquired at different times during the process for values L_C-R-w of (a) 5-5-3 (b) 10-10-3 in micrometers.

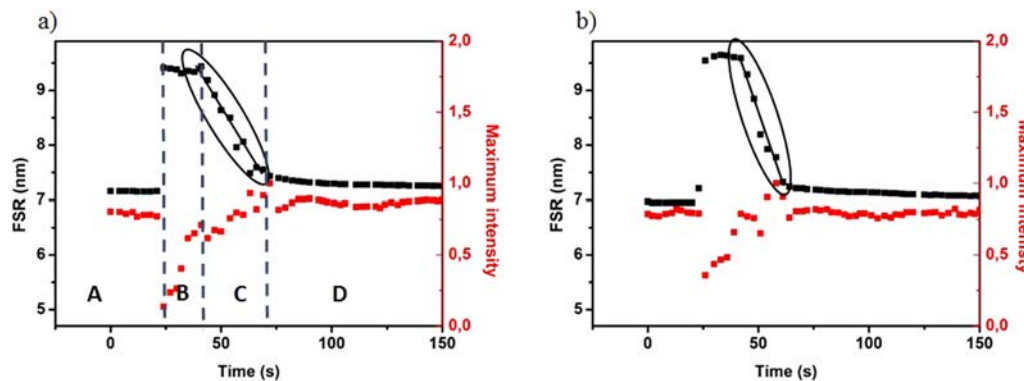


Fig. 6. Evolution of the free spectral range (black) and of the maximum intensity (red) for (a) 5-5-3 structure, at $T =$ (a) 20°C and (b) 28°C.

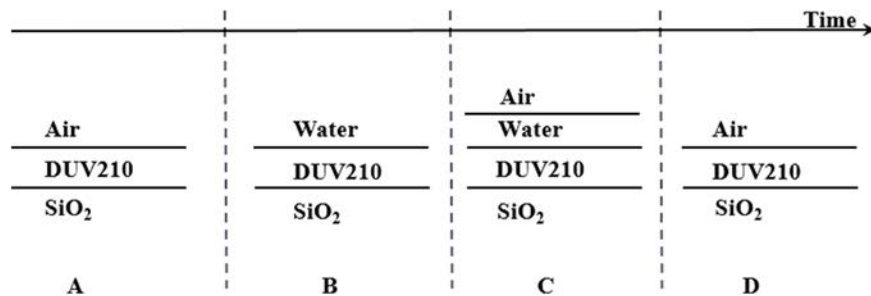


Fig. 7. Schematic representation of the succession of the different upper cladding for each zone.

The principal interest of this study relies in the zone C, considering particularly the slope of the linear regression of the dynamics of the FSR $\frac{dFSR}{dt}$, quantity closely related to the evaporation kinetics. Then, Table 1 summarizes the results for both geometrical configurations as regard different temperatures.

In order to get rid of the influence of the size of the resonator on the slope, the above values are normalized by the initial value of the FSR, i.e. the value before the condensation of water, with air as upper cladding. These values are presented on Table 2. These results show that the higher the temperature, the steeper the slope due to the

evaporation speed increased with temperature. The differences between the 5-5-3 and the 10-10-3 structures are due to the value of the radius of curvature R . Indeed, the smaller the radius of curvature, the larger the evanescent wave, leading then to increased variations of the FSR. We have thus proved that fixed geometrical parameters (L_C-R-w) imply a temporal sensibility to FSR variations.

The possibilities to design humidity sensors from this optical integrated device are of two kinds. On the one hand, the difference between Zones A and B allows designing a dew-point sensor, which can detect the presence or not of condensed water on the surface of such a sensor. In the

Table 1. Numerical values of $\frac{dFSR}{dt}$ ($\mu\text{m/s}$) for different sensing configurations.

Resonators L_c - R - w (μm)	T ($^{\circ}\text{C}$)		
	20	24	28
5-5-3	-0.067	-0.075	-0.110
10-10-3	-0.011	-0.022	-0.039

Table 2. Normalized values of $\frac{dFSR}{dt}$ ($\mu\text{m/s}$) with respect to nominal FSR values.

Resonators L_c - R - w (μm)	T ($^{\circ}\text{C}$)		
	20	24	28
5-5-3	-0.008	-0.010	-0.016
10-10-3	-0.004	-0.008	-0.014

other hand, Zone C yields further information. As we have seen previously, the slope $\frac{dFSR}{dt}$ in Zone C is related to evaporation dynamic process, which is physically representative of the ability of the surrounding air (considered as a reservoir of gas at fixed relative humidity) to exchange mass of water with the liquid medium. No exact quantitative analytical link between these two quantities is presented in the literature, but the present study clearly highlights their interdependency. The evaporation speed, as for it, is directly correlated to the relative humidity for given conditions of temperature and pressure. By performing a proper calibration in controlled conditions of humidity, temperature and pressure, it is thus possible to design a relative humidity sensor by an adequate monitoring of water evaporation conditions.

5 Conclusion

This work presents a quantitative study about the behavior of integrated photonic micro-resonators subject to sudden water condensation. By dynamically tracking the free spectral range of the resonant structure against time, we have pointed out four steps during the condensation/evaporation process, among which one is correlated to the evaporation dynamics. These measurements have been realized on two different geometrical structures characterized by their values of coupling length and radius of curvature, and for three different temperatures. By performing a proper calibration of such a device, the design of a humidity sensor is possible. Moreover, the UV-210 material and the single deep-UV photolithography used for the fabrication of this lab-on-chip sensor allow a low-cost production of such devices. In this study, the interest is focused on the analysis of the temporal variations of the free spectral range, but to achieve a complete description of the phenomenon of condensation/evaporation process, wider investigations should be undertaken on the other characteristics of the structures, such as the Q factor and the finesse. These investigations

would give more information on the dynamics of the coupling conditions between the access waveguide and the resonators.

Author contribution statement

Garnier performed all the experiments along with Li, and he drafted the manuscript. Lhermite worked on the fabrication of the chip device. Berges, Cazin, Cormerais and Weiss programmed the data treatment software. Vié and Gaviot brought the interpretation concerning fluidic and thermal considerations, respectively. Bêche supervised the project and worked on the manuscript. All authors discussed the results and approved the final manuscript.

References



1. G. Asch, B. Poussery, *Les capteurs en instrumentation industrielle*, 8th edn (Dunod, Paris, 2017)
2. P. Neis, H.G.J. Smit, S. Rohs, U. Bundke, M. Krämer, N. Spelten, V. Ebert, B. Buchholz, K. Thomas, A. Petzold, *Tellus B Chem. Phys. Meteorol.* **67**, 28320 (2015)
3. K.-P. Yoo, L.-T. Lim, N.-K. Min, M.J. Lee, C.J. Lee, C.-W. Park, *Sens. Actuators B* **145**, 120–125 (2010)
4. N. Giordani, L. Camberlein, E. Gaviot, F. Polet, N. Pelletier, B. Bêche, *IEEE Trans. Instrum. Measure.* **56**, 102–106 (2007)
5. Z. Chen, C. Lu, *Sens. Lett.* **3**, 274–295 (2005)
6. Q. Wu, Y. Semenova, J. Mathew, P. Wang, G. Farrell, *Opt. Lett.* **36**, 1752–1754 (2011)
7. I. Chremmos, O. Schwelb, N. Uzunoglu, *Photonic Micro-resonator Research and Applications*, Optical Sciences Series (Springer, Berlin, 2010)
8. C.F. Carlborg, K.B. Gylfason, A. Kazmierczak, F. Dortu, M.J. Banuls Polo, A. Maquieira Catala, G.M. Kresbach, H. Sohlström, T. Moh, L. Vivien, J. Popplewell, G. Ronan, C.A. Barrios, G. Stemme, W. van der Wijngaart, *Lab Chip* **10**, 257–393 (2010)

9. L. Gounaridis, P. Groumas, E. Schreuder, G. Tsekenis, A. Marousis, R. Heidman, H. Avramopoulos, C. Kouloumentas, *Opt. Express* **25**, 7483–7495 (2017)
10. C.-Y. Chao, W.L. Jay Guo, *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* **12**, 134–142 (2006)
11. R. Castro-Beltrán, N. Huby, V. Vié, H. Lhermite, L. Camberlein, E. Gaviot, B. Bêche, *Adv. Device Mater.* **1**, 80–87 (2015)
12. F. Meziane, V. Raimbault, H. Hallil, S. Joly, V. Conédéra, J.L. Lachaud, L. Béchou, D. Rebière, C. Dejous, *Sens. Actuators B* **209**, 1049–1056 (2015)
13. Q. Li, V. Vié, H. Lhermite, E. Gaviot, C. Bourliou, A. Moréac, D. Morineau, D. Dupont, S. Beaufiles, B. Bêche, *Sens. Actuators A* **263**, 707–717 (2017)
14. C. Delezoide, Ph.D thesis, Ecole Normale Supérieure de Cachan, 2012
15. D.G. Rabus, *Integrated Ring Resonators*, Optical Sciences Series (Springer, Berlin, 2007)
16. M. Specht, N. Huby, H. Lhermite, R. Castro-Beltrán, G. Loas, B. Bêche, *Eur. Phys. J. Appl. Phys.* **71**, 10501 (2015)
17. D. Duval, H. Lhermite, C. Godet, N. Huby, B. Bêche, *J. Opt.* **12**, 055501/1–6 (2010)
18. R. Castro-Beltrán, N. Huby, G. Loas, H. Lhermite, D. Pluchon, B. Bêche, *J. Micromech. Microeng.* **24**, 125006 (2014)

Open Access This article is distributed under the terms of the Creative Commons Attribution License <https://creativecommons.org/licenses/by/4.0> which permits unrestricted use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original author(s) and source are credited.

Cite this article as: Lucas Garnier, Hervé Lhermite, Véronique Vié, Qingyue Li, Mathieu Berges, Vincent Cazin, Hervé Cormerais, Jacques Weiss, Etienne Gaviot, Bruno Bêche, Photonic micro-resonators for steam evaporation dynamic sensing, *Eur. Phys. J. Appl. Phys.* **84**, 10502 (2018)

Monitoring the evaporation of a sessile water droplet by means of integrated photonic resonator

Lucas Garnier¹, Hervé Lhermite², Véronique Vié¹, Octave Pin³,
Quentin Liddell³, Hervé Cormerais^{2,3}, Etienne Gavioit⁴
and Bruno Bêche^{1,2}

¹ Université de Rennes 1, CNRS (Institut de Physique de Rennes)—UMR 6251, F-35000 Rennes, France

² Université de Rennes 1, CNRS (Institut d'Electronique et de Télécommunications de Rennes)—UMR 6164, F-35000 Rennes, France

³ Centrale/Supélec, Campus de Rennes, F-35510 Cesson-Sévigné, France

⁴ Université du Maine, CNRS (Laboratoire d'Acoustique de l'Université du Maine)—UMR 6613, F-72000 Le Mans, France

E-mail: lucas.garnier@univ-rennes1.fr and bruno.beche@univ-rennes1.fr

Received 7 October 2019, revised 11 December 2019

Accepted for publication 23 December 2019

Published 13 January 2020



Abstract

We have investigated the behavior of the optical transduced signal of a photonic integrated polymer micro resonator as an evaporating water droplet is positioned upon it. The photonic chip is fabricated by means of deep-UV photolithography, and the circuits are made of polymer UV210. The device is then arranged in an optical bench so as to perform relevant measurements thanks to a broadband laser for the excitation of the resonators and an optical spectrum analyzer remotely controlled by a Matlab software for the acquisition and treatment of data. By dynamically tracking the free spectral range (FSR) of the optical mode, we come up with a signature of the thermodynamic evaporation process. In order to correlate this signature to the evaporation speed of the water droplet, a lateral camera is disposed to measure the evolution of the geometrical characteristics of the droplet, while weight measurements are performed thanks to a precision balance. These measurements provide a numerical link between the temporal variation of the FSR and the variation of the distance between the apex of the droplet and the substrate, correlating clearly the variation of the FSR with the mass change of the droplet. The measurements have been performed with 20 μl droplets for three different substrate temperatures: 21 °C, 24 °C and 27 °C. Then, theoretical investigations have been also performed in order to interpret the dynamics of the FSR in terms of guiding theory.

Keywords: dynamic sensing, integrated photonics, resonator, thermodynamic evaporation, lab-on-chip

(Some figures may appear in colour only in the online journal)

1. Introduction

Integrated photonic micro resonators (MRs) have aroused a great interest in the past two decades because of the wide variety of applications in both telecommunications and sensors technology [1–3]. Concerning sensing applications, such a technology offers the possibility to design lab-on-chip

(LoC) sensors, i.e. miniaturized and transportable sensing devices [4]. This kind of devices may be quite valuable in fundamental research in biophysics [5], biochemistry [6] and genetics [7, 8] as well as in the monitoring of the environmental conditions [9] with the detection of pollutants [10]. They can also be incorporated in industrial lines for the monitoring of the stability of products in food industry or in

pharmaceutical industry. Besides these significant applications, liable fabrication methods involving photolithography have been widely used in industry and in research laboratories for several decades, especially in the semiconductor industry allowing low-cost and large-scale production. In the literature, a large majority of the studies devoted to MRs in sensors applications concentrates on static phenomena such as the detection or concentration measurement of chemical species [11, 12]. Indeed only a few investigate dynamic processes. In this work, we present the design, the fabrication and the use of such a MR sensor for the dynamic monitoring of an evaporating sessile water droplet. This approach is a first step towards the study of more complex liquids such as biological fluids, colloidal suspensions or colloidal gels. Such solutions/suspensions have a dynamical behavior, and present structural instabilities against time during their drying [13–15]. A comprehensive knowledge of this behavior is of critical importance in numerous fields. Indeed, the drying behavior of such solutions/suspensions gives suitable information about their composition allowing thus to perform enhanced medical analysis on blood or saliva, or to monitor liquid food processing in the food industry [16, 17] (e.g. in the preparation of milk powder).

The photonic circuits herein described are integrated on a chip and excited by a broadband laser; a water droplet is then deposited on the surface of the chip. The evaporation of this droplet progressively changes the resonance conditions of the MRs; by tracking the transduced signal by means of an optical spectrum analyzer (OSA) we can measure the temporal evolution of these changes. In addition to the optical measurements, the evolution of the shape of the droplet is followed up thanks to a lateral camera, as concomitant weight measurements are performed throughout the evaporation by means of a micro precision balance to be correlated with the optical measurements. Theoretical considerations are also presented so as to interpret the behavior of the transduced signal in terms of guiding theory.

Section 2 presents the fabrication of the devices; section 3 emphasizes the working principle of this device, while in section 4 the physics of the evaporation process is exposed. Section 5 deals with the experimental setup, and section 6 gives a presentation of the results. Finally, section 7 concludes this study.

2. Materials, fabrication and geometry

2.1. Materials

So as to perform an accurate monitoring of the evaporation of water droplets, photonic circuits have been integrated on a chip by means of photolithography. The material used to fabricate the guiding structures is the polymer UV210 [18, 19]. UV210 is a chemically amplified resist that allows performing deep-UV lithography at 248 nm, making possible the fabrication of smaller and more precise structures compared to i-line photolithography at 365 nm. These circuits are integrated on a SiO₂/Si substrate. Upon a commercial Si wafer, a

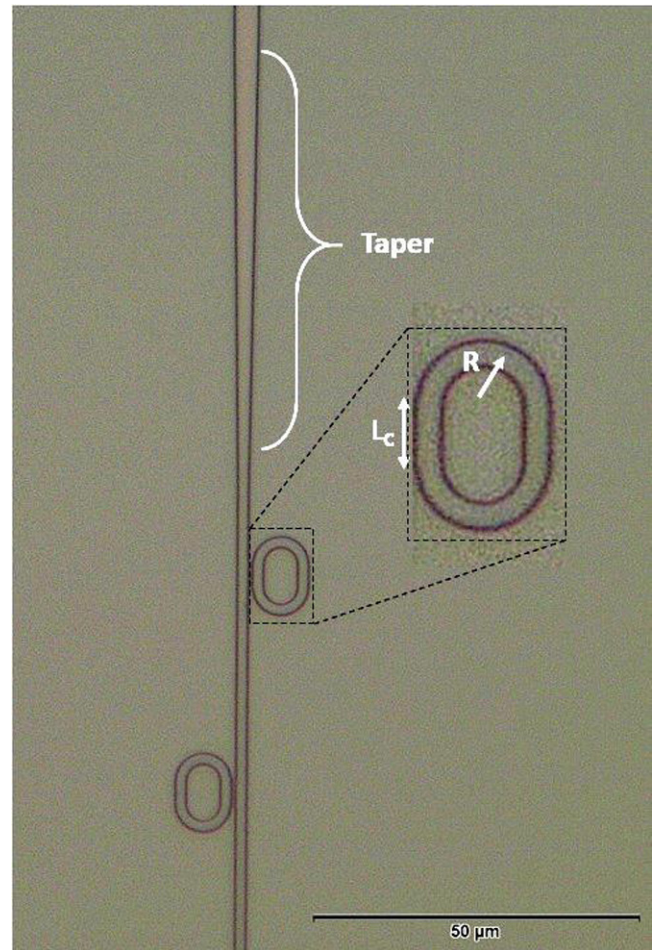


Figure 1. Photography of the surface of the chip, with the coupling length $L_C = 5 \mu\text{m}$, and the radius of curvature $R = 5 \mu\text{m}$.

thermal oxidation is performed to create a $1 \mu\text{m}$ SiO₂ layer on top of the substrate. This layer acts as the lower cladding of the guiding structures while enhancing adhesion of the waveguides on the substrate.

2.2. Geometry

The sensing structures are composed of a mono-mode access waveguide laterally coupled to a series of micro-resonators. The lateral coupling configuration enables us to design the circuits by a single photolithography illumination. The resonators have a racetrack shape in order to improve the coupling efficiency between the access waveguide and the resonators (compared to a ring shape). Finally, the access waveguide is tapered to facilitate the injection of light in the circuit. Figure 1 is a photograph of the surface of the chip. The access waveguide is $6 \mu\text{m}$ wide before the taper and $3 \mu\text{m}$ wide in the coupling zone. The resonators are also $3 \mu\text{m}$ wide to maximize the coupling efficiency. The other dimensions of the resonators are $R - L_C = 5 \mu\text{m} - 5 \mu\text{m}$ with R the radius of curvature and L_C the coupling length. The gap separating the access waveguide and the resonators is 400 nm wide, and all the different elements composing the circuit are 800 nm in height.

Table 1. Procedure of fabrication of the integrated circuits (v : speed, a : acceleration, t : time, T : temperature, E : exposure dose).

Steps	Parameters
Spin-coating	$v = 900 \text{ rpm}$, $a = 50000 \text{ rpm s}^{-1}$, $t = 30 \text{ s}$, thickness = 800 nm, roughness < 3 nm
Softbake	$t = 3 \text{ min}$, $T = 140 \text{ }^\circ\text{C}$
Deep UV exposure	$E = 20 \text{ mJ cm}^{-2}$, $t = 27 \text{ s}$
Post exposure softbake	$t = 1 \text{ min}$, $T = 120 \text{ }^\circ\text{C}$
Development	$t = 30 \text{ s}$ with Microposit MF CD-26
Final softbake	$t = 12 \text{ h} - 14 \text{ h}$, $T = 120 \text{ }^\circ\text{C}$

2.3. Fabrication

The previously described integrated chips have been fabricated in a class 100 cleanroom by means of deep-UV photolithography. The main advantage of such a specific process relies on the 248 nm emission line of a mercury lamp (HBO 1000W/D, OSRAM) selected with an adequate filter. The photolithography mask has been designed with Virtuoso software and fabricated by TOPPAN PHOTOMASKS Inc. The UV210 photoresist is spread on a 3 inch wafer by spin coating method before being exposed to deep-UV illumination. Once exposed, the development is performed by means of tetramethyl ammonium hydroxide (Microposit MF CD-26). Each one of these steps is followed by a relevant softbake process that stabilizes the molecular structure. Table 1 recapitulates the procedure of fabrication of the integrated circuits. The set of circuits being integrated on the whole substrate, the latter is cleaved by means of a diamond tip, prior mounting a device on the optical bench for the sensing experiments. Photolithography is a technique that has been used for several decades, especially in the semi-conductor industry, which allows low cost and large scale production.

3. Physical principle of resonant photonic sensors

The resonant structure fitted to monitor the sessile droplet evaporation is composed of an integrated access waveguide coupled with a series of racetrack shaped MRs; the water droplet is positioned on top of this circuit. The presence of several resonators allows us to have more precise measurements; indeed, it increases the extinction ratio, i.e. it makes the resonant peaks deeper [20]. Another effect of the multiplication of the number of resonators is to cover a larger surface area thus allowing to average the measurements over space, which is particularly useful for soft matter measurements. An optical mode propagating in a waveguide travels both in the core and in the claddings of the waveguide. Indeed, by resolving Maxwell's equations in the different parts of the waveguide [21], the solution yields an oscillating component in the core region and an evanescent one in the claddings. For sensing applications, it is the interaction between the evanescent wave and the close environment of the waveguide that modifies the properties of the optical mode in a measurable way. Inside a resonator, only the waves presenting a phase accordance after one round can circulate. This property imposes a condition on the resonant wavelength: $P \cdot n_{\text{eff}}^g = m \cdot \lambda_{\text{res},m}$ with P the perimeter of the resonator, $\lambda_{\text{res},m}$ the resonant wavelength of order

m , n_{eff}^g the effective group index of the mode and m an integer. The effective index of the mode mathematically corresponds to the eigenvalue of the whole structure and is related to the effective propagation constant of the mode $\beta = k_0 \cdot n_{\text{eff}}^g$ with k_0 the wavenumber in vacuum. Its value depends on the values of the indices of the different materials composing the waveguide (core as well as cladding) [21]. It also depends on the geometrical features of the guiding structure; for example, a curvature in the waveguide induces an increase of the effective index [22]. Eventually, the effective group index also depends on both the material and the modal dispersion. Applying the resonance condition to two consecutive resonant wavelength values, we get $\lambda_{\text{res},m} = \frac{P n_{\text{eff}}^g}{m}$ and $\lambda_{\text{res},m+1} = \frac{P n_{\text{eff}}^g}{m+1}$ and their difference: $\lambda_{\text{res},m} - \lambda_{\text{res},m+1} = \frac{P n_{\text{eff}}^g (m+1-m)}{m(m+1)}$. As $m \gg 1$ and $P \gg \lambda_{\text{res},m}, \lambda_{\text{res},m+1}$, we can consider the following approximation; $\frac{1}{m} \approx \frac{1}{m+1}$: this entails: $\lambda_{\text{res},m} - \lambda_{\text{res},m+1} = \frac{P n_{\text{eff}}^g}{m^2}$. Finally, $\lambda_{\text{res},m}$ and $\lambda_{\text{res},m+1}$ are very close to one another, and near to the central excitation wavelength λ_0 ; then, considering again the resonance condition $P \cdot n_{\text{eff}}^g = m \cdot \lambda_0$, the difference between two resonant wavelengths, called the free spectral range (FSR) is given with:

$$\text{FSR} = \frac{\lambda_0^2}{P n_{\text{eff}}^g}. \quad (1)$$

Assuming a temporal evolution of the guiding conditions, a relevant dynamic tracking of the $\text{FSR} \equiv \text{FSR}(t)$ thus gives information on the dynamics of $n_{\text{eff}}^g \equiv n_{\text{eff}}^g(t)$. Since the geometrical shape of the resonator, the wavelength and the indices of both the core and the substrate are fixed: the only influence on the FSR results from any evolution of the upper cladding; in our case, the evaporation of the water droplet. In terms of guiding theory, this evaporation is equivalent to a cladding layer with time dependent thickness $2e(t)$ as depicted in figure 2 (see section 4 for further details). In the case of a slab waveguide, the relation between the variation rate of the thickness of the first upper cladding and the variation of the effective propagation constant of the associated mode is [23]:

$$\frac{de}{dt} = \frac{\alpha_e + \gamma_e \tau_e + \kappa_e \tau_e^2 - \xi_e \left(\text{Arcth} \left(\frac{r}{s} \right) - \text{Arcth} \left(\frac{q}{s} \tau_e \right) \right)}{\sigma_e + \chi_e \tau_e^2} \beta \frac{d\beta}{dt}. \quad (2)$$

With $\alpha_e, \gamma_e, \tau_e, \xi_e, \kappa_e, \chi_e, \sigma_e, r, s$ and q parameters depending on the indices of the different claddings (for a comprehensive analysis please refer to [23]). This relation is equivalent to a displacement along the dispersion curve of the structure in time, for an arbitrary rate of variation of the thickness $2e(t)$ of the first upper cladding (including nonlinear rate of variation).

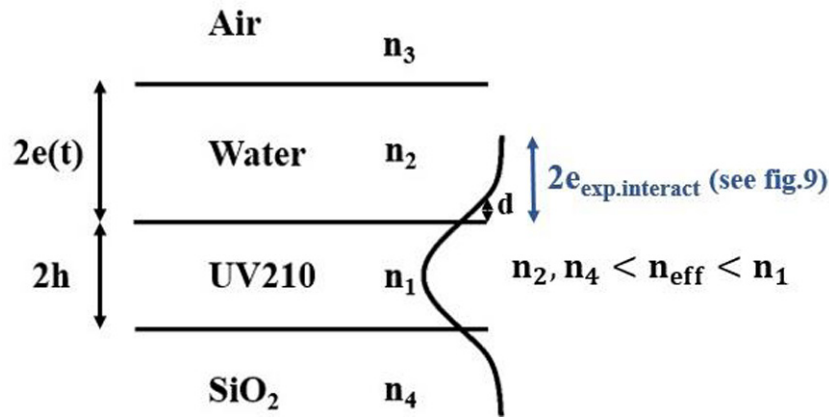


Figure 2. Schematic description of a four-layer guiding structure. The first upper cladding representing the evaporating water droplet has a time varying thickness $2e(t)$. The depth of penetration of the evanescent tail is given by $d = \frac{\lambda_0}{2\pi\sqrt{n_{\text{eff}}^2 - n_2^2}}$. The experimental value of interaction $2e_{\text{exp.interact}}$ corresponds to the total length of the evanescent tail. The cone of light of guided mode is represented by n_2 , $n_4 < n_{\text{eff}} < n_1$.

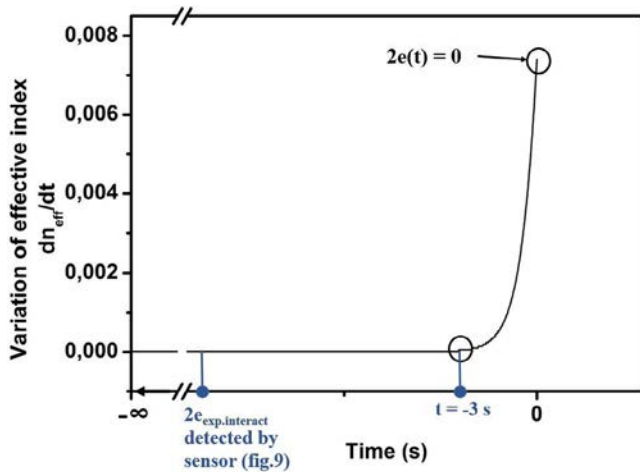


Figure 3. Evolution of the variation of the effective index of the mode against time in case of a 4-layer slab waveguide with time varying thickness of the first upper cladding. The simulation parameters are: excitation wavelength $\lambda = 795 \text{ nm}$, initial thickness of the first upper cladding $2e(t = 0) = 2 \mu\text{m}$, thickness of the guiding layer $2h = 0.8 \mu\text{m}$ and rate of variation G of the thickness of the first upper cladding $G = \frac{d(2e)}{dt} = 0.2 \mu\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$. The evanescent tail begins to interact with the air/water interface at a virtual time own to the propagating method presented in [22] $t = -3 \text{ s}$, associated with $d_{\text{fig2}} = 2e(t = -3 \text{ s}) = 450 \text{ nm}$ with previous value of G .

As this model concerns the behavior of a slab waveguide, it cannot be used to describe quantitatively the present experiment, but may afford a valuable qualitative insight regarding the evolution of β and thus the FSR behavior of the resonant structure. Figure 3 depicts the variation of the effective index against time according to this model. The parameters used for this simulation are: core index $n_1 = 1.595$ (UV210), first upper cladding index $n_2 = 1.33$ (water), second upper cladding index $n_3 = 1$ (air) and substrate index $n_4 = 1.453$ (SiO_2) at a wavelength of $\lambda = 795 \text{ nm}$, thickness of the guiding layer $2h = 800 \text{ nm}$, initial thickness of the first upper cladding $2e(t = 0) = 2 \mu\text{m}$ and speed of approach of the n_2/n_3 interface

$\frac{d(2e)}{dt} = 0.2 \mu\text{m} \text{ s}^{-1}$. This simulation shows that after a period of non-varying effective index, it rises dramatically until total disappearance of the layer. The flat part of the graph is related to the fact that the evanescent tail of the mode does not interact with the n_2/n_3 interface whereas it comes to interact with any change of $n_{\text{eff}}^{\text{e}}$, i.e. when the thickness of the layer becomes sufficiently small. According to this model, the evanescent tail begins to interact when the first upper cladding is 450 nm thick. Finally, this simulation yields an increasing value of the effective index, which should translate into a diminution of the FSR in the experiment, according to equation (1).

4. Physics of evaporation

The mechanism of the evaporation of a sessile droplet has been extensively studied [24–26]. The evaporation of a liquid is a thermodynamic process occurring below the ebullition temperature of this liquid when it is surrounded by non-saturated air. The air is a mixture of gas, which can contain a certain amount of chemical species that should be in a liquid phase at the considered temperature. For example, water molecules are present in air at ambient temperature. The quantity of water in the air is quantified by its partial vapor pressure (or concentration) always limited by the saturated vapor pressure (respectively the saturated vapor concentration) which is the maximum pressure (concentration) of water that can be present in the air at a given temperature [27]. The evaporation is thus a process which describes the migration of molecules (here water molecules) from the liquid phase to a gaseous environment below the phase transition temperature. In the case of the evaporation of a sessile water droplet, two mechanisms take place. In one hand there is the strictly speaking evaporation which is the migration of water molecules from liquid phase to the ambient air until saturation, and in the other hand the diffusion of water molecules from saturated air in the close surrounding of the droplet to drier air far from this droplet, as depicted in figure 4. As this second mechanism is

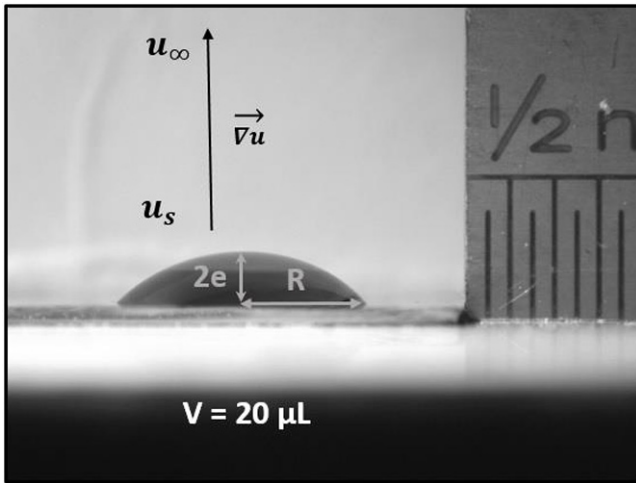


Figure 4. Side view photography of a water sessile droplet. The air is saturated with water in the close surrounding of the droplet (u_s) and drier far from this droplet (u_∞): then, a diffusion process drives the evaporation dynamics.

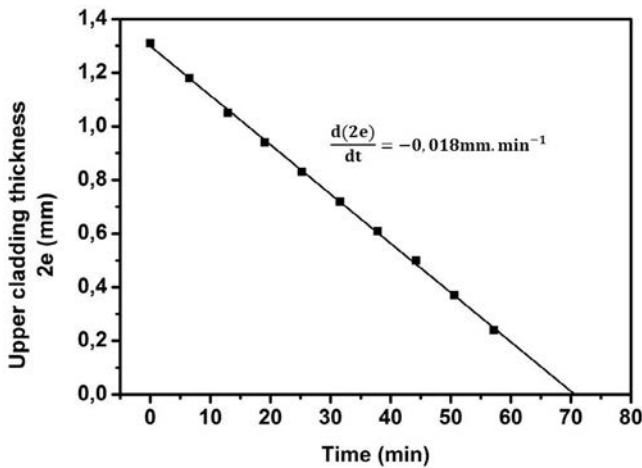


Figure 5. Evolution of the apex/substrate distance $2e(t)$ against time during the evaporation of a $20 \mu\text{l}$ sessile water droplet with a substrate temperature of 21°C . This distance is the thickness of the water layer yielding a constant rate of variation of $G = \frac{d(2e)}{dt} = -0.018 \text{ mm min}^{-1}$.

quite slower than the first one [28], the evaporation is driven by the diffusion process described by the well-known diffusion equation:

$$\frac{\partial u}{\partial t} = D\Delta u, \quad (3)$$

with u the vapor concentration and D the diffusion coefficient. It is a well-known fact that the diffusion coefficient is temperature dependent; it rises as the latter is increased, entailing a higher speed of evaporation. The evaporation time can be estimated in a simple manner as exposed in [29]. In the experimental conditions, i.e. with a relative humidity $\text{RH} \approx 60\%$, it may be estimated between 30 and 80 min, in good agreement with the experimental results.

The contact line between water, air and the substrate is pinned during the majority of the evaporation process in such a way that the droplet goes from a hemispherical shape to a

Table 2. Speed of approach of the air/water interface during evaporation for different substrate temperature.

T ($^\circ\text{C}$)	21	24	27
$\frac{d(2e)}{dt}$ ($\mu\text{m min}^{-1}$)	-18.4	-20.8	-31.2

flat shape. Then once the droplet is flat and as long as the contact line is pinned, the evaporation is equivalent to the diminution of the thickness of water above the guiding structure, considering the approach of the air/water flat interface. The unpinning of the contact line occurs between 10 and 15 s before the end of the evaporation and leaves no significant signature in the measured signal. By measuring the distance between the apex of the droplet and the substrate against time by means of a lateral camera (EO-2013C, see figure 6(c)), we can measure the speed of approach of this interface. Figure 5 represents the evolution of the distance apex/substrate $2e(t)$ against time for a $20 \mu\text{l}$ water droplet with a 21°C substrate temperature. This graph yields a constant speed of approach of the interface; table 2 recapitulates this speed for different substrate temperatures. As expected it may be highlighted that an increase of the temperature clearly enhances the speed of approach of the interface.

5. Experimental setup

In order to monitor the evaporation of a sessile water droplet by means of the above mentioned resonant structure, the latter is embodied in an optical bench. Figure 6 depicts a schematic description of the experimental setup. The light is emitted via a broadband laser diode (SUPERLUM SLD-331) centered at $\lambda_0 = 795 \text{ nm}$, yielding a full width at half maximum (FWHM) = 40 nm, thus allowing the creation of multiple resonance peaks in the transduced signal. Then, light is TE polarized and injected in the integrated circuit through a microscope objective. An isolator is placed between the polarizer and the injection objective in order to avoid any back reflection that could damage the laser source. A second microscope objective is placed beyond the chip so as to defocus the light towards an optical spectrum analyzer (OSA ANDO AQ-6315E) in one hand and to a CCD camera (Pulnix) in the other hand by the mean of a beam splitter. The CCD camera allows us to monitor the injection whereas the OSA is used to collect the spectral transduced signal. Figure 7 shows an example of a spectrum acquired this way. The use of a broadband laser with Gaussian shape in the spectral domain induces a Gaussian envelop to the acquired spectra. This Gaussian shape is taken into account in the data treatment software for the extraction of spectral parameters. Both microscope objectives as well as the chip are mounted on piezoelectric nano positioners (PI E-5631.3) to optimize the injection. Moreover, the chip temperature is controlled by means of a Peltier module plus a ILX driver. In order to deposit the droplet properly, with well centered resonators in this droplet, we use a $\times 10$ microscope objective together with a pipette holder as shown in figure 6(b). The side-view imaging camera depicted in figure 6(c) is used

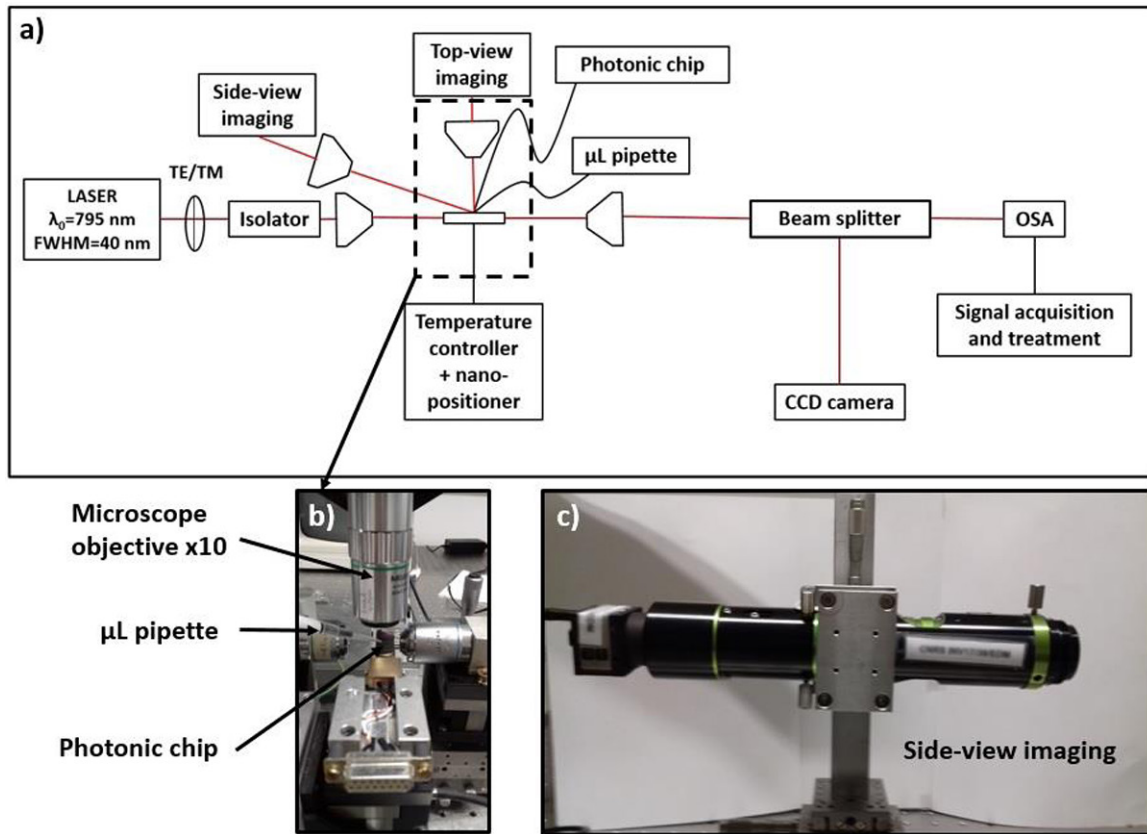


Figure 6. (a) Schematic representation of the experimental setup. A broadband laser centered at $\lambda_0 = 795$ nm and yielding FWHM = 40 nm is used to excite the resonator in order to create multiple resonance peaks in the transduced signal. The light is then TE polarized before being injected in the circuit through a microscope objective. Another microscope objective is used to defocus the light to an OSA and a CCD camera, by means of a beam-splitter. The CCD camera is used to monitor the injection whereas the OSA measures the transduced optical signal. The photonic chip is placed on a Peltier module to investigate the influence of temperature. Both microscope objectives as well as the chip are mounted on piezo-electric nano-positioners to optimize the injection. (b) A top-view imaging camera is placed above the chip together with a pipette holder for the adequate positioning of the droplet in order to center the latter on the resonators. (c) A side-view camera is positioned to measure the shape of the droplet against time during the evaporation thanks to which the photograph of figure 4 is taken.

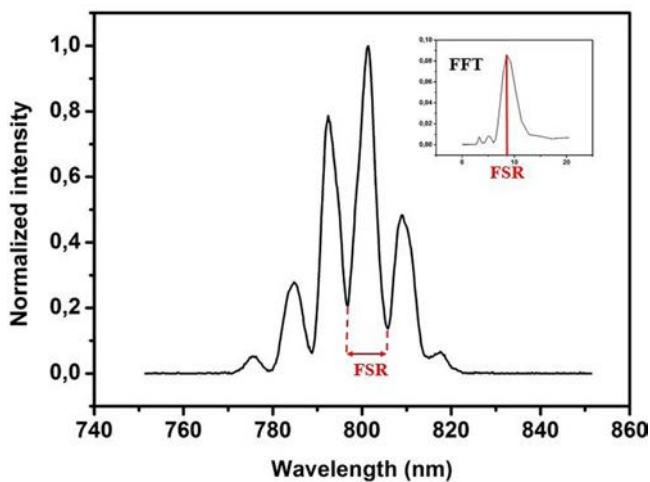


Figure 7. Characteristic spectrum transduced by a MR. The Gaussian envelop of this spectrum is the consequence of the use of a laser with Gaussian shape in the spectral domain. The FSR is the distance between two resonances in the wavelength domain and is calculated by FFT (see insert).

to perform the following of the thickness of water against time. The OSA is remotely commanded by a Matlab software (figure 8) with an acquisition frequency averaging one spectrum per second. This program, implemented by our team for this work, is linked to the OSA through GPIB protocol. This configuration allows us to remotely define the size of the working window of the OSA, as well as the number of spectra to be acquired and saved in a.txt file located in a pre-defined folder. The spectra being recorded, the FSR is extracted by means of a fast Fourier transform (FFT) calculation program. Such a classical transform is a mathematical operation that extracts all the relevant frequencies contained in a given spectrum (see insert figure 7). Here the FSR, as the pseudo-period of the transduced pseudo-periodic signal, is given by the maximum value of the FFT. The value of the FSR is extracted by means of a second order Lagrange interpolation of the FFT peak. All measurements were performed with 20 μ l water droplets deposited on the surface of the chip with their relevant acquisition of spectra during the whole time of evaporation. In order to study the influence of temperature,

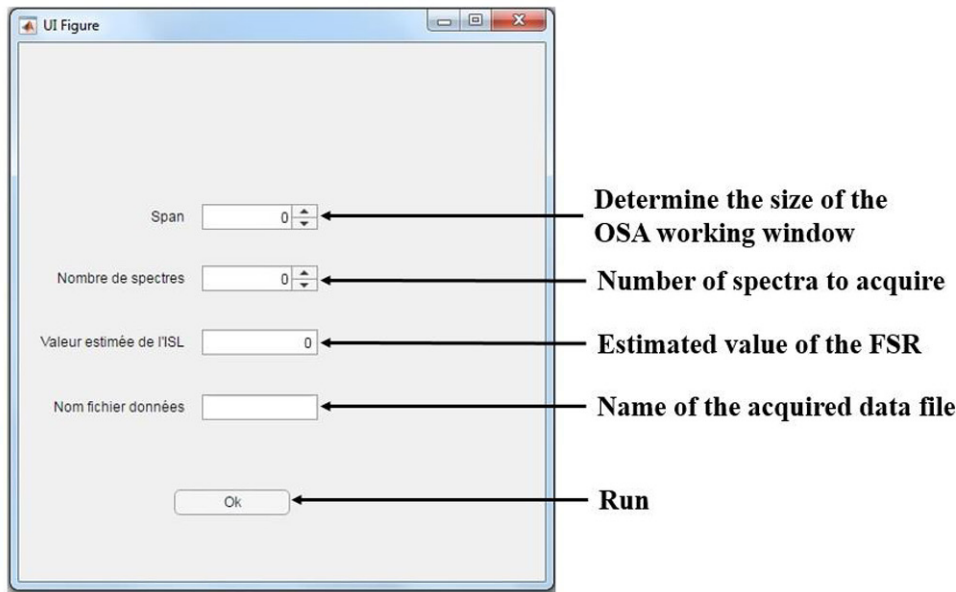


Figure 8. Human-machine interface for the remote control of the OSA. A home-made Matlab program allows to communicate with the OSA by GPIB protocol in order to acquire the spectra against time. The user can determine the size of the working window of the OSA, the number of spectra to acquire and the name of the file where the data are stored.

these experiments were performed with different substrate temperatures: respectively, 21 °C, 24 °C and 27 °C.

In addition to the optical measurements performed by means of the photonic chip, a second assessment was realized to monitor the evolution of the mass of the water droplet during the evaporation. To this end, the photonic chip being positioned on a precision balance (Sartorius MC BA 200), the water droplet was then deposited on the chip so as to avoid surface tension differences compared to the optical experiment. Indeed, such a difference might alter the conditions of evaporation. The mass of the sessile droplet was then monitored during the whole process, prior thorough evaporation. This experiment was performed with a temperature maintained at 21 °C.

6. Results and discussion

In the results of the optical experiments, the given value of the FSR is normalized with respect to its initial value during the concerned experiment. As a result, in the following, the FSR is considered to have no dimension. The dynamic behavior of the FSR remains qualitatively the same for each temperature and is presented together with the evolution of the thickness $2e(t)$ of the water layer in figure 9 for a chip temperature of 27 °C. This $FSR = f(t)$ graph shows three distinctive steps (I, II and III). During step I, the FSR value is constant; the resonant circuit is not sensitive to the evaporation because the air/water interface is too far from the resonator. Indeed, the evanescent tail of the mode does not interact with this interface and in terms of guiding theory, the water can then be considered as a semi-infinite cladding. Step III also features a constant value of the FSR, but lower than that of step I. This step starts when the water droplet is entirely evaporated ($2e = 0$); then, the related FSR value corresponds to the resonance conditions

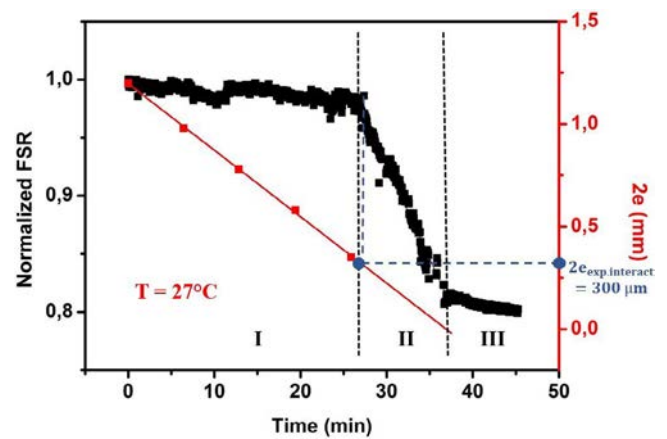


Figure 9. Evolution of the FSR (black curve) and of the thickness of the water layer $2e$ (red curve) against time during the evaporation process for a substrate temperature of 27 °C. Three steps appear in the process according to the evolution of the FSR: firstly it yields a constant value, then decreases linearly until it stabilizes at another constant value, lower than the first one.

with air as the upper semi-infinite cladding. Between these two configurations, step II put on display a progressive linear decrease of the FSR. This evolution of the FSR value is due to the progressive approach of the air/water interface within the range of interaction with the evanescent tail of the optical mode. Figure 10 depicts schematically the conditions characterizing the three steps of the experiment. The fact that the FSR decreases during the approach is in accordance with the prediction made in section 3. Compared behaviors involving different temperatures are presented on figure 11. It is clear that the higher is the temperature of the chip, the steeper is the slope of the FSR. Indeed, as the temperature increases, the speed of approach of the air/water interface increases as well, due to the temperature dependency of the coefficient

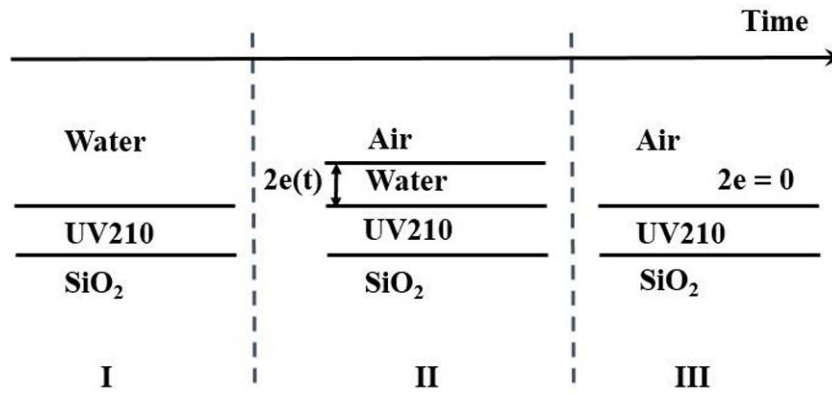


Figure 10. Schematic representation of the evolution of the guiding structure during the evaporation process. Three different steps are identifiable in this process. Step I refers to the initial conditions when water is considered as a semi-infinite cladding (no interaction between the evanescent tail and the air/water interface); step II shows the progressive dynamic approach of the air/water interface in the close surrounding of the guiding structure (then, the evanescent tail interacts with the interface); step III is related to the final state, when the droplet is entirely evaporated, with air as a semi-infinite cladding.

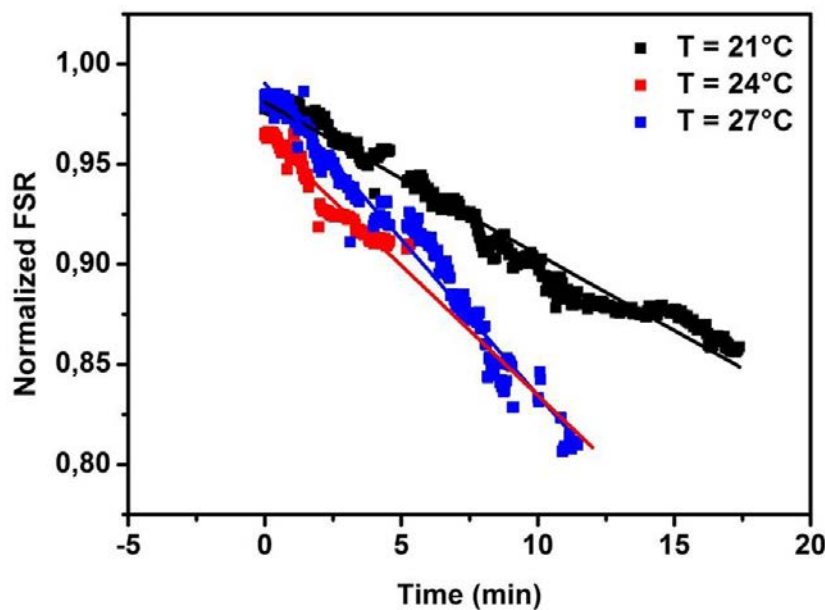


Figure 11. Comparison between falling off FSR values during evaporation for three different temperatures: 21 °C, 24 °C and 27 °C. The values of slopes are $\frac{dFSR}{dt} = -0.008 \text{ min}^{-1}$ for the black curve, $\frac{dFSR}{dt} = -0.013 \text{ min}^{-1}$ for the red one, and $\frac{dFSR}{dt} = -0.016 \text{ min}^{-1}$ for the blue one. It is clear that the higher the temperature, the steeper the slope, which is consistent with an increased rate of evaporation.

of diffusion driving the evaporation process. On figure 10, by measuring the thickness of water when the FSR begins to decrease, we find that the interaction between the evanescent tail of the mode and the air/water interface begins to occur as $2e(t) = 300 \text{ }\mu\text{m}$. This range of interaction is much larger than the one observed from the simulation in section 3 in case of a slab waveguide. Such a large range of interaction has already been observed in [30] through substrate modes that are unbounded evanescent modes. Moreover this property is well known within the telecommunication community because it can induce crosstalking between different waveguides or channels.

Regarding the evolution of the mass of the water droplet, only the last stages of the evaporation process are of interest. Indeed, because the photonic chip is sensitive only in the short range, the comparison between the optical and weighing

measurements must be done in these last stages. Figure 12 depicts the evolution of the mass of the sessile water droplet during the last 25 min of the evaporation process, for a temperature of 21 °C. This graph points out a constant decay of the mass with 0.1 mg min^{-1} . From this measurement and the optical one, we can deduce the variation of the normalized FSR per mass unit. Indeed, $\frac{\Delta(FSR)}{\Delta m} = \frac{\Delta(FSR)/\Delta t}{\Delta m/\Delta t} = 8.4 \cdot 10^{-2} \text{ mg}^{-1}$. Using the same method for the calculation of the variation of the FSR per unit of thickness of the water layer, we get $\frac{\Delta(FSR)}{\Delta(2e)} = 4.55 \cdot 10^{-1} \text{ mm}^{-1}$. From these two values, we can compute the variation of mass per unit of thickness: $\frac{\Delta m}{\Delta(2e)} = 5.44 \text{ mg} \cdot \text{mm}^{-1}$. As the drop shows a flat shape during the last stages of evaporation, we can model it by a cylinder of height $2e$ and radius r . The variation of mass and height are

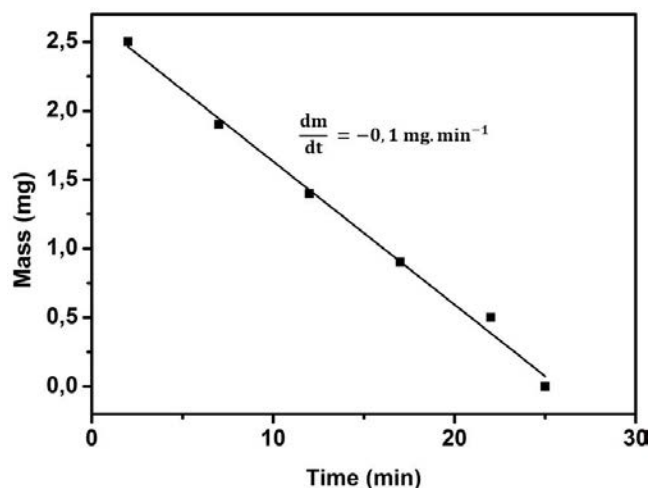


Figure 12. Evolution of the mass of an evaporating sessile water droplet against time. The measurement has been performed at 21 °C for a 20 μl droplet.

thus linked: $\frac{\Delta m}{\rho} = \Delta(2e) \cdot \pi r^2$, with ρ the density of water. From this expression, we compute $\frac{\Delta m}{\Delta(2e)} = 12.6 \text{ mg} \cdot \text{mm}^{-1}$, with $\rho = 1000 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ and $r = 2 \text{ mm}$, which is in fair agreement with the previously found value. The link between the FSR, the mass and the thickness of the water layer on top of the resonant circuit may be demonstrated this way, showing then the possibility to design optical weighing scales by means of such a circuit.

7. Conclusion

This work presents a study of the behavior of the transduced signal of an integrated photonic MR considering an evaporating water droplet positioned upon it. By dynamically tracking the FSR associated to the optical mode propagating in the structure, we have pointed out three steps characterizing the whole process among which one is quantitatively correlated to the evaporation dynamics. A side view imaging of the droplet during the evaporation enables us to measure the distance between the apex of the hemispherical droplet and the substrate against time. As the droplet flattens during the evaporation, in terms of guiding theory, this distance can be interpreted as a water upper cladding layer of time-variable thickness $2e(t)$, with a relevant approach of the flat air/water interface. This consideration makes it possible to forecast qualitatively the behavior of the FSR against time in accordance with the experimental results. Weight measurements have also been performed by means of a precision balance to measure the mass of the droplet against time under evaporation. This measurement, together with the optical one gives a numerical link between the variations of the FSR of the sensor and the mass change of the droplet. Such a link could prove most valuable so as to design precision optical scales based on a resonant photonic integrated circuit. For these mass measurements, an analogy can be made with surface acoustic wave sensors [31], and more specifically with quartz crystal microbalances. Indeed, they both rely on the

tracking of the evolution of the resonant frequencies or wavelengths of the device for measurements of mass. In the case of a quartz crystal microbalance, the resonance wavelengths are shifted by a small addition or removal of mass, and are related to the viscoelastic properties of the sample, whereas in the case of photonic MRs, the resonance shifts are related to the optical properties of the studied sample. Further studies should be performed in order to investigate the evaporation dynamics of more complex fluids such as colloidal suspensions or biological fluids, and their impact on the resonant conditions of such a device. Indeed, the comprehensive knowledge of the evaporation conditions of liquid food such as milk is of critical importance in the food industry in order to monitor the physico-chemical properties of the dehydrated product in terms of conservation and edibility. In addition, our approach should be quite inviting for the medical sector, as the monitoring of drying blood samples is of paramount importance for preliminary diagnosis. Further studies should also be performed to investigate other dynamical changes in the environment of the resonator, together with their impact on the resonance conditions.

Acknowledgment

The authors would like to thank the ‘Direction de l’Innovation et de Relations avec les Entreprises’ DIRE of the CNRS, Rennes Metropolis and Fondation Rennes 1 for financially supporting this research.

ORCID iDs

Lucas Garnier  <https://orcid.org/0000-0002-9103-4358>

Bruno Bêche  <https://orcid.org/0000-0001-9722-9060>

References

- [1] Rabus D G 2007 *Integrated Ring Resonators the Compendium* (New York: Springer)
- [2] Rabiei P, Steier W H, Zhang C and Dalton L R 2002 Polymer micro-ring filters and modulators *J. Lightwave Technol.* **20** 1968–75
- [3] Vollmer F and Arnold S 2008 Whispering-gallery-mode biosensing: label-free detection down to single molecules *Nat. Methods* **5** 591–6
- [4] Carlborg C F *et al* 2010 A packaged optical slot-waveguide ring resonator sensor array for multiplex label-free assays in labs-on-chip *Lab Chip* **10** 281–90
- [5] Li Q, Vié V, Lhermite H, Gavio E, Bourliou C, Moréac A, Morineau D, Dupont D, Beaufiles S and Bêche B 2017 Polymer resonators sensors for detection of sphingolipid gel/fluid phase transition and melting temperature measurements *Sensors Actuators A* **263** 710–7
- [6] Chao C-Y, Fung W and Guo L J 2006 Polymer microring resonators for biochemical sensing applications *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* **12** 134–42
- [7] Qavi A J and Bailey R C 2010 Multiplexed detection and label-free quantitation of microRNAs using arrays of silicon photonic microring resonators *Angew. Chem., Int. Ed. Engl.* **49** 4608–11

- [8] Qavi A J, Kindt J T, Gleeson M A and Bailey R C 2011 Anti-DNA:RNA antibodies and silicon photonic microring resonators: increased sensitivity for multiplexed microRNA detection *Anal. Chem.* **83** 5949–56
- [9] Schweinsberg A, Hocdé S, Lepeshkin N N, Boyd R B, Chase C and Fajardo J E 2006 An environmental sensor based on an integrated optical whispering gallery mode disk resonator *Sensors Actuators B* **123** 727–32
- [10] Meziane F, Raimbault V, Hallil H, Joly S, Conédéra V, Lachaud J L, Béchou L, Rebière D and Dejeus C 2015 Study of a polymer optical microring resonator for hexavalent chromium sensing *Sensors Actuators B* **209** 1049–56
- [11] Castro-Beltrán R, Huby N, Vié V, Lhermite H, Camberlein L, Gaviot E and Bêche B 2015 A laterally coupled UV210 polymer racetrack micro-resonator for thermal tenability and glucose sensing capability *Adv. Dev. Mater.* **1** 80–7
- [12] Su J 2015 Label-free single exosome detection using frequency-locked microtoroid optical resonators *ACS Photonics* **2** 1241–5
- [13] Cipelletti L and Ramos L 2002 Slow dynamics in glasses, gels and foams *Curr. Opin. Colloid Interface Sci.* **12** 23–8
- [14] Bissig H, Romer S, Cipelletti L, Trappe V and Schurtenberger P 2003 Intermittent dynamics and hyperaging in dense colloidal gels *Phys. Chem. Comm.* **6** 21–3
- [15] Manley S et al 2005 Time-dependent strength of colloidal gels *Phys. Rev. Lett.* **95** 048302
- [16] Le Floch-Fouéré C, Lanotte L, Jeantet R and Pauchard L 2019 The solute mechanical properties impact on the drying of dairy and model colloidal systems *Soft Matter* **15** 6190–9
- [17] Lanotte L, Boissel F, Shuck P, Jeantet R and Le Floch-Fouéré C 2018 Drying-induced mechanisms of skin formation in mixtures of high protein dairy powders *Colloids Surf. A* **553** 20–7
- [18] http://microchem.com/PDFs_Dow/UV210%20Data%20Sheet.pdf
- [19] Duval D, Lhermite H, Godet C, Huby N and Bêche B 2010 Fabrication and optical characterization of sub-micronic waveguide structures on UV210 polymer *J. Opt.* **12** 055501
- [20] Castro-Beltrán R, Huby N, Loas G, Lhermite H, Pluchon D and Bêche B 2014 Improvement of efficient coupling and optical resonances by using taper-waveguides coupled to cascade of UV210 polymer micro-resonators *J. Micromech. Microeng.* **24** 125006
- [21] Snyder A W and Love J D 2000 *Optical Waveguide Theory* (London: Kluwer)
- [22] Heiblum M and Harris J H 1975 Analysis of curved optical waveguides by conformal transformation *IEEE J. Quantum Electron.* **11** 75–83
- [23] Garnier L, Doliveira A, Mahé F, Gaviot E and Bêche B 2019 Temporal derivation operator applied on the historic and school case of slab waveguides families eigenvalue equations: another method for computation of variational expressions *Eur. Phys. J. Appl. Phys.* **87** 10501
- [24] Picknett R G and Bexon R 1976 The evaporation of sessile or pendant drops in still air *J. Colloid Interface Sci.* **61** 336–50
- [25] Hu H and Larson R G 2002 Evaporation of a sessile droplet on a substrate *J. Phys. Chem. B* **202** 1334–44
- [26] Preter E, Katzman M, Oren Z, Ronen M, Gerber D and Zadok A 2016 Fiber-optic evaporation sensing: monitoring environmental conditions and urinalysis *J. Lightwave Technol.* **34** 4486–92
- [27] Giordani N, Camberlein L, Gaviot E, Polet F, Pelletier N and Bêche B 2007 Design and experimental validation of SU-8 based Micro-psychrometers *IEEE Trans. Instrum. Meas. Tech.* **56** 102–6
- [28] Landau L D and Lifshitz E M 1982 *Course of Theoretical Physics VI: Fluid Mechanics* (Oxford: Pergamon)
- [29] Barash L Y, Bigioni T P, Vinokur V M and Shchur L N 2009 Evaporation and fluid dynamics of a sessile drop of capillary size *Phys. Rev. E* **79** 046301
- [30] Bêche B, Jimenez A, Courbin L, Camberlein L, Artzner F and Gaviot E 2010 Functional silica nano-connections based on fluidic approach for integrated photonics *IEEE Electron. Lett.* **46** 356–8
- [31] Mujahid A, Afzal A and Dickert F L 2019 An overview of high frequency acoustic sensors—QCMs, SAWs and FBARs—chemical and biochemical applications *Sensors* **19** 4395

Sphingolipid Gel/Fluid Phase Transition Measurement by Integrated Resonance Probe Light

¹ Qingyue LI, ¹ Lucas GARNIER, ¹ Véronique VIE, ² Hervé LHERMITE,
¹ Alain MOREAC, ¹ Denis MORINEAU, ³ Claire BOURLIEU-LACANAL,
¹ Aziz GHOUFLI, ⁴ Etienne GAVIOT, ¹ Eric GICQUEL, ^{1,*} Bruno BÊCHE

¹ Univ, Rennes, CNRS, IPR (Institut de Physique de Rennes) - UMR 6251, F-35000 Rennes, France

² Univ, Rennes, CNRS, IETR (Institut d'Electronique et des Télécommunications de Rennes) -
UMR 6164, F-35000 Rennes, France

³ Univ Montpellier II, INRA CIRAD, IATE, F-334060 Montpellier, France

⁴ Univ Maine, CNRS, ILAUM (Laboratoire d'Acoustique de l'Université du Maine) -
UMR 6613, F-72000 Le Mans, France

Tel.: +33 (0)223235257

E-mail: bruno.beche@univ-rennes1.fr

Received: 25 June 2018 / Accepted: 31 August 2018 / Published: 30 September 2018

Abstract: The paper describes nanophotonic sensors realized by way of inexpensive organic processes. As hybrid silica/polymer resonators, they are suited to detect biological molecules in gel/fluid phase transition at infinitesimal concentrations (sphingomyelin lipids). Such a family of photonic structures is made of specific amplified deep UV210 photoresist-polymer waveguides coupled by a sub-wavelength gap with various racetrack micro-resonators. Thus, temperature dependent wavelength shifts characterizing the optical resonances of the device have been evaluated, highlighting a low thermal feature of the sensor, which is advantageous for this specific application. With an adapted vesicle lipid deposition process, specific in biology, together with an apt experimental thermo-photonic protocol, the dynamic evolution of the sphingomyelin lipid phase transition has been followed and assessed. The ability to detect their gel/fluid transition phase and melting temperature has been demonstrated with a mass product factor value 10^7 lower than that of classical methods as differential scanning calorimetry. The global equilibrium regimes of the coupling effect of resonances and the scattered part of the light are clearly highlighted as markedly modified by the dynamic of the sphingomyelin during its own phase transition.

Keywords: Nanophotonics, Microresonators, Sensors, Polymers, Lipids, Sphingomyelin, Phase transition detection.

1. Introduction

Microresonators [1] are useful components so as to shape and realize integrated photonic devices leading to the development of various applications: researches for engineering and optical telecommunications, biophysics, biochemical [2-3], biology [4] and biomedical. Such optical microcavities are interesting

devices allowing to control optical fields as regards their spatial localization and lifetime $\tau=Q/\omega$, where Q represents the quality-factor of such an optical resonance and $\omega=2\pi\nu=2\pi c/\lambda$ are the pulsation, the frequency and the wavelength respectively. To a certain extent, as such resonant quantifications met in physics are due to a geometric recirculation of the light called whispering gallery modes (WGMs). These

quantifications emerge due to the installation of a cyclic condition (or stationary waves) written as $P_{opt}=t \cdot \lambda_{Maxwell}$, with P_{opt} the 'optical'-perimeter of the microresonator and t an integer. This principle can be seen as the quantification of the orbital kinetic moment $\|\vec{L}\|=\|\vec{p} \wedge \vec{r}\| \equiv n \cdot \hbar = \oint "mv". ds$ (as a quantified photonic orbital), where $\|\vec{p}\| = \hbar \cdot \|\vec{k}\| = 2\pi\hbar/\lambda_{Maxwell}$ quantity of movement, n integer, $r=P_{opt}/2\pi$ radius of the circle link to the previous P_{opt} perimeter, and \hbar Planck or Dirac constant. Such WGMs modes increase both the field and merit of integrated photonics regarding a multiple set of optical telecommunications applications as components and transmissions (filters, modulators, de/multiplexing components, laser), together with sensors for metrology with platform analysis and detection procedure. The spatial localization of the light, due to the nature of the evanescent part of the light, acts as a tunable light probe for the surrounding so as to detect the changing environment. Various approaches and processes have been developed on different classes of materials in order to shape, on planar technologies (2D) or 3D-configurations, different shapes of microresonators (disk, ring, stadium, racetrack, sphere) [5]. Optical resonators based on organic materials exhibit a lot of advantages due to the well-established photolithographic technologies, the versatility of the polymer properties and functionalization and the possibility to be shaped starting from a liquid resist material with classical fluidic thin layer depositions. These controlled processes are reproducible concepts. The reasons of the progress in this research field are justified with the potential of numerous available materials, the simplicity of the relevant processes, the specific methods and measurements protocols. After the substantial development in optical telecommunications, organic materials based resonators have received intensive attention in metrology and sensing environmental applications, biology, medical and also food quality control. These photonics sensors relying on resonators have become the subject of research with important developments of sensing platforms devoted to the label-free detection of a variety of chemical, biochemical, biological agents and biomedical elements.

Sphingomyelin (SM) is a type of sphingolipid (or sphingophospholipids), found in animal and human cell membranes. SM is strongly prominent in myelin, a membranous sheath that surrounds and insulates the axons of numerous neurons. In animals and humans, SM represents 80 % of all sphingolipids, and typically make up 15 mol % in average of plasma membrane lipids; the higher concentrations are found in nerve tissues, gristles, blood cells and ocular areas... This plasma membrane component participates in many signaling pathways for electric information and transmission. The metabolism of SM creates many another products playing significant roles in the cell. The lipids used in such study is the sphingomyelin, which plays an important role in the particular

function of plasma membrane of cells. This work is devoted to investigate low-cost reproducible polymeric photonic sensors integrated on a chip for such bio-detection. They are aimed to perform efficient sphingomyelin and lipid transition detection based on a gel-liquid state-change; this one corresponds to a melting temperature determination and then to a first order phase transition in biophysics.

2. Materials, Methods and Analyzes

Such section called Materials, Methods and Analyzes describes the global fabrication involving thin layer processes, starting from the chemical and materials aspects to achieve suitable deposition of biological samples, which are relevant in our compound approach. This comprises the use of attractive organic amplified photoresist with specific deep UV technology associated with an appropriate lipid deposition process related to biology. In addition, sundry characterization methods regarding the on-chip-device are described so as to validate both its concept and design. Furthermore, we also detail the versatile principle of operation and justify the measurements approach together with experiments developed for such a specific bio-metrology ascribed to temperature dependent lipid phase transition detection.

This transverse work features key points distributed over several levels considering: the nature of the specific organic with regard to materials, the technologies of thin layer processes for shaping the chips, associated with the method of deposition in biology (called fusion vesicle deposition method) and the whole protocol of measurements developed for such sensors: Then we highlight the ability to detect in a simple way any specific gel-liquid transition phase of sphingomyelin lipids with a mass product factor 10^7 lower than that of the conventional method called differential scanning calorimetry (DSC) that requires typically a quantity of substance averaging the mg. The first key point refers to the use of a polymer called UV210 from the photoresist chemistry (Shipley) based on deep UV processes and light/matter interactions [6]. We develop such a deep UV lithography approach at 248 nm (that is not the conventional peak, called i-line at 365 nm) by way of coupling a straightforward mercury lamp with an adequate and selective filter, as a significantly low cost method compared with electron beam lithography and ArF or KrF excimer laser or optical systems using F₂. Such an organic exposure to deep UV radiation at $\lambda_{flash}=248$ nm enables valuable low-cost realizations of sub-wavelength photonics structures considering the gap between waveguides and micro-resonators (MRs) within the order of λ_{flash} (due to the Raleigh's criteria and its associated spatial resolution limit). Such a deep UV (DUV) polymer made of poly p-hydroxystyrene and poly t-butyl acrylate is called an amplified chemical photoresist including a photo acid generator

(PAG) to increase the sensitivity with UV energy exposure as regards such a specific photolithography mechanism. Indeed the DUV-insolation induces the production with the PAG of a small quantity of acid acting as a catalyst during the exposure. Thermally activating this acid with a post exposure bake causes the proton H⁺ to act as a catalyst and unblock the group from the PHS. Then, the cascade of acid-activated chemical changes brings about a change in polarity of the polymer which goes from lipophilic to hydrophilic states. This make the PHS soluble in the exposed areas. Thus, DUV exposed areas become soluble in a basic developer as the tetra-methyl ammonium hydroxide. Relevant integrated DUV210 MRs photonics structures have been fabricated according to simple procedures and adequate parameters described in the next section.

2.1. Specific Materials Processes and Parameters to Obtain Sub-micrometer Resolution with Amplified Chemical Polymer (DUV210)

On a silicon substrate, a thermal silica layer is formed by wet oxidation method. We must first clean the wafer with the method RCA (developed by 'Radio Company of America'), to avoid all impurities. The plate is then put in a quartz oven with torch, the gas H₂ and oxidation gas O₂ being located in the flame for the combustion. A 3 hours stage in the oven at 1075°C can form 1000 nm of silica on the surface of the wafer, creating the silica lower cladding. After oxidation, the annealing at 700°C-800°C strengthens the single crystal structure. Such a thickness guarantees a highly stable and homogeneous refractive index under the organic waveguides and MRs so as to decrease the optical radiation losses regarding the propagation modes. After the substrate/cladding manufacturing, organic patterns are grown and shaped by way of specific processes involving deep UV lithography suited to the DUV210 polymer which is an amplified chemical resist. The adequate and optimized processes are illustrated in the following Table 1.

Table 1. Processes steps in cleanroom for UV210 polymer so as to shape MRs; (v, speed; a, acceleration; t, time; T, temperature; E, exposure dose).

Framework and Procedures (MRs in polymer)	Parameters of the Steps (v, a, t, T)
Spin-coating thickness, roughness	900 rpm, 5000 rpm/s, 30 s ~ 800-850 nm, ~ 2 nm
Softbake (t, T)	3min at 140°C
Deep UV ($\lambda_{flash}=248$ nm) exposure (OSRAM Hg lamp, dose, t)	E=20 mJ/cm ² , 27 s
Post-exposure softbake (t, T)	1 min at 120°C
Development (t, product)	30 s, Microposit MF CD-26
Final softbake (t, T)	12 h at 120 °C

A baking step makes the surplus solvent to evaporate and strengthens the adhesion of the polymer onto silica. The deep UV exposure is performed with a mercury short arc lamp (HBO 1000W/D, OSRAM). A quartz chromium mask is arranged above the wafer with the spread polymer layer. The lithographic pattern to be transferred is printed onto the mask and a 27 seconds exposure duplicates the mask patterns on the wafer in a suitable way. A 1 min annealing at 120 °C promotes the polymerization reaction so as to minimize the surface roughness (< 3 nm). Then, immersion in the developer Microposit MF CD-26 allows us to get the whole chip featuring the MRs. In order to optimize the test and the adequate photonic injection, integrated chips on such DUV210/SiO₂/Si multilayers are cleanly cleaved by way of a diamond tip. As an example, Fig. 1 illustrates the scanning electron microscopy (SEM) image of a typical 2 μ m-width rib waveguide (after the processes previously described in Table 1). So as to maintain single-modes operations, the height is shape close to the wavelength value that is close to 900 nm.

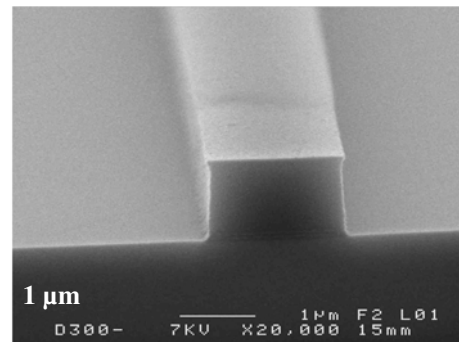


Fig. 1. Scanning electron microscopy (SEM) image; perfect aspect of the injection face.

Such an approach contributes to a valuable repeatability for mass production of cleanable and re-usable sensors. So as to operate on quasi-TE₀₀ and -TM₀₀ single-mode eigenvectors, adequate and straightforward simulations have been previously achieved considering the theory of electromagnetism in waveguides allowing us to obtain eigenvalues equations: then, all the series of quantified effective propagation constants $\beta=k_0 n_{eff}$ or effective indices n_{eff} can be settled defining then the apt opto-geometric parameters for such photonic structures as explained in next section.

2.2. Theory on Optic and Geometric Considerations Concerning the TE₀₀-TM₀₀ Single-mode Behavior

These typical dimensions (h-height and w-width) regarding refractive indices enable us to operate with exclusive optical single-mode TE₀₀-TM₀₀. The methodology supporting such simulations consists in

solving the J.C. Maxwell's equations in each part of the whole system while taking into account the continuity properties of the electromagnetic fields so as to obtain the so-called eigenvalues equations that highlight directly the overall quantifications of the fields viewed as eigenvectors. Such photonic structures or opto-geometrical systems show-off an intrinsic asymmetry especially in the optical indices entailing a cut to occur in the dispersion curves of the modes. As an example, considering the first operation of quantification along the direction perpendicular to the wafer surface with regard to the apt electromagnetism theory, it is easy to define the cut-thickness notion regarding both the TE_m and TM_m modes (m integer) within our structure:

$$h_{cut} = \frac{\lambda_0}{2\pi(n_{DUV210}^2 - n_{SiO_2}^2)^{1/2}} \{arctg[\Phi] + m\pi\}, \quad (1)$$

where

$$\Phi = \eta_{DUV210/upper-cladd} \left(\frac{n_{SiO_2}^2 - n_{upper-cladd}^2}{n_{DUV210}^2 - n_{SiO_2}^2} \right)^{1/2}$$

Here, $n_{material}$ stands for the relevant refractive indices, considering the DUV210 polymer core and respective claddings (lower SiO_2 , upper air or lipids) at λ_0 -wavelength; also, $\eta_{DUV210/upper-cladd} = 1$ or $\left(\frac{n_{DUV210}}{n_{upper-cladd}} \right)^2$ for their respective TE_m and TM_m polarizations.

The h_c cut-thickness values for TE and TM polarizations are respectively equal to 195 nm and 256 nm (for $m=0$), plus 800 nm and 860 nm (for $m=1$). Below the h_c -values at $m=0$, with no eigenvectors TE_0 and TM_0 allowing the light to occur, a consequent forbidden area is located out of the cone of light; the latter gives rise to the dispersion curves related with the family of bounded or guided modes. Between the ranging of h_c -values corresponding to the cut-thicknesses at respectively [$m=0$; $m=1$], both TE_0 - and TM_0 single-modes occur and propagate with a high probability of presence. A rib waveguide typically 800 nm in thickness \times 2 μm DUV210, arranged onto SiO_2/Si makes certain to maintain a single-mode characteristic: then, the device may be operated with respectively the optical propagation, an apt optical coupling between the waveguide and the micro-resonator element featuring the optical resonance phenomenon.

2.3. Analyzes of Materials and Quality of the Photonic Structures

Strict quality controls of the chip (materials, properties, geometries, sub-micron dimensions, surface aspects and so on) are then necessary with the help of various technologies and instrumentations concerning imaging and analysis: optical microscopy that may involve imaging with Nomarski operation in

Differential Interference Contrast (DIC), Atomic Force Microscopy (AFM, BRUCKER Nanoscope 8), Scanning Electron Microscopy (SEM) and Raman micro-spectroscopy and imaging (Fig. 2).



Fig. 2. Photograph of the whole Raman platform analysis.

The LabRAM HR800 Raman Spectrometer (from Horiba Scientific company, Jobin-Yvon) is a high-resolution spectral spectrometer coupled with a confocal microscope, several laser sources (633 nm He-Ne), (785 nm Toptica) and (532 nm Coherent) and nano-positioners. The coupling with a confocal microscope enables us to imaging a sample in 2D with a spatial resolution of the order of the spot size (0.9 μm) in the focal plane and a spectral resolution of typically 1 cm^{-1} per pixel. An apt laser excitation power lower than 0.1 mW is devoid of heating effect onto the photonics chip. Due to the 2D-planar geometry of the sensor, Raman spectroscopy is performed assuming a two dimensional analysis. Top view photographs by optical imaging and AFM allow to measure either globally or specifically located in specific areas, various geometric parameters regarding the waveguide/racetrack MRs devices (Fig. 3).

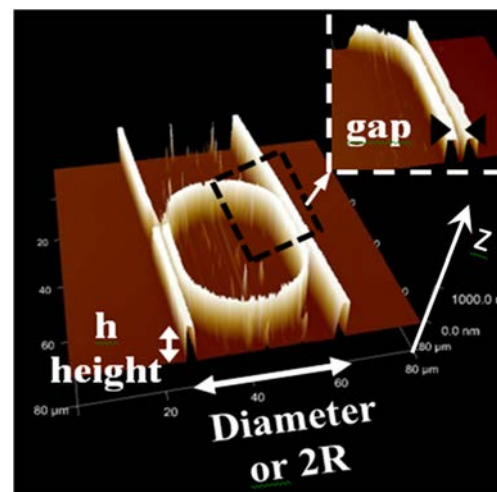


Fig. 3. AFM imaging: control of the photonic device including waveguide coupled with racetrack-resonator: with g-gap, h-height and R-radius of circle part.

The images were acquired in tapping mode in air. The z-scale is $1\ \mu\text{m}$ and the image size is $(80\times 80)\ \mu\text{m}^2$. Then, may be assessed: the *g*-gap of the evanescent physics of the coupling or the optical tunnel effect equal to $540\ \text{nm}$ (for an interesting selectivity), the coupling length ($L_c=15\ \mu\text{m}$) allowing to the light the time both to transit and couple into the resonant part of the MR circuit, plus the respective dimensions of radius $R=15\ \mu\text{m}$, $w=2\ \mu\text{m}$ and $h=860\ \text{nm}$ allowing only the single-mode existence of mathematic eigenvectors (TE_{00} and TM_{00}) considered with a $\lambda_0=795\ \text{nm}$ propagation wavelength (or laser).

Moreover, the DUV 210 surface analysis with AFM has confirmed a roughness lower than $2\ \text{nm}$ clearly minimizing the optical losses due to parasitic diffraction. The photonic structure was imaged with the MultiMode 8, an atomic force microscope from Bruker.

The studies by micro-Raman vibrational molecular spectroscopy and analysis measurements without destruction of materials, were carried out and results recorded on a LabRAM HR 800 used in visible configuration (Fig. 2). The micro-Raman spectroscopy analyses and detection of various signal signatures of each micro-material, can be led and the specific complex signal of the organic DUV210 established (stretching mode of phenyl ring at $1002\ \text{cm}^{-1}$ and the bending mode of aromatic olefinic at $855\ \text{cm}^{-1}$, Fig. 4). Moreover, filtering the enlarged signature and then choosing specific peaks characterizing the DUV210 (for example at $1002\ \text{cm}^{-1}$) it is also possible to image on 2D the waveguide/MR structure for a stringent quality control on geometry and materials.

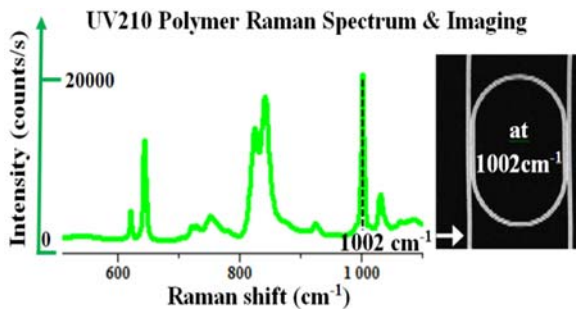


Fig. 4. Raman spectroscopy analyses of UV210 polymer plus Raman top view imaging of the overall photonic device by choosing $1002\ \text{cm}^{-1}$.

Concerning the lipid substance and deposition, Fig. 5 represents the chemical structure of the sphingomyelin which has been deposited by vesicle fusion method.

Milk sphingomyelin (MSM) was purchased from Avanti Polar Lipids (Alabaster, AL, U.S.A.) under lyophilized powder form with the purity of 99 % [7]. After solubilization in chloroform/methanol (1:2, wt), the solvent is removed under nitrogen flux. Then, the lipid film was solubilized in Milli-Q water at the final

concentration of $1\ \text{mg/mL}$. This aqueous solution was sonicated until it appears clear in order to form a suspension of small unilamellar vesicles. The temperature was maintained over $50\ ^\circ\text{C}$ to keep the lipid in fluid phase. Typically a droplet of $3\ \mu\text{L}$ of the lipid solution was deposited on the top of the device. The sedimentation and vesicle fusion lead to a multilayer formation on the top of the device. Then, a very low flux was applied to evaporate the water. The surface covered with the lipid film is around $5.5\ \text{mm}^2$. The thinness was then estimated at 300 layers of lipids that is typically $750\ \text{nm}$ of lipids (Fig. 6).

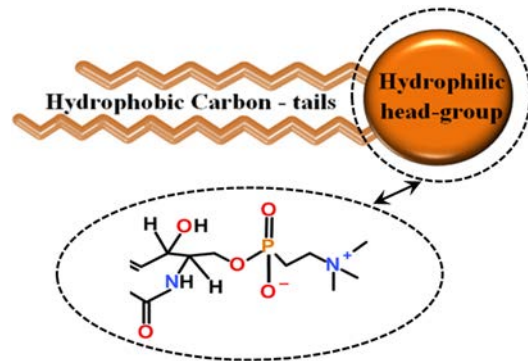


Fig. 5. Sphingomyelin: symbolic representation.

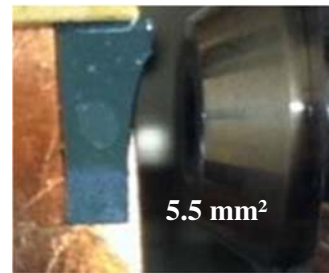


Fig. 6. Sphingomyelin after vesicle fusion deposition onto photonics MRs-structures; photography as upper-view.

Such a previous measurement is based on the calculation of the number of lipid molecules deposited (in $3\ \mu\text{L}$) with respect to the number of molecules necessary to cover the surface stain. Thanks to compression isotherms performed on the Langmuir trough, the mean molecular area of lipids can be determined and for MSM, this value is around $70\ \text{\AA}^2$. The number of molecules necessary to cover homogeneously the stain of $5.5\ \text{mm}^2$ with a single layer is 7.86×10^{12} molecules. In the other hand, the volume deposited on the surface is $3\ \mu\text{L}$ of a solution at $1\ \text{mg/mL}$ (amounting to $3\ \mu\text{g}$ deposited): then, knowing the molar weight of MSM ($\text{MM}_{\text{MSM}}=801.22\ \text{g/mol}$) and with $N_A=6.022\times 10^{23}/\text{mol}$ the Avogadro number, the number of molecules deposited is $(3\times 10^{-6}/\text{MM}_{\text{MSM}}\times N_A)=2.25\times 10^{15}$, inducing the arrangement of about 300 lipid layers

($2.25 \times 10^{15} / 7.86 \times 10^{12} = 287$). The thickness of bilayers being usually given around 5 nm, then one layer is estimated about 2.5 nm in thickness. Hence, considering all of these parameters, the estimated thickness of the film averages 750 nm. The AFM analyzes also make possible to obtain the roughness profile of the deposited myelin (Fig. 7).

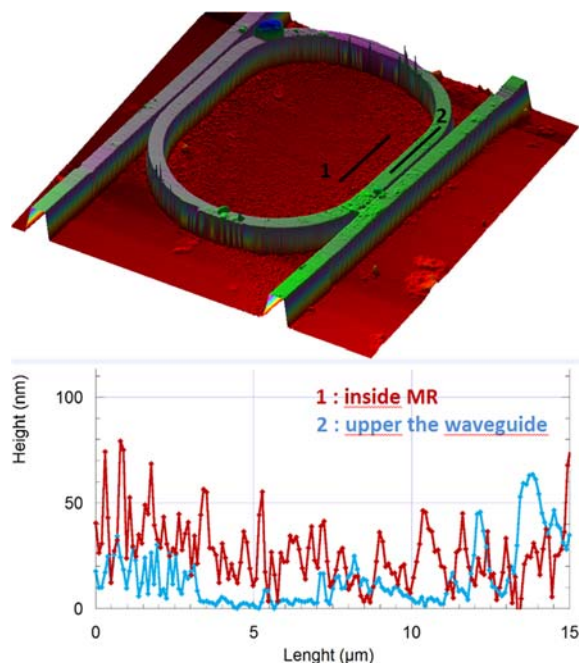


Fig. 7. AFM imaging after sphingomyelin deposition and drying at room temperature.

The synopsis of the method with the experimental protocol and principles of measurements (with or without previous lipid deposition) starting from the photonic platform arrangement devoted to optical preparation mode, injection and operation control, until the methodology of dynamic spectral measurements and statistical treatments in time so as to detect such lipid phase transition precisely.

2.4. Differential Scanning Calorimetry (DSC), Lipid 'gel ⇌ fluid' Phase Transition Detection

The melting behavior of the sphingomyelin was monitored using differential scanning calorimetry (DSC) (DSC Q20; TA Instruments, Guyancourt, France). 2 mg of dry lipids were loaded into the DSC sample pan and hydrated with Milli Q water to reach the final concentration of 20 % wt sphingomyelin. The pan was sealed. An empty, hermetically sealed, aluminum pan was used as reference. The calorimeter was calibrated with indium (5.1 mg, $\Delta H = 31.24$ J/g, melting point = 156.48 °C), assessing the accuracy of the temperature measurement to ± 0.1 °C and ± 10 % for the heat flow. The lipid sample was first heated up

to 70 °C then cooled down to 10 °C and finally heated up to 70 °C. The melting temperature of milk sphingomyelin associated to the transition from the gel phase to the fluid phase was determined from the onset point: that is the intersection between the baseline and the line tangent to the main peak. The transition was found at $T_m = 31$ °C in the heating thermogram recorded at 5 °C/min (blue, Fig. 8). In the same manner we can measure such a transition from the fluid phase to the gel phase (red, Fig. 8).

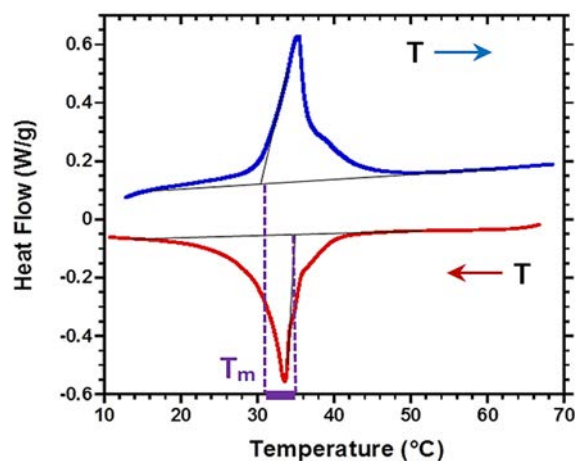


Fig. 8. DSC experiments on milk sphingomyelin: thermogram (endothermic heat flow up or exothermic heat flow down) and determination of the T_m .

Three scanning rates (0.5, 5 and 10 °C/min) were used to assess hypothetical kinetic effects on the shape of the thermogram. It confirmed that the T_m is not affected by the scanning rate, and that the shoulder actually reflects thermodynamical features of the phase transition and not kinetic distortions. Finally, the calorimetric results are in accordance with the literature. The lower value of the melting temperature (from the gel phase to the fluid phase) was evaluated at $T_m = 31$ °C; this value depends to the differences in the sample composition. The presence of ions in the solvent could displace the phase transition by changing the head-group packing which adds lateral strain shifting the T_m up to high values. In contrast with pure molecule phase transition, the thermogram showed a broad peak, the phase transition occurs on a temperature range of several degrees. This effect is related to the length heterogeneity of the hydrocarbon chains. Milk SM present long chains containing 20 until 24 carbons. Comparing the T_m value with sphingomyelin obtained from the other sources such as egg or brain, T_m of milk sphingomyelin is lower due to the presence of more unsaturation hydrocarbon chains (saturated / unsaturated ratio is close to 30 %).

In such DSC analyses, the usual required concentration to detect the temperature of the lipid transition is 10 mg with a solution at 20 % (W/W) of lipid yielding then 2 mg of lipids. In our case, with said photonics sensor, we used one drop of a 3 μ L solution at 1 mg/mL, entailing 3 μ g deposited on the chip

which contains the resonators as explained previously. However, we have to take into account the surface of the micro-resonator (MR) which is the probe, because it comes up as a significant interaction light/lipids matter. The resonant light contributing to the principle of measurement is only located into the MR. Its active surface is $(125 \times 2) = 250 \mu\text{m}^2$ as depicted in Fig. 3 with $125 \mu\text{m}$ as the round (or length) of the racetrack-MR and $2 \mu\text{m}$ the width of the rib waveguide. Then, for the abovementioned 750 nm -thickness on top of this active-MR surface (with $250 \mu\text{m}^2$ being 22000 times less than the initial 5.5 mm^2), the number of molecules to be considered as interacting with the light is then 1.07×10^{11} , ($\times N_A$) or $1.78 \times 10^{-13} \text{ mol}$, ($\times MM_{\text{MSM}}$) or $1.426 \times 10^{-10} \text{ g}$ of MSM lipids. Then in comparison to the previous quantity, 2 mg of lipids used in the DSC method, we have used 1.4×10^7 (more than 10 millions) less product in interaction with the light in such a principle hinging on MR measurement as explained next.

3. Optical Resonance Measurements, Sensor Detections and Discussions

In this section called Optical resonance measurements, Sensors detections and Discussions, the significant low-thermal feature of the chip device (sensors without lipid deposit) is clearly established: the system is low-sensitive to temperature changes in a wide range from $16 \text{ }^\circ\text{C}$ to $42 \text{ }^\circ\text{C}$. Such a feature is most appropriate to detect specific molecules localized on the top of the chip so as to assess their relevant biomechanisms. The ability to follow the dynamic evolution of sphingomyelin with temperature by detecting their own gel/fluid transition phase can be emphasized, together with the determination of the melting temperature due to changes of the specific parameters of the optical spectra.

Our sensors are based on a coupling and resonance physics, with a tunnel effect through a gap added with an optical geometric and cyclic resonance (Fig. 7 and Fig. 9). Fig. 9 represents the schematic photonic chip under test, allowing adequate coupling from the waveguide to the resonators and the apt circulation into the racetrack loop so as to probe the MSM phase transition.

A broadband source is used to highlight and create relevant quantified resonant modes. A single mode fiber is connected to the laser source (SUPERLUM, SLD 331 HP3) and a lens system is arranged to focus the incident beam and achieve this type of photonic micro-nano-injection. A polarizer and a $(\lambda/2)$ -blade secure the polarization state, TE or TM. The sample holder is connected to a temperature controller (Peltier type plus thermoelectric temperature controller ILX Lightwave LDC3900) with which one can control the real-time experience temperature, allowing the thermal stability of the optical sensors to be validated. The supports are controlled with nano-piezoelectric actuators (PI-5631.3 E) with a $\pm 10 \text{ nm}$ pitch in the

three spatial dimensions. Such handlings and other specific injection protocols are used to excite and measure the quantified resonances. A third lens is positioned to recover the output light; then, a splitter cube distributes 30 % of the output power to a CCD camera (Pulnix CCD imaging so as to monitor and control the single-mode video characteristic), while the other 70 % of the signal is collected with a second single-mode fiber to be sent to the Spectrum Analyzer Optical (OSA Ando AQ-6315E or OSA Anritsu MS9710C).

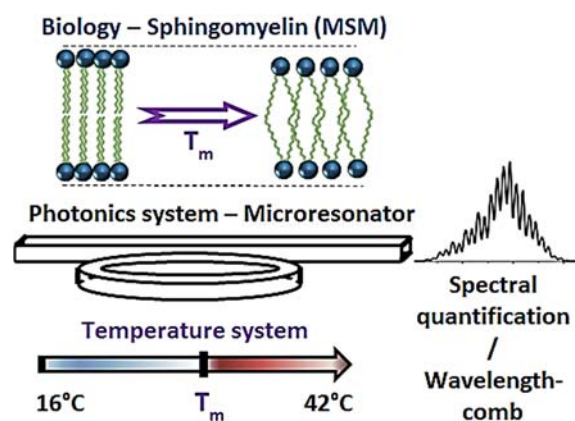


Fig. 9. Schematic principle of the photonic and lipid 'gel/fluid' phase transition detection. Thermal and mechanical systems controls, computing and signal processing have been installed and implemented.

Our protocol is then to record resonant a serial of spectra at fixed temperature by the photonic device and quantification probe light with OSA and relevant computer treatment, with λ_i (i , integer) the peaks wavelengths, $\Delta\lambda$ and $\delta\lambda$ parameters respectively associated with the resonant wavelengths, the Free Spectral Range ($\Delta\lambda$ -FSR) and the Full Width Half maximum ($\delta\lambda$ -FWHM). The $\Delta\lambda$ -FSR can also be determined in parallel with a Fast Fourier Transform calculus on the comb-shaped periodic wavelength allowing then its quantification.

Considering the electromagnetic set of equations describing our design, the operating regimes specifying the quantified values of the coupling factor κ from the guide to the resonator are justified. Indeed, the optical transmission of such devices depends on intrinsic parameters, namely κ the coupling factor, the intra-cavity losses, the absorption plus the roughness. [8]. The equilibrium of the regime is clearly broken by the dynamic of the MSM and its own phase transition (Fig. 10).

The ability to detect the specific gel/fluid transition phase of MSM lipid and the efficiency to pinpoint the melting temperature at $T_m = 31 \pm 0.5^\circ\text{C}$ have been demonstrated. Moreover, differential scanning calorimetry thermograms and their related analysis measurements corroborated exactly the results stemming from our light-sensors (Fig. 8).

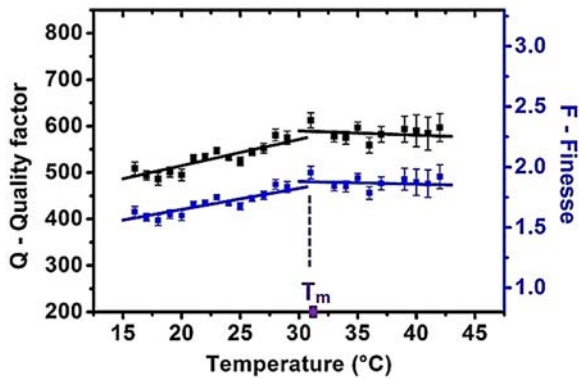


Fig. 10. Quality Detection of the gel-liquid phase transition of SPH lipids. Evolution in temperature of the quality factor $Q=\lambda_0/\delta\lambda$ and Finesse $F=\Delta\lambda/\delta\lambda$ of the photonic device under lipid test (MSM), determination of $T_m \approx [31-32]^\circ\text{C}$.

4. Conclusions

In conclusion, the dynamic evolution of the milk sphingomyelin (MSM) lipid phase transition was assessed by relevant photonics MRs sensors: the ability to detect their own gel/fluid transition phase and T_m melting temperature has been demonstrated: the balanced regimes of the resonators were clearly observed as markedly broken by the dynamic of the sphingomyelin and their specific phase transition prior relevant detection.

Acknowledgements

The authors would like to thank the 'Direction de l'Innovation et des Relations avec les Entreprises' (DIRE) of the CNRS plus Rennes Metropolis for financially supporting this research.

References

- [1]. D. G. Rabus, Integrated ring resonators: The Compendium, Springer Verlag: Berlin Heidelberg New-York, 2007.
- [2]. C. Ciminelli, C. M. Campanella, F. Dell'Olio, C. E. Campanella, M. N. Armenise, Label-free optical resonant sensors for biochemical applications, *Progress in Quantum Electronics*, Vol. 37, Issue 2, 2013, pp. 51-107.
- [3]. R. Castro-Beltran, N. Huby, V. Vié, H. Lhermite, L. Camberlein, E. Gaviot, B. Bêche, A laterally coupled UV210 polymer racetrack micro-resonator for thermal tunability and glucose sensing capability, *Advanced Device Materials*, Vol. 1, Issue 3, 2015, pp. 80-87.
- [4]. B. Bêche, Q. Li, V. Vié, L. Garnier, H. Lhermite, C. Bourlieu-Lacanal, E. Gaviot, A. Moréac, D. Morineau, A. Ghoufi, D. Dupont, E. Gaviot, Investigating the detection of lipids gel/fluid phase transition by change of scattering light and coupling factor into optical microresonators, in *Proceedings of the 1st International Conference on Optics, Photonics and Lasers (OPAL2018)*, Barcelona, Spain, 9-11 May 2018, pp. 10-12.
- [5]. R. Castro-Beltran, N. Huby, G. Loas, H. Lhermite, D. Pluchon, B. Bêche, Improvement of efficient coupling and optical resonances by using taper-waveguides coupled to cascade of UV210 polymer micro-resonators, *Journal of Micromechanics and Microengineering*, Vol. 24, 2014, pp. 125006.1 – 125006.7.
- [6]. Shipley UV210 web site, (<http://micromaterialstech.com/products/duv-photoresist-dow-rohm-and-haas/dow-uv210-photoresist/>).
- [7]. Avanti polar web site, (<https://avantilipids.com/product/860063/>).
- [8]. N. Michel, A.S. Fabiano, A. Polidori, R. Jack, B. Pucci, Determination of phase transition temperatures of lipids by light scattering, *Chemistry and Physics of Lipids*, Vol. 139, Issue 1, 2006, pp. 11-19.



Published by International Frequency Sensor Association (IFSA) Publishing, S. L., 2018 (<http://www.sensorsportal.com>).



Universal Frequency-to-Digital Converter (UFDC-1)

- 16 measuring modes: frequency, period, its difference and ratio, duty-cycle, duty-off factor, time interval, pulse width and space, phase shift, events counting, rotation speed
- 2 channels
- Programmable accuracy up to 0.001 %
- Wide frequency range: 0.05 Hz ... 7.5 MHz (120 MHz with prescaling)
- Non-redundant conversion time
- RS-232, SPI and I²C interfaces
- Operating temperature range -40 °C... +85 °C

www.sensorsportal.com info@sensorsportal.com SWP, Inc., Canada



Microphotronics for monitoring the supramolecular thermoresponsive behavior of fatty acid surfactant solutions

R. Castro-Beltrán^a, L. Garnier^b, A. Saint-Jalmes^b, H. Lhermite^c, H. Cormerais^{c,d}, A.-L. Fameau^e, E. Gicquel^b, B. Bêche^{b,c,*}

^a Universidad de Guanajuato, Departamento de Ingeniería Física, División de Ciencias e Ingenierías-León, Guanajuato, Mexico

^b Univ Rennes, CNRS, IPR (Institut de Physique de Rennes) - UMR 6251, F-35000 Rennes, France

^c Univ Rennes, CNRS, IETR (Institut d'Electronique et de Télécommunication de Rennes) - UMR 6164, F-35000 Rennes, France

^d Centrale/Supélec, Campus de Rennes, 35510, Cesson-Sévigné, France

^e INRA-BIA, Biopolymères Interactions Assemblages, 44316 Nantes, France

ARTICLE INFO

Keywords:

Micro-technologies

Polymers

Photonics

Fatty acid

Thermos-responsive surfactant system

ABSTRACT

The development and the ability of an optical integrated polymeric resonator, acting as a surface light probe, for monitoring temperature-induced supramolecular phase transitions is presented in this work. The homogeneous detection of the transitions between different self-assembled structures in an aqueous solution of fatty acids (12-hydroxystearic acid, in association with amino-pentanol) was studied by investigating the coupling between the solution and the integrated photonic micro-cavity. Tuning the self-organized assemblies of surfactant is very attractive for many applications, such as cosmetic products, food, drug delivery and medical, and the development of alternative tools – especially those requiring minute amount of solution – to monitor their structural changes are essential. These original studies at temperatures ranging from 17 to 24 °C, based on a statistical treatment of optical resonance spectra, have evidenced the thermo-responsive nature of the optical features, and that different regimes occur with temperature. The optical results were corroborated with the measurement of the solution viscosity as a function of temperature, confirming that we can ascribe the optically-detected regimes to a surfactant assembly shifting reversibly from a tubular shape to a micellar one. The comparison between the optical and the rheological responses showed different accuracies: while the viscosity data exhibited a rather smooth and monotonous transition, the behavior changes were sharper and non-monotonous in terms of optical properties, allowing us to unambiguously identify in intermediate regime between 18.5 and 20 °C. These morphological transition experiments represent a unique opportunity to extend the numbers of available techniques studying these systems through integrated optical techniques with potential opportunities of real time detection and working on low sampling volume.

1. Introduction

A micro-encapsulation process is a useful procedure for packing, isolation and protection of biochemical compounds, and self-assembled supramolecular structures – such as micelles, vesicles or lamellar phases – represent an extraordinary opportunity for encapsulation. A structure that could be filled by bio-chemical compounds is a potential prospect for drug delivery in medicine, environment science, cosmetics and food transformation [1–3]. These applications depend on the complete control of the intrinsic self-assembled supramolecular structures, linked to a reorganization at the molecular scale [4–6]. From the vast family of lipids, fatty acids are predominant and very important for a huge number of biotechnological applications ranging from sources of fuel for animals, cosmetic products to drug delivery carriers [2,3,7]. These systems can be modulated in various shapes adapted to the use of fluids

and gels or creams and pastes. From these derivative applications, their supramolecular tunable and reversible structures are highly related to their bulk properties such as viscosity and thermal behavior.

There are numerous techniques for investigating supramolecular arrangements, like Differential Scanning Calorimetry (DSC), various microscopies, Wide-Angle X-ray Scattering (WAXS), Small-Angle Neutron Scattering (SANS), or rheometry. Those are some of the used technological tests to characterize the morphological and mechanical properties of many self-assembled structures and their different phases [6,8]. These techniques play complementary roles by providing information at different length and time scales. Various bulk and surface optical techniques, based on scattering intensity modulation, have been proposed to detect the phase transition temperatures of products in biology [9]. Looking for another sensitive techniques that present

* Corresponding author at: Univ Rennes, CNRS, IPR (Institut de Physique de Rennes) - UMR 6251, F-35000 Rennes, France.

E-mail addresses: lucas.garnier@univ-rennes1.fr (L. Garnier), bruno.beche@univ-rennes1.fr (B. Bêche).

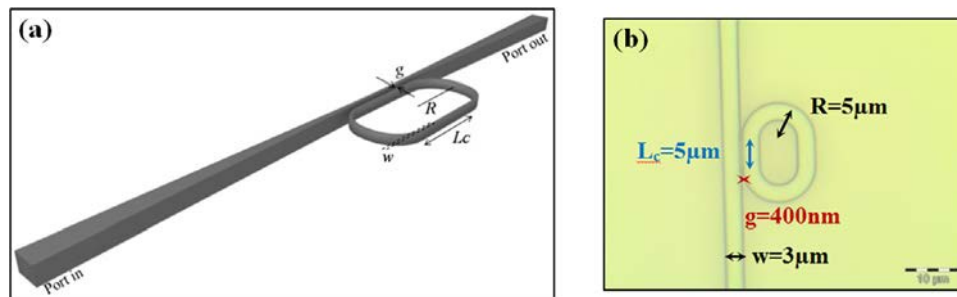


Fig. 1. (a) Sketch of the racetrack polymer resonator. (b) Top view photograph ($\times 20$) of the racetrack with R , L_c , w and g are the main geometrical parameter define the IO micro-device.

an opportunity for monitoring fine-changes associated to phase transition, microresonators [10,11] based on integrated optical (IO) chip devices and resonant probe light are shown as outstanding photonic platforms for this type of biochemical sensing applications [12–15]. The sensing mechanisms that define the biochemical performance of optical resonators can be classified as surface- and homogeneous-sensing. The first is related to the capability of the resonator to identify a specific analyte through previous surface functionalization protocols [12,13]. On the other hand, in the second one, any cladding variation induces a change that can be detected by the resonator over the background signal. This cladding variation will induce a change in the effective refractive index n_{eff} [12,13,16,17]. For the scope of this work, we will focused on the second sensing mechanism: the homogeneous sensing. Regardless the involved sensing schemes, the shift of the resonant spectrum should be temperature independent which implies that the design of the microresonator based on waveguide be quasi-athermal; a low dependence of temperature on optical properties is mandatory in this IO chip to ensure stability and to avoid misunderstanding in the interpretation of the output signal [15]. The thermo-optical effect of a material obviously does not exhibit symmetry breaking or slope reversal in its behavior as a function of a temperature ramp; it is characteristic of a monotonous function as measure in the following.

To demonstrate the viability of IO chip, based on a laterally coupled racetrack microresonator, as an alternative technique to monitor temperature-induced phase transitions, we selected a chemical system, belonging to the family of fatty acids with both bio-degradability and low toxicity, under their deprotonated forms. Such fatty acid molecules can self-assemble under various shapes in an aqueous solution. These self-assembled structures can respond to stimuli such as pH, presence of CO_2 and temperature, due to changes occurring at the molecular level [18]. In this group of fatty acids, the 12-hydroxystearic acid (named 12-HSA in the following) is remarkable as it can provide – once associated with alkanolamine counterions – thermo-responsive supramolecular structures [4–6]. At low temperature, self-assembled multilayer tubes (with typical length of tens of μm , and diameter of a few μm) are found due to the ion pairing of 12-HSA with an alkanolamine. Above a critical temperature, such tubes vanish and only nanometric micelles are detected. The transition temperature depends on the relative ratio of the 12-HSA and of the counterion, and on the choice of alkanolamine; it can then be adjusted from 18 $^\circ\text{C}$ to 70 $^\circ\text{C}$. Therefore, drastic structural transitions at the supramolecular scale are found with this chemical system when temperature is changed, providing us with an ideal candidate to test the IO chip.

2. Materials and methods

2.1. IO device based on polymeric microresonator

The resonant quantifications met in such physical systems are due to a geometric recirculation of the light. These quantifications emerge thanks to the installation of a cyclic condition (or stationary waves) written as $P_{opt} = m \cdot \lambda_{Maxwell}$, with P_{opt} the ‘optical’-perimeter of the

microresonator and m an integer. This principle can also be seen as the quantification of the orbital kinetic momentum \vec{L} as a quantified photonic orbit. Integrated polymeric microresonators are fabricated through deep UV (DUV) photolithography procedures and are based on UV210 photoresist. A key point refers to the use of this specific photoresist chemistry product, hinging on deep UV light/matter interactions [19]. UV210 compound is a polymer responsive to shorter exposure wavelengths when compared to with the standard procedures normally using conventional *i*-line from a mercury lamp. This specific DUV-polymer is made of poly *p*-hydroxystyrene and poly *t*-butyl acrylate; it is called an amplified chemical photoresist including a photo acid generator so as to increase the sensitivity with energy exposure and to obtain a better photolithography mechanism. It is well reported that this process has allowed resolutions < 400 nm in the size of the IO devices. The whole fabrication procedure and the full quality control of the photonic device is reported elsewhere [20, 21]. The microresonator is based on a racetrack shape and light is laterally coupled with a straight tapered optical waveguide, Fig. 1. A tapered bus optical waveguide ensures single mode operation of the IO micro-device. In comparison with other microcavities, a racetrack shape presents some advantages linked to its elongated rib zone (define by the coupling length, L_c). This length L_c , the parallelism between this resonator and the tapered rib waveguide, contribute to a stronger optical coupling strength of the microresonator [22]. A length $L_c = 5 \mu\text{m}$, a radius $R = 5 \mu\text{m}$, a width $w = 3 \mu\text{m}$ and a gap $g = 400$ nm (a distance from the tapered waveguide and the microcavity) represent the main geometrical features of our micro-racetrack. The small size of these specific resonators makes possible to take strongly localized measurements spatially with very low volume of products.

Since the resonator consists of a straight guide portion of UV210 (n_{UV210} close to 1.60 at a $\lambda_0 = 795$ nm wavelength) plus another curved guide (radius of curvature $R = 5 \mu\text{m}$), it is possible to estimate and therefore predict the single-mode behavior by finite difference method as explained in Ref. [23]. Fig. 2 represents the simulations implemented by a semi-vectorial finite difference method, respectively the eigenvalues of the effective indices $n_{eff}^{phase} = \frac{\beta \cdot \lambda_0}{2\pi}$ (β representing the effective propagation constant), plus the associated TE_{00} single-mode (eigenvector or optical mode distribution) into such an overall structure.

This spatial semi-vectorial finite difference method is associated to a Conformal Transformation (CT) of the complex plane, which allow to consider the curved guide as an effective straight guide with a modified profile of index [24,25]. These modelizations confirm that the curved part of the resonator still guide the light despite the lateral shift of the eigenmode clearly visible on Fig. 2(b). This is strongly accentuated by these structures with low radius of curvature $R = 5 \mu\text{m}$, with $w = 3 \mu\text{m}$. Indeed, such R provokes via the CT an effective augmentation of the index of $\Delta n = \frac{n_{DUV210}}{2} \frac{w}{R} \approx 0.48$ [24,25]. The eigenmode stays a guided mode of the light cone, as shown by the experiments in the following. In order to perform these simulations, the upper cladding was considered water.

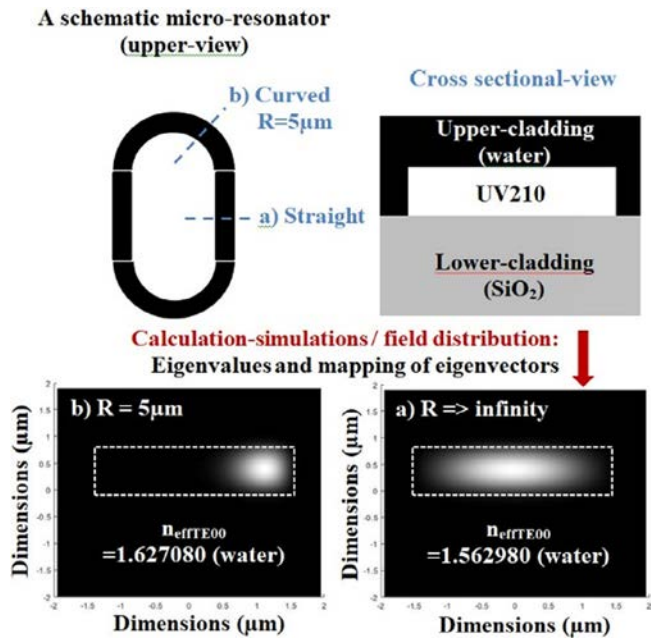


Fig. 2. Schematic diagram of the MRs structures (upper and cross-sectional views); eigenvalues and mapping of eigenvectors (field magnitude and distribution explained in Ref. [23]) simulations by semi-vectorial finite difference method ($n_{UV210} = 1.60$ and $n_{SiO_2} = 1.45$ at $\lambda_0 = 795$ nm, R -curved radius, waveguide thickness and width of $5 \mu\text{m}$, $0.9 \mu\text{m}$ and $3 \mu\text{m}$ respectively); the upper cladding corresponds in these simulations to the water liquid which present index value of 1.33. In the two regions concerned of the resonator element (straight and curved) the optical mode corresponds to a guided mode of the light cone.

These previous simulations confirm the single-mode behavior of such opto-geometric resonant microstructures. The experiments will be conducted with a broad-spectrum source (>40 nm), so the light will feel the total index n_{total} of the whole structure which takes into account the modal dispersion. A first order expansion of Taylor-Lagrange is sufficient to properly describe the modal dispersion that can be written $n_{eff}^{total}(\lambda) = n_{eff}^{group}(\lambda_0) + \lambda \left[\frac{\partial n_{eff}^{phase}}{\partial \lambda}(\lambda_0) \right]$, with $n_{eff}^{group}(\lambda_0) = n_{eff}^{phase}(\lambda_0) - \lambda_0 \left[\frac{\partial n_{eff}^{phase}}{\partial \lambda}(\lambda_0) \right]$ [26]. The total index is clearly higher than the effective

phase index and can reach 1.9 because two dispersive contributions are simultaneously added: at first, the physical dispersion of the materials (including the one of the UV210 organic which is strong in the intense red radiation) plus the modal dispersion contribution which is specific to the mathematical non-linearities of the dispersion curves of such guiding and resonant structures. Thus, it is this total index that must be taken into account in the resonance parameters of the structures (Free Spectral Range FSR, finesse) that will be probed by the broad-spectrum source of light [26]. The FSR is defined as the spectral distance between two wavelengths which resonate $FSR = \frac{(\lambda_0)^2}{P n_{eff}^2}$, with P the racetrack perimeter and λ_0 the central wavelength of the broadband source. The FWHM, which is defined as the Full Width at Half Maximum of a resonance peak obeys to $FWHM = \frac{\lambda_0^2}{\pi P n_{eff}^2} \arccos\left(\frac{2AK}{1+A^2K^2}\right) = \frac{FSR}{\pi} \arccos\left(\frac{2AK}{1+A^2K^2}\right)$ with K related to the coupling and A to the loss both in the coupling zone and during the circulation inside the resonator. In conclusion, by considering these geometrical conditions, the global optical group index of the system at $\lambda_0 = 800$ nm with 40 nm of broadband, we can ensure that the IO device is operating exclusively in the single optical modes.

2.2. Optical characterization

The experimental protocol is based on the sketch of Fig. 3. The IO micro-racetrack is optically pumped with a laser source (SLD 331 HP3) centered at $\lambda_0 = 800$ nm with 40 nm of broadband while the detection is based on an integral protocol relying on a dual visualization of the micro-device and its electromagnetic mode (TE_{00} - TM_{00}); furthermore, a permanent capture of the best optical transmission properties by both an optical power-meter and an optical spectrum analyzer (OSA-Ando AQ-6315E) are carried out.

Respectively, a top view of the microcavity (full visualization of the confinement of light traveling along the device) and a cross-sectional view of the single mode propagation are recorded by a micro beam profile (MBP) system and an IR-camera. The best coupling configuration is achieved once both a maximum optical intensity from a power-meter and a well defined single-mode are observed. The inset in Fig. 3 shows the typical resonance spectrum, highlighting the main optical parameter on the graph: among these, the Free Spectral Range (FSR) which represents the periodicity of the quantized spectrum or the spectral distance between two wavelengths which plus the Full Width at Half Maximum (FWHM) that is related to the finesse of the color or the light

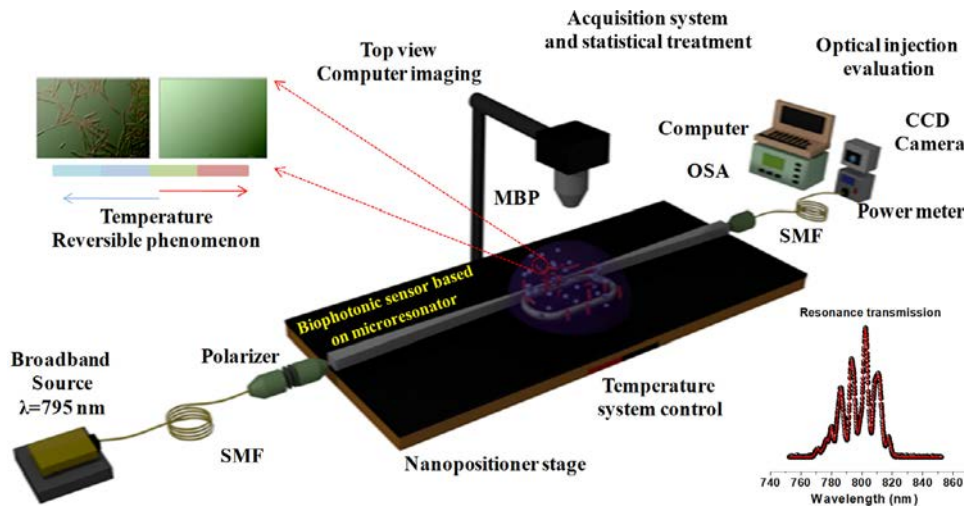


Fig. 3. Experimental setup for the full optical characterization of the microcavities and the complete fatty acid phase-transition monitoring protocol. The relative positions of microscope objectives and the device are controlled by piezoelectric nanositioners. The temperature of the integrated photonic chip is controlled by a thermostatic mount on which the micro-chip rests. All data from OSA is automatically recorded by computer and statistically analyzed and presented.

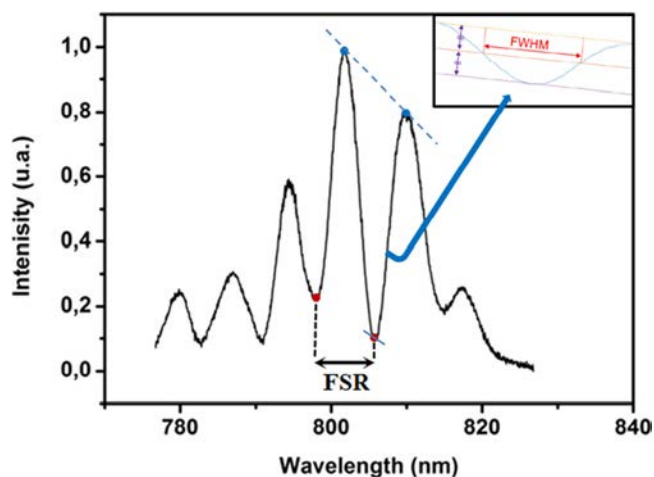


Fig. 4. Typical resonant spectrum at fixed temperature of the photonic device detected and stored by OSA and computer; the FSR is close to 8 nm in agreement with the opto-geometrical structure. Inset represents the synoptic of the method for the FWHM calculus of the comb-shaped periodic wavelength.

chord. The quality factor (Q) of the device can also be extracted from the spectra. These spectral parameters will evolve during the transition. Microscope objectives are used for both the injection and the collection of the light, and are mounted on piezoelectric nano-positioners for optimal injection conditions. The photonic chip is mounted on a Peltier temperature controller in order to investigate the behavior of the fatty acid solution with temperature. A drop of a few μL of the hybrid C5 (5-amino-1-pentanol) plus 12-HSA (12-hydroxystearic acid) solution is deposited on the surface of the sensor using a μL pipette. An optical spectrum analyzer connected to a computer acquires the output signal of the resonator. The measurements are performed as a function of temperature on the range [17–24] $^{\circ}\text{C}$, with a step of 0.5 $^{\circ}\text{C}$. For each temperature, 10 spectra are collected in order to reduce the error on the measurements. Fig. 4 represents a typical resonant spectrum.

The pseudo-period or Free Spectral Range (FSR) is calculated by a classical Fast Fourier Transform (FFT) of the resonant spectrum or comb-shaped periodic wavelength and also corroborated by a numerical derivation to localize all the extrema. Then, the Full Width at Half Maximum (FWHM), synoptic of the method described into inset, is also extracted from the raw spectra by our own Matlab computational code; such a code can be installed into an embedded system (Raspberry Pi...). The latter was developed respectively to control the remote spectrum analyzer and record the spectra, then to calculate the FSR and FWHM parameters by a specific signal processing code. Calculations and signal processing are performed at each spectrum acquisition in order to extract and to plot the $\text{FSR}(T)$, $\text{FWHM}(T)$ and $Q(T)$ parameters over temperature T .

2.3. Sample preparation

As already pointed out, the 12-hydroxystearic acid (12-HSA) can be associated to different alkanolamines, and at different relative concentrations to set the transition temperature. Here, we selected experimental conditions leading to a transition close to the room temperature. This corresponds to the selection of the 5-amino-1-pentanol (C5) in the alkanolamine group, and to a molar ratio $R=0,3$ (as defined in [6]). In practice, 12-HSA and C5 are weighted and added to ultra-pure water, in order to reach the ratio $R=0.3$. The mixture was then heated at 80 $^{\circ}\text{C}$ to insure a complete dispersion

3. Results and discussion

As the type of the supramolecular phases of the hybrid C5/12-HSA compound depends on temperature, it is required that the thermal features of the chip-device allow to monitor these changes. From previous studies focused on the detection of gel/fluid phase transition of biological compounds using polymeric microcavity, an extended experimental and computing protocol were presented in Ref. [16]. On such devices, the thermal dependences of the main optical properties at the Si/SiO₂/UV210/air configuration were presented, and it was concluded that the thermo-optical properties of the IO microresonator based on UV210 polymer have a high quality, verifying its high thermal stability [16].

3.1. The hybrid C5 /12-HSA supramolecular structures and the effect of temperature

The phase diagram of the C5/12-HSA compound shows a large supramolecular polymorphism, with structures ranging from long cylindrical tubes to spherical micelles (Fig. 5). The Fig. 5(a) and (b) show the morphologies of the C5/12-HSA supramolecular structures obtained at a temperature $T=7.5$ $^{\circ}\text{C}$. The structure of the 12-HSA/alkanolamine, at low temperatures, has been widely studied by various techniques (neutron and X-ray scattering) and has highlighted that the 12-HSA molecules self-assemble into multi-lamellar tubes [4–6]. The images Fig. 5(a) and (b) were taken by using an optical microscope in its phase contrast mode and by TEM respectively. For the optical microscopy, the samples were directly deposited on a wafer at a specific temperature: once all water has evaporated the phase contrast micrographs were captured. At low T , by studying the distribution and the statistic histograms, long tubular structures are shown with length equal to 32.8 ± 16.8 μm and width of 2.1 ± 1.1 μm . On the other hand, once temperature is above a critical value, the liquid turns transparent, as shown in Fig. 5(c), macroscopically revealing the transition, and only micelles of the order of tens of nanometers are found [4–6]. In addition, Fig. 5 (d) shows the evolution on the optical absorption of the set of samples at different temperatures. The absorption has been measured by the means of a UV/Vis spectrophotometer (JENWAY 6405 UV/Vis spectrophotometer). The data consist of three different spectra per sample, with each measurement taking 30 s to be acquired.

These absorption evolutions were measured at 795 nm, i.e. the working wavelength on the biophotonic sensor based on IO microresonators. Both a clear collapse on the absorbance intensity and a more transparent solution are observed as temperature increases; then above a critical temperature, the absorption contribution due to the presence of tubes is no longer observed by UV–Vis spectroscopy measurements. Note lastly that the formed structures inside the C5/12-HSA solution at different temperatures reproduce well those obtained in previous work [6]. Also, the same reversibility with temperature is recovered, as in previous studies [4–6].

3.2. The main optical microcavity properties and their correlation with the thermoresponsive C5/12-HSA compound

By considering the thermo-photonic protocol exposed above, we highlight that the thermal properties of our IO device are ideal to monitor the thermo-responsivity of the C5/12-HSA system. The experiments were carried out from 17 to 24 $^{\circ}\text{C}$ with steps of 0.5 $^{\circ}\text{C}$. The thermal evolution results are presented in Fig. 6(a, b) in terms of FSR and FWHM parameters of the IO device. The graphs Fig. 6(a) and (b) representing the evolution of the FSR (respectively of FWHM) are normalized with respect to the value of FSR (respectively FWHM) at the lowest considered temperature, namely 17 $^{\circ}\text{C}$. Additionally, the thermal dependency of these spectral parameters have been measured (Fig. 6(c) and (d)) for the bare sensor, and subtracted to the results obtained for the phase transition. Indeed, this way, the effects due to

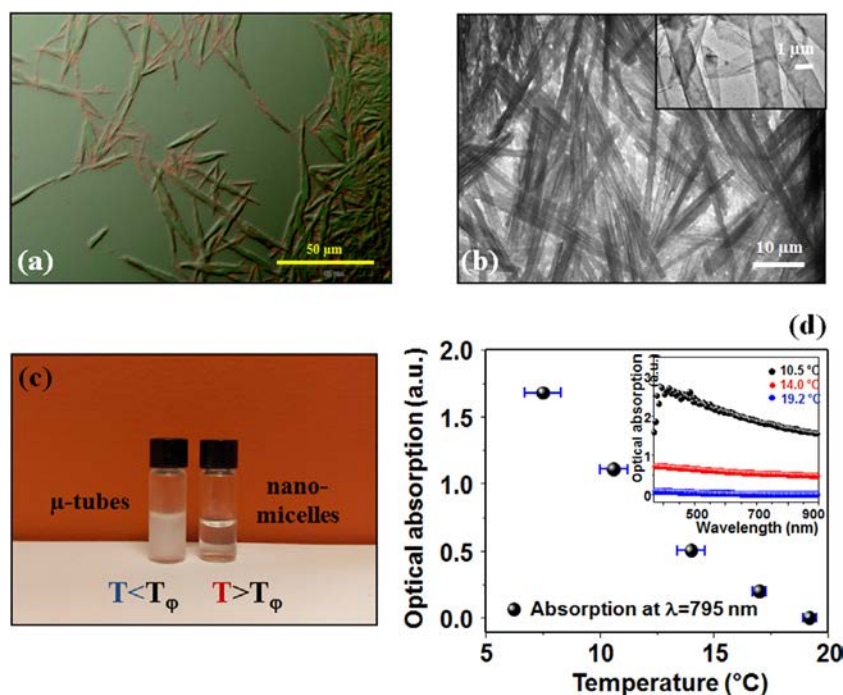


Fig. 5. Photographs of the C5/12-HSA compound, (a) at 7.5 °C. (b) Transmission electron microscopy (TEM) image of the multi-lamellar tubes (molar ratio R=0,3). Picture (c) represents the turbidity of the two states where for nano-micelles the liquid is transparent, while for tubes the solution is milky at a temperature below the transition temperature T_{ϕ} . Figure (d) shows the optical absorption properties the set of samples under different temperatures.

the measured phase transition can be discriminated from the intrinsic thermal drift of the bare photonic structure.

The processing of the transmission spectra were successfully achieved and demonstrate that the obtained values for the FSR and FWHM unambiguously depend on temperature: the thermo-responsivity of the solution is not only revealed by a single kink in these curves, but it turns out that three different regimes can be identified, as in Figs. 6(a) and 6(b). From 17 to 18.5 °C the thermo-responsive behavior is observed in the FSR evolution which increases, corresponding to a diminution of n_{eff}^{tot} , while the FWHM remains constant. As the FSR and the FWHM have the same dependency regarding $\frac{1}{n_{eff}^{tot}}$, we can deduce from the constant value of FWHM on the range [17 °C ; 18,5 °C] that the variation of the $\arccos(\frac{2AK}{1+A^2K^2})$ factor in its expression compensates the variation of effective index. Then, in the range [18,5 °C–20 °C], the slope of the FSR is inverted, i.e. the FSR value decreases (n_{eff}^{tot} increases), together with the FWHM. The diminution of both the FSR and the FWHM shows that, referring to their expressions, the contribution of the $\frac{1}{n_{eff}^{tot}}$ factor appears more important than the contribution of the $\arccos(\frac{2AK}{1+A^2K^2})$ one; the main contribution to the changes of FWHM is the variation of the effective index, and not the variations of coupling and loss. Finally, the third regime (for $T > 20$ °C) reveals another slope inversion for both the FWHM and the FSR. Once again, the fact that both the FSR and FWHM vary in the same direction shows that the change in effective index is more important than the change of coupling and loss conditions of the all structure. Indeed, below the phase transition temperature, the product is shaped as micro tubular with dimensions greater than the working wavelength, which causes scattering that modifies greatly the loss and coupling. In comparison, above this temperature, the micelles have a sub-wavelength dimension so that the solution acts as an effective medium regarding the optical mode propagating in the resonator, thus reducing the scattering to the point where it becomes negligible compared to the effective index variations. The quality factor as also been tracked as shown in Fig. 7. This graph clearly exhibit the same characteristics as the graphs representing FSR and FWHM, i.e. two slope breaking at 18.5 °C and 20 °C, which is the signature of the phase transition. For the whole

range of temperature, the quality factor has a value comprised between 200 and 300, which is not the maximal value obtainable with such a microresonator, but sufficient to detect the studied phase transition. At this stage, one has to compare these results to some other independent measurements of the structures inside the solution, in order to check if the optical results actually correspond to changes at the supramolecular scale. In that respect, a viscosity measurement of the solution was carried out using an Anton Paar rheometer (MCR 301) with a cone-plate setup: the shear rate was fixed at 0.5 s⁻¹ and the temperature was slowly varied from 12 to 25 °C. Indeed, the variation of the viscosity can be directly related to the changes of supramolecular structures inside the solution [6].

The dynamic viscosity is shown in Fig. 6(e): the viscosity decreases by a factor ~100 as the temperature is varied from 16 to 24 °C. Based on previous work [6] one can link this decrease to the tube-micelle transition. The low viscosity found for $T > 20$ °C is indeed consistent with a micellar and Newtonian solution (green circle in Fig. 6c). For $T < 20$ °C – where the viscosity is high meaning that there are large structures in the solution – one can separate the curve in two parts (blue and red circles in Fig. 6c): an intermediate state can be identify between 18,5 °C and 20 °C, probably corresponding to intermediate structures between the tubes at low temperatures and the micelles at high temperatures. Note also that – quantitatively – this thermo-responsive behavior of the C5/HSA system (with micelles occurring above 20 °C) is slightly different to the one reported in reference [6] (where micelles occurs for $T > 23$ –25 °C): this is simply due to the lower purity of the 12-HSA sample used here. It is actually expected that impurities slightly reduce the transition temperatures [4–6].

Finally, it turns out that these rheological results agree very well with those obtained by our hybrid IO device. The two techniques reveal the same three regimes and a transition occurring in two steps as T is varied, with an intermediate regime between 18,5 °C and 20 °C. Therefore, this validates the viability of the optical device to monitor supramolecular changes in such fluid solutions. During this morphological phase transition of fatty acids, the detections using resonant light probes are particularly interesting in terms of accuracy. Indeed, the rates of variation of both the optical parameters FWHM(T) and

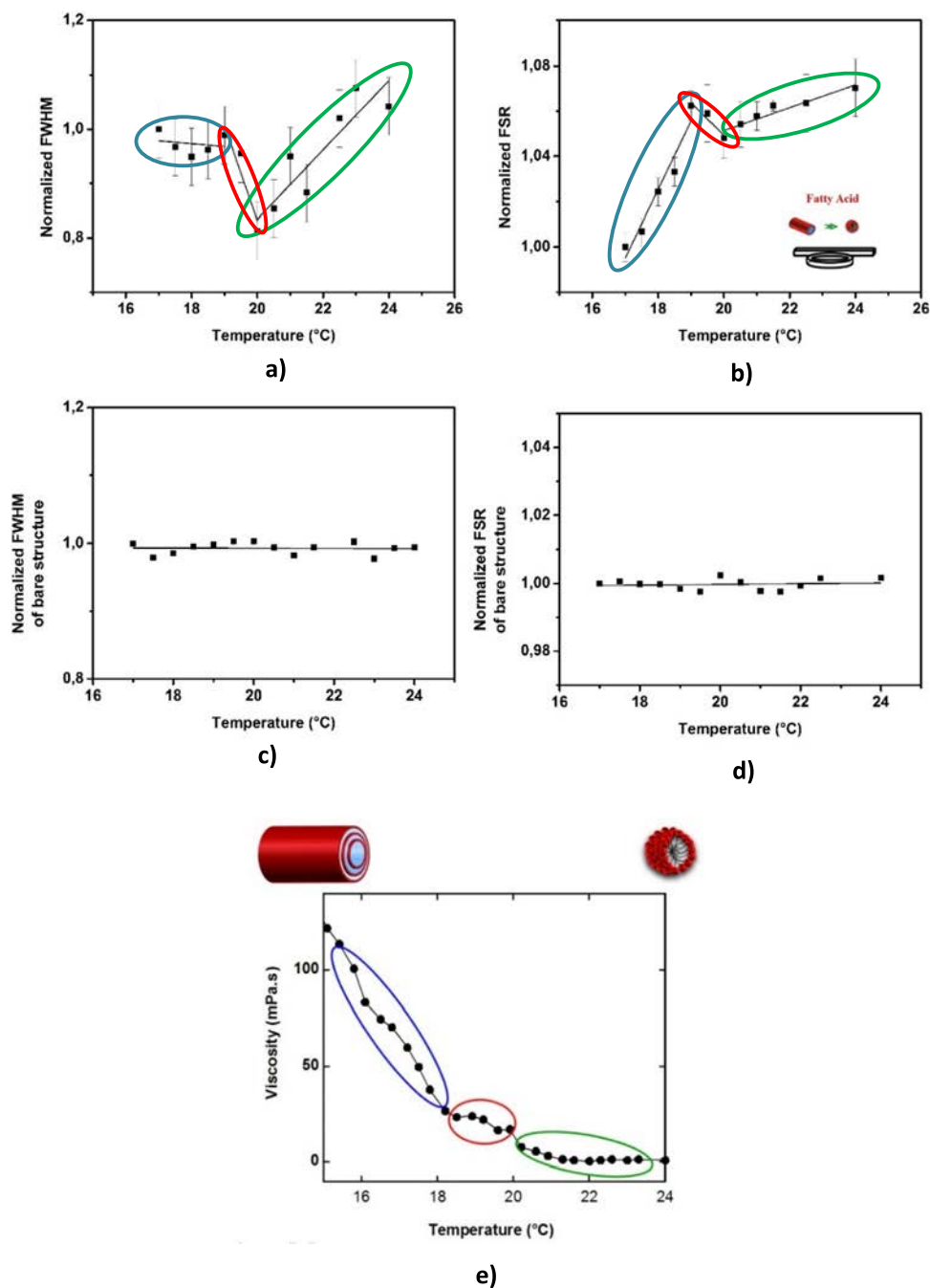


Fig. 6. Phase transition detection of the C5/12-HSA system based on the main optical properties of the IO device: (a) FWHM (b) FSR. Measurements were done from 17 to 24 °C. A two-step transition ranging between 18.5 and 19.5 °C is observable. (c) and (d) represent the thermal response of the bare structure concerning the FWHM and FSR respectively. (e) Study of the dynamic viscosity of the C5/12-HSA system evidencing different regimes, with an intermediate one between 18 and 20 °C. (For interpretation of the references to color in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

FSR(T) change their signs as T is increased (Fig. 6(a) and (b)), while the viscosity only evolves in a monotonous way. As a consequence, the three different regimes are much better identified with the optical tool, than with the rheological one.

4. Conclusion

This work reports the high versatility on the performance of an integrated optical polymeric micro-cavity, based on a resonance probe light, to carry out phase transition detection of self-assembled surfactant system used in cosmetic products, food and biology. The C5/12-HSA thermo-responsive behavior was monitored by the overall experimental protocol where a set of spectra were both statistically and

originally presented by considering the FSR and FWHM main optical properties of the integrated device. The measurements showed that the temperature transition occurs in two steps, with an intermediate regime between 18.5°C and 20 °C. We show that these optical results can be directly related to the morphological changes of the surfactant passing from elongated self-assembled tubes to micelles. A complementary rheological study was done with the aim of validating this interpretation and corroborating the obtained transition temperatures. The studies demonstrated the high degree of accuracy with respect to the range of temperature where the transition occurs. The comparative study also showed that the IO device had a higher accuracy to reveal all the details of the transition, while the rheological probe hardly detects these changes. In conclusion, the proof of concept of the sensing

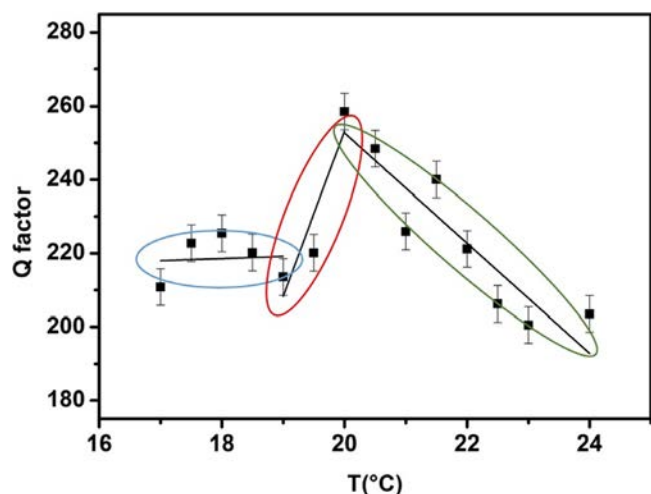


Fig. 7. Evolution of the quality factor (Q) on the range [17 °C; 24 °C]. As in Fig. 6(a) and (b), the phase transition is visible through the slope breaking at 18.5 °C and 20 °C.

platform which allowed continuous real time monitoring was fully demonstrated. The polymeric resonator together with the measurement protocol demonstrated high versatility in their performance to carry out investigations related with phase transition of novel thermo-responsive materials and food or cosmetic products presenting micro-structuration when outdated and expired with time.

Declaration of competing interest

The authors declare that they have no known competing financial interests or personal relationships that could have appeared to influence the work reported in this paper.

CRedit authorship contribution statement

R. Castro-Beltrán: Formal analysis, Writing - original draft, Writing - review & editing. **L. Garnier:** Conceptualization, Formal analysis, Writing - original draft, Writing - review & editing. **A. Saint-Jalmes:** Conceptualization, Writing - original draft, Writing - review & editing. **H. Lhermite:** Conceptualization. **H. Cormerais:** Methodology, Software. **A.-L. Fameau:** Conceptualization. **E. Gicquel:** Formal analysis. **B. Bêche:** Conceptualization, Formal analysis, Funding acquisition, Investigation, Methodology, Project administration, Resources, Supervision, Writing - original draft, Writing - review & editing.

Acknowledgments

The authors would like to thank the 'Direction de l'Innovation et des Relations avec les Entreprises'(DIRE) of the CNRS, Rennes Metropolis and Fondation Rennes 1 for financially supporting this research.

References

- [1] A.-L. Fameau, F. Cousin, L. Navailles, F. Nallet, F. Boué, J.-P. Douliez, Multiscale structural characterizations of fatty acid multilayered tubes with a temperature-tunable diameter, *J. Phys. Chem. B* 115 (2011) 9033–9039.
- [2] C.V. Kulkarni, Lipid self-assemblies and nanostructured emulsions for cosmetic formulations, *Cosmetics* 3 (37) (2016) 1–15.

- [3] C. Salerno, D.A. Chiappetta, A. Arechavala, S. Gorzalczy, S.L. Scioscia, C. Bregni, Lipid-based microtubes for topical delivery of Amphotericin B, *Colloids Surf. B* 107 (2013) 160–166.
- [4] J.-P. Douliez, B. Pontoire, C. Gaillard, Lipid tubes with a temperature-tunable diameter, *Chem. Phys. Chem.* 7 (2006) 2071–2073.
- [5] A.-L. Fameau, F. Cousin, L. Navailles, F. Nallet, F. Boué, J.-P. Douliez, Multiscale structural characterizations of fatty acid multilayered tubes with a temperature-tunable diameter, *J. Phys. Chem. B* 115 (2011) 9033–9039.
- [6] A.-L. Fameau, F. Cousin, A. Saint-Jalmes, Morphological transition in fatty acid self-assemblies: A process driven by the interplay between the chain-melting and surface-melting process of the hydrogen bonds, *Langmuir* 33 (2017) 12943–12951.
- [7] A.-L. Fameau, A. Saint-Jalmes, F. Cousin, B. Houinsou, Houssou, B. Novales, L. Navailles, F. Nallet, C. Gaillard, F. Boué, J.-P. Douliez, Smart foams: Switching reversibly between ultrastable and unstable foams, *Angew. Chem. Int. Edn* 50 (2011) 8264–8269.
- [8] A. Arnould, A.A. Perez, C. Gaillard, J.-P. Douliez, F. Cousin, L.G. Santiago, T. Zemb, M. Anton, A.-L. Fameau, Self-assembly of myristic acid in the presence of choline hydroxide: Effect of molar ratio and temperature, *J. Colloid Interface Sci.* 445 (2015) 285–293.
- [9] N. Michel, A.S. Fabiano, A. Polidori, R. Jack, B. Pucci, Determination of phase transition temperatures of lipids by light scattering, *Chem. Phys. Lipids* 139 (11) (2006) 11–19.
- [10] D.G. Rabus, *Integrated Ring Resonators the Compendium*, Springer, Berlin, 2007.
- [11] J. Scheuer, A. Yariv, Fabrication and characterization of low-loss polymeric waveguides and micro-resonators, *J. Eur. Opt. Soc. I* (2006) 06007.1–06007.5.
- [12] C. Delezoide, M. Salsac, J. Lautru, H. Leh, C. Nogues, J. Zyss, M. Buckle, I. Ledoux-Rak, C.T. Nguyen, Vertically coupled polymer microracetrack resonators for label-free biochemical sensors, *IEEE Photonics Technol. Lett.* 24 (2012) 270–272.
- [13] M.-Carmen Estevez, Mar Alvarez, Laura M. Lechuga, Integrated optical devices for lab-on-a-chip biosensing applications, *Laser Photonics Rev.* 6 (2011) 1–25.
- [14] R. Castro Beltran, N. Huby, V. Vié, H. Lhermite, L. Camberlein, E. Gaviot, B. Bêche, A laterally coupled UV210 polymer racetrack micro-resonator for thermal tunability and glucose sensing capability, *Adv. Device Mater.* 1 (2015) 80–87.
- [15] H.K. Hunt, A.M. Armani, Label-free biological and chemical sensors, *Nanoscale* 2 (2010) 1544–1559.
- [16] Q. Li, V. Vié, H. Lhermite, E. Gaviot, C. Bourlieu, A. Moréac, D. Morineau, D. Dupont, S. Beaufils, B. Bêche, Polymer resonators sensors for detection of sphingolipid gel/fluid phase transition and melting temperature measurement, *Sensors Actuators A* 263 (2017) 707–717.
- [17] C.-Y. Chao, L.J. Guo, Biochemical sensors based on polymer microrings with sharp asymmetrical resonance, *Appl. Phys. Lett.* 83 (2003) 1527–1529.
- [18] A.-L. Fameau, A. Arnould, A. Saint-Jalmes, Responsive self-assemblies based on fatty acid current opinion in colloid and interface, *Science* 19 (2014) 471–479.
- [19] Rohm and Haas electronic materials UVTM 210 positive DUV photoresist, 2014, <http://www.microchem.com/Prod-DowElect-UV210GS.htm>.
- [20] D. Pluchon, N. Huby, H. Lhermite, D. Duval, B. Bêche, Investigation of fabrication and resonant optical coupling in various 2D micro-resonator structures in a UV210 polymer, *J. Micromech. Microeng.* 22 (2012) 06007.1–06007.5.
- [21] R. Castro-Beltran, N. Huby, G. Loas, H. Lhermite, D. Pluchon, B. Bêche, Improvement of efficient coupling and optical resonances by using taper-waveguides coupled to cascade of UV210 polymer micro-resonators, *J. Micromech. Microeng.* 24 (2014) 125006.1–125006.7.
- [22] C.-Y. Chao, *Polymer Microring Resonators for Biochemical Sensing Applications* (Ph.D. thesis), University of Michigan, 2005.
- [23] B. Bêche, J.F. Jouin, N. Grossard, E. Gaviot, E. Toussaere, J. Zyss, PC software for analysis of versatile integrated optical waveguides by polarized semi-vectorial finite difference method, *Sensors Actuators A* 114 (1) (2004) 59–64.
- [24] L. Garnier, C. Saavedra, R. Castro-Beltrán, J.L. Lucio, M.E. Gaviot, B. Bêche, Hybrid composed method associating conformal transformation with matrix formulation for computing eigenvalues and eigenvectors in bended optical waveguides, *Optik* 142 (2017) 536–540.
- [25] M. Heiblum, J.H. Harris, Analysis of curved optical waveguides by conformal transformation, *IEEE J. Quantum Electron.* 11 (1975) 75–83.
- [26] M. Lebental, *Chaos Quantique et Micro-Lasers Organiques* (Ph.D. thesis), University of Paris 11 ENS Cachan Paris-Sud, 2007.

Temporal derivation operator applied on the historic and school case of slab waveguides families eigenvalue equations: another method for computation of variational expressions

Lucas Garnier¹, Arthur Doliveira², Fabrice Mahé², Etienne Gaviot³, and Bruno Bêche^{1,4,*}

¹ Université de Rennes, CNRS, Institut de Physique de Rennes – UMR 6251, 35000 Rennes, France

² Université de Rennes, CNRS, IRMAR – UMR 6625, 35000 Rennes, France

³ Université du Maine, CNRS, Laboratoire d'acoustique de l'Université du Maine – UMR 6613, 72000 Le Mans, France

⁴ Université de Rennes, CNRS, Institut d'Électronique et de Télécommunications de Rennes – UMR S 6164, 35000 Rennes, France

Received: 19 March 2019 / Received in final form: 1 July 2019 / Accepted: 15 July 2019

Abstract. Starting from the well-known and historic eigenvalue equations describing the behavior of 3-layer and 4-layer slab waveguides, this paper presents another specific analytical framework providing time-laws of evolution of the effective propagation constant associated to such structures, in case of temporal variation of its various geometrical features. So as to develop such kind of time-propagator formulation and related principles, a temporal derivation operator is applied on the studied school case equations, considering then time varying values of all the geometrical characteristics together with the effective propagation constant. Relevant calculations are performed on three different cases. For example, we first investigate the variation of the height of the guiding layer for the family of 3-layer slab waveguides: then, considering the 4-layer slab waveguide's family, we successively address the variation of its guiding layer and of its first upper cladding. As regards the family of 4-layer waveguides, calculations are performed for two different families of guided modes and light cones. Such another approach yields rigorous new generic analytical relations, easily implementable and highly valuable to obtain and trace all the family of dispersion curves by one single time-integration and one way.

1 Introduction and background

Guided optics has known a considerable evolution since the demonstration of the possibility to guide light by refraction in the mid-nineteenth century by Daniel Colladon [1] and John Tyndall [2]. Both a robust theoretical framework [3,4] and a wide range of technological applications have been developed [5–7]. Concerning the theoretical framework, mainly two kinds of families of waveguide geometries are analytically described by an eigenvalue equation: the pure cylindrical symmetry and the planar symmetry waveguide structures made of several different layers. Most of the other geometries need appropriate approximations (such as the pure Galerkin method or equivalent [8,9], more generally based on spectral method and minimization of residue on approximated functions [10], the Marcatili's method and hybrid one [11,12]), or a step-by-step numerical resolution with a segmentation of the space (multilayer matrix method or finite difference time domain method [13–16] applied on conformal transformation [17,18]). The eigenvalue equations regarding the analytically described geometries are derived by solving the Maxwell's equations in all regions of the global structure, and by properly applying the continuity

conditions of the electro-magnetic fields. The opto-geometrical characteristics of the waveguide entail the emergence of a quantification of the modes (called eigenvectors) that can exist within the structure (TE, TM, HE, EH, LP), with indices highlighting the effective number of space-directions being subjected to quantification. For example, the guided modes belong to the light cone of the guiding structure, i.e., in the geometrical optics framework, these modes are coupled with the structure from a region of space allowing total internal reflection inside the structure. Each one of these modes is associated with an effective propagation constant (eigenvalue); the propagation constant is thus directly correlated to the opto-geometrical characteristics of the overall structure (excitation wavelength λ , refractive index of each part of the structure n_i and various spatial geometrical dimensions noted dim_i , i integers, Fig. 1). This dependency between dimension and propagation constant is entirely summarized by the dispersion curve associated with the structure. The dispersion curve is a tool valuable in numerous fields of physics and represents the interdependency between two different physical magnitudes of the studied system. In case of guided optics, this dispersion curve provides a link between the effective propagation constant and the previously described opto-geometrical

* e-mail: bruno.beche@univ-rennes1.fr

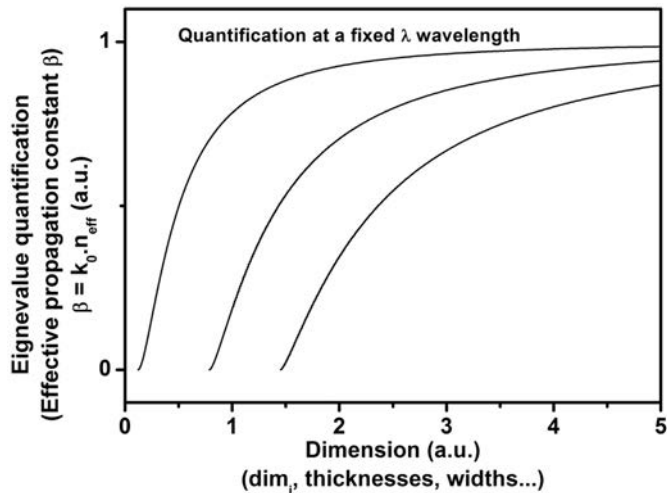


Fig. 1. Generic dispersion curves in integrated photonics; each curve is associated with a mode (eigenvector) of a fixed structure at a fixed λ -wavelength.

features of the guiding structure (Fig. 1). The correlation between the effective propagation constant and the opto-geometry is highlighted by the above-mentioned eigenvalue equation (or dispersion relation) noted *E.v.eq* which mathematically corresponds to a functional \mathcal{F} of the different parameters of the system: $E.v.eq = \mathcal{F}(\lambda, n_i, dim_i)$ here, the different dim_i can be considered either as variables or as fixed parameters). Each set of parameters is associated to a unique family of dispersion curves (Fig. 1); any change of one of these parameters yields a change of the shape of the dispersion curves. The resolution of these eigenvalue equations for a given set of opto-geometrical parameters yields the set of related effective propagation constant β of the optical modes propagating in the structure, which is defined by:

$$\beta = k \cdot n_{\text{eff}} = \frac{2\pi}{\lambda} \cdot n_{\text{eff}}, \quad (1)$$

with k the vacuum wave number, n_{eff} the effective refractive index associated to the mode and λ the vacuum wavelength.

In this paper, we theoretically investigate the correlation between the evolution of time-varying geometrical features of families of slab guiding structures and their associated effective propagation constant. To this end, a temporal derivation operator $\frac{d}{dt}$ is applied onto the generic eigenvalue equation regarding the whole family of structures, considering time-dependent values of the studied geometrical dimension ($dim \equiv dim(t)$) with the effective propagation constant ($\beta \equiv \beta(t)$), and constant values of λ and optical indices. This operation is tantamount to determining a kind of evolution propagator on the eigenvalue equations. Such a way to proceed yields analytical relations shaped as $\frac{d(dim)}{dt} = f\left(\frac{d\beta}{dt}\right)$ enabling to represent the global dynamic displacement along all the family of dispersion curves as geometrical dimensions vary. The time derivation operator (TDO) formulation is performed on the eigenvalue equation of both different

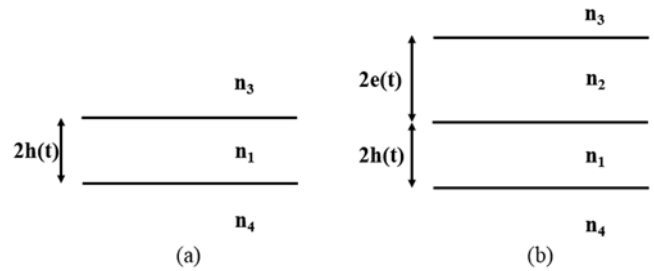


Fig. 2. (a) Schematic representation of the 3-layer slab waveguides family; the guiding layer yields a refractive index n_1 and a height $2h$, the upper cladding n_3 and the substrate n_4 are both considered as semi-infinite layers. (b) Schematic representation of the family of 4-layer slab waveguides; the index n_1 and n_2 are associated with respectively the guiding layer and the first upper cladding whose height are respectively $2h$ and $2e$. The upper cladding and the substrate of index n_3 and n_4 are considered as semi-infinite layers.

essential basic slab-structures: the 3-layer and the 4-layer waveguides. As the eigenvalue equations are derived for constant values of β , we assume that the time variation of the geometrical feature is slow enough to perform an adiabatic evolution treatment. For the 3-layer waveguide (Fig. 2a), we consider a temporal variation of the height noted $2h(t)$ of the guiding layer. As regards the 4-layer waveguide (Fig. 2b), two cases are considered: firstly, we consider a temporal variation of the height of the guiding layer $2h(t)$ with a constant height of the first upper cladding $2e(t)$ before dealing with the opposite situation. For both of these 4-layer cases, the two families of guided modes are investigated [19]. Such an approach should be quite valuable in applied electromagnetism so as to describe numerous processes: for example, while monitoring; a direct layer deposition as a growth process, a processes of sedimentation and soft matter creaming, or etching processes. The results obtained by this model have been compared to COMSOL numerical simulations and show a good agreement.

2 Time derivation formulations and analytical variational expression of eigenvalue equations

2.1 Family of 3-layer slab waveguides

Figure 2a depicts a schematic representation of the family of 3-layer slab waveguides. We consider the layer of index n_1 ($n_1 > n_3, n_4$) with height $2h \equiv 2h(t)$ as the guiding layer of such structures. All the effective propagation constants of guided modes thus verify the light's cone $n_1 > n_{\text{eff}} > n_3, n_4$. The generic eigenvalue equation ruling all 3-layer slab waveguides is [3,4]:

$$2h(t)q = \text{Arctg}\left(\frac{p}{q}\right) + \text{Arctg}\left(\frac{r}{q}\right) + m\pi, \quad (2)$$

with $q = \sqrt{(k_0 n_1)^2 - \beta^2}$, $r = \sqrt{\beta^2 - (k_0 n_3)^2}$, $p = \sqrt{\beta^2 - (k_0 n_4)^2}$, h the half height of the guiding layer, and m the order of the considered mode. The optical indices act in the expression of

the projection of the wave vector perpendicular to the plane of the layers (considering Pythagoras with a zig-zag geometric-optical ray vision).

We consider the temporal variation of h and relate it to the temporal variation entailed on the effective propagation constant $\beta \equiv \beta(t)$. To do so, the above equation is re-written as:

$$h = \frac{\text{Arctg}\left(\frac{p}{q}\right) + \text{Arctg}\left(\frac{r}{q}\right) + m\pi}{2q}. \quad (3)$$

Then, a temporal derivation operator $\frac{d}{dt}$ is applied in order to express $\frac{dh}{dt}$ in terms of $\frac{d\beta}{dt}$. The first step of this calculation allows to compute each derivative of parameters p , q and r , considering time dependent values for β and constant values of k and each n_i ($i=1,3,4$).

$$\frac{dq}{dt} = \frac{-\beta d\beta}{q dt}, \quad \frac{dp}{dt} = \frac{\beta d\beta}{p dt}, \quad \frac{dr}{dt} = \frac{\beta d\beta}{r dt}. \quad (4)$$

Then, we can compute the derivatives regarding the arguments as quotients of the Arctg function:

$$\frac{d}{dt}\left(\frac{p}{q}\right) = \frac{q^2 + p^2}{pq^3} \beta \frac{d\beta}{dt}, \quad \frac{d}{dt}\left(\frac{r}{q}\right) = \frac{q^2 + r^2}{rq^3} \beta \frac{d\beta}{dt}. \quad (5)$$

Both varying terms of the numerator of equation (3) may be written as:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}\left(\text{Arctg}\left(\frac{p}{q}\right)\right) &= \frac{q^2 + p^2}{pq^3 + qp^3} \beta \frac{d\beta}{dt}, \\ \frac{d}{dt}\left(\text{Arctg}\left(\frac{r}{q}\right)\right) &= \frac{q^2 + r^2}{rq^3 + qr^3} \beta \frac{d\beta}{dt}. \end{aligned} \quad (6)$$

From these calculations, the derivative of the height of the guiding layer comes up as:

$$\begin{aligned} \frac{dh}{dt} &= \left(\frac{1}{2q} \left(\frac{q^2 + p^2}{pq^3 + qp^3} + \frac{q^2 + r^2}{rq^3 + qr^3} \right) + \frac{1}{2q^3} \left(\text{Arctg}\left(\frac{p}{q}\right) \right. \right. \\ &\quad \left. \left. + \text{Arctg}\left(\frac{r}{q}\right) + m\pi \right) \right) \beta \frac{d\beta}{dt}. \end{aligned} \quad (7)$$

This result can be re-written and formulated as a generic form,

$$\frac{dh}{dt} = \frac{\alpha_1 + \xi_1 \left(\text{Arctg}\left(\frac{p}{q}\right) + \text{Arctg}\left(\frac{r}{q}\right) + m\pi \right)}{\sigma_1} \beta \frac{d\beta}{dt}, \quad (8)$$

with,

$$\begin{aligned} \alpha_1 &= rq^5 + q^3r^3 + rp^2q^3 + qp^2r^3 + pq^5 + q^3p^3 + pr^2q^3 + qr^2p^3 \\ \xi_1 &= prq^4 + pr^3q^2 + rpq^4 + r^3p^3, \\ \sigma_1 &= 2prq^7 + 2pr^3q^5 + 2rp^3q^5 + 2r^3p^3q^3 \text{ and } \beta \text{ defined in equation (1).} \end{aligned}$$

2.2 Family of 4-layer slab waveguides

Considering 4-layer slab waveguides, two cases are dealt with: first, we consider a time dependent value of the height

of the guiding layer and a constant value of the height of the first upper cladding ($h \equiv h(t)$ and $e = \text{constante}$): conversely, we consider the opposite case ($h = \text{constante}$ and $e \equiv e(t)$). For each one of these configurations, two families of guided modes exist: (i) a strongly confined mode with effective index values verifying $n_1 > n_{\text{eff}} > n_2 > n_3, n_4$ and (ii) a weakly confined one for which $n_1 > n_2 > n_{\text{eff}} > n_3, n_4$. Both families may be studied in parallel thanks to a double notation in the following equations: the upper notation $\left|^\bullet\right.$ corresponds to the family of modes verifying condition (i) and the lower one $\left|_\bullet\right.$ is related to condition (ii). The structure of a 4-layer slab waveguide is depicted in Figure 2b. The eigenvalue equation describing the behavior of such a waveguide is [18]:

$$2hq = \text{Arctg}\left(\frac{p}{q}\right) + \text{Arctg}\left(\frac{s}{q} \left| \begin{array}{l} th\left(\text{Arctg}\left(\frac{r}{s}\right) + 2es\right) \\ tg\left(\text{Arctg}\left(\frac{r}{s}\right) - 2es\right) \end{array} \right. \right) + m\pi, \quad (9)$$

with q , r and p defined the same way as that of the 3-layer waveguide analysis, and $s = \left| \begin{array}{l} \sqrt{\beta^2 - (k_0n_2)^2} \\ \sqrt{(k_0n_2)^2 - \beta^2} \end{array} \right.$. So as to investigate the effect of any change regarding the height of the guiding layer, equation (9) may be re-written:

$$h = \frac{\text{Arctg}\left(\frac{p}{q}\right) + \text{Arctg}\left(\frac{s}{q} \left| \begin{array}{l} th\left(\text{Arctg}\left(\frac{r}{s}\right) + 2es\right) \\ tg\left(\text{Arctg}\left(\frac{r}{s}\right) - 2es\right) \end{array} \right. \right) + m\pi}{2q}. \quad (10)$$

The time derivative of q , r and p are given in equation (4), and $\frac{ds}{dt}$ verifies:

$$\frac{ds}{dt} = \frac{\left|^\pm\right. \beta d\beta}{s dt}. \quad (11)$$

This allows us to compute the derivatives of the different ratios:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}\left(\frac{p}{q}\right) &= \frac{q^2 + p^2}{pq^3} \beta \frac{d\beta}{dt}, \quad \frac{d}{dt}\left(\frac{r}{s}\right) \\ &= \frac{s^2 \left|^\pm\right. r^2}{rs^3} \beta \frac{d\beta}{dt}, \quad \frac{d}{dt}\left(\frac{s}{q}\right) = \frac{s^2 \left|^\pm\right. q^2}{sq^3} \beta \frac{d\beta}{dt}, \end{aligned} \quad (12)$$

as well as the derivatives of the functions Arctg and Arctg:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}\left(\text{Arctg}\left(\frac{p}{q}\right)\right) &= \frac{q^2 + p^2}{pq^3 + qp^3} \beta \frac{d\beta}{dt}, \\ \frac{d}{dt}\left(\left| \begin{array}{l} \text{Arctg}\left(\frac{r}{s}\right) \\ \text{Arctg}\left(\frac{r}{s}\right) \end{array} \right. \right) &= \frac{s^2 \left|^\pm\right. r^2}{rs^3 \left|^\pm\right. sr^3} \beta \frac{d\beta}{dt}. \end{aligned} \quad (13)$$

To proceed further with the calculations and so as to lighten the expressions, we define:

$$\tau_h = \begin{cases} th \left(\text{Arctg} \left(\frac{r}{s} \right) + 2es \right) \\ tg \left(\text{Arctg} \left(\frac{r}{s} \right) - 2es \right) \end{cases}. \quad (14)$$

Derivating this quantity with respect to time yields:

$$\begin{aligned} & \frac{d\tau_h}{dt} \\ &= \frac{s^2 \left| \begin{smallmatrix} - \\ + \end{smallmatrix} r^2 \right| \begin{smallmatrix} - \\ + \end{smallmatrix} 2ers^2 + 2er^3 \left| \begin{smallmatrix} - \\ + \end{smallmatrix} \left(s^2 \left| \begin{smallmatrix} - \\ + \end{smallmatrix} r^2 \right| \begin{smallmatrix} - \\ + \end{smallmatrix} 2ers^2 + 2er^3 \right) \tau_h^2 \right.}{rs^3 \left| \begin{smallmatrix} - \\ + \end{smallmatrix} sr^3 \right.} \\ & \times \beta \frac{d\beta}{dt}. \end{aligned} \quad (15)$$

Then, we can compute the derivative of the second term of the numerator of equation (11):

$$\frac{d}{dt} \left(\text{Arctg} \left(\frac{s}{q} \tau_h \right) \right) = \frac{\Theta}{\Gamma} \beta \frac{d\beta}{dt}, \quad (16)$$

with:

$$\begin{aligned} \Theta &= q^2 s^3 \left| \begin{smallmatrix} - \\ + \end{smallmatrix} sr^2 q^2 \right| \begin{smallmatrix} - \\ + \end{smallmatrix} 2erq^2 s^3 + 2esq^2 r^3 + (rs^4 \left| \begin{smallmatrix} - \\ + \end{smallmatrix} s^2 r^3 \right. \\ & + rs^2 q^2 \left| \begin{smallmatrix} + \\ - \end{smallmatrix} q^2 r^3 \right) \tau_h \left| \begin{smallmatrix} - \\ + \end{smallmatrix} (q^2 s^3 \left| \begin{smallmatrix} - \\ + \end{smallmatrix} sr^2 q^2 \right| \begin{smallmatrix} - \\ + \end{smallmatrix} 2erq^2 s^3 + 2erq^2 r^3) \tau_h^2 \right. \end{aligned}$$

$$\text{and } \Gamma = rs^3 q^3 \left| \begin{smallmatrix} - \\ + \end{smallmatrix} sr^3 q^3 \right| + (rqs^5 \left| \begin{smallmatrix} - \\ + \end{smallmatrix} qs^3 r^3 \right) \tau_h^2.$$

Furthermore, after combining the previous results and simplifying the expressions, the time derivative of the height of the guiding layer is given by:

$$\begin{aligned} & \frac{dh}{dt} \\ &= \frac{\alpha_h + \gamma_h \tau_h + \kappa_h \tau_h^2 + \xi_h \left(\text{Arctg} \left(\frac{p}{q} \right) + \text{Arctg} \left(\frac{s}{q} \tau_h \right) + m\pi \right)}{\sigma_h + \chi_h \tau_h^2} \\ & \times \beta \frac{d\beta}{dt} \end{aligned} \quad (17)$$

with,

$$\begin{aligned} \alpha_h &= rs^3 q^5 \left| \begin{smallmatrix} - \\ + \end{smallmatrix} sr^3 q^5 + rp^2 s^3 q^3 \right| \begin{smallmatrix} - \\ + \end{smallmatrix} sp^2 r^3 q^3 + ps^3 q^5 \left| \begin{smallmatrix} - \\ + \end{smallmatrix} spr^2 q^5 \right. \\ & + q^3 p^3 s^3 \left| \begin{smallmatrix} - \\ + \end{smallmatrix} sr^2 q^3 p^3 \right| \begin{smallmatrix} - \\ + \end{smallmatrix} 2erps^3 q^5 + 2espr^3 q^5 \left| \begin{smallmatrix} - \\ + \end{smallmatrix} 2erq^3 p^3 s^3 \right. \\ & + 2esp^3 q^3 r^3, \\ \gamma_h &= prq^3 s^4 \left| \begin{smallmatrix} - \\ + \end{smallmatrix} ps^2 r^3 q^3 + qrp^3 s^4 \right| \begin{smallmatrix} - \\ + \end{smallmatrix} qs^2 r^3 p^3 - prs^2 q^5 \left| \begin{smallmatrix} + \\ - \end{smallmatrix} pr^3 q^5 \right. \\ & - rs^2 p^3 q^3 \left| \begin{smallmatrix} + \\ - \end{smallmatrix} q^3 p^3 r^3 \right. \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \kappa_h &= rq^3 s^5 \left| \begin{smallmatrix} - \\ + \end{smallmatrix} q^3 s^3 r^3 + rqp^2 s^5 \right| \begin{smallmatrix} - \\ + \end{smallmatrix} qp^2 s^3 r^3 \left| \begin{smallmatrix} - \\ + \end{smallmatrix} ps^3 q^5 \right. \\ & + psr^2 q^5 \left| \begin{smallmatrix} - \\ + \end{smallmatrix} q^3 p^3 s^3 + sr^2 p^3 q^3 + 2erps^3 q^5 \right| \begin{smallmatrix} - \\ + \end{smallmatrix} 2espr^3 q^5 \\ & + 2erq^3 p^3 s^3 \left| \begin{smallmatrix} - \\ + \end{smallmatrix} 2esq^3 p^3 r^3 \right. \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \xi_h &= rps^3 q^4 \left| \begin{smallmatrix} - \\ + \end{smallmatrix} spr^3 q^4 + rp^3 s^3 q^2 \right| \begin{smallmatrix} - \\ + \end{smallmatrix} sp^3 r^3 q^2 \\ & + \left(rpq^2 s^5 \left| \begin{smallmatrix} - \\ + \end{smallmatrix} ps^3 r^3 q^2 + rp^3 s^5 \right| \begin{smallmatrix} - \\ + \end{smallmatrix} p^3 s^3 r^3 \right) \tau_h^2, \end{aligned}$$

$$\sigma_h = 2rps^3 q^7 \left| \begin{smallmatrix} - \\ + \end{smallmatrix} 2spr^3 q^7 + 2rp^3 s^3 q^5 \right| \begin{smallmatrix} - \\ + \end{smallmatrix} 2sp^3 r^3 q^5,$$

$$\chi_h = 2rpq^5 s^5 \left| \begin{smallmatrix} - \\ + \end{smallmatrix} 2ps^3 r^3 q^5 + 2rq^3 p^3 s^5 \right| \begin{smallmatrix} - \\ + \end{smallmatrix} 2q^3 p^3 s^3 r^3 \text{ and } \beta \text{ defined in equation (1).}$$

Although equation (11) suits well for the study of the first case ($h \equiv h(t)$ and $e = \text{constante}$), it comes up as inappropriate for the second one. Then, to study the case $e \equiv e(t)$ and $h = \text{constante}$, it is re-written:

$$e = \frac{\left| \begin{smallmatrix} - \\ \text{Arctg} \end{smallmatrix} \left(\frac{r}{s} \right) \right| + \text{Arctg} \left(\frac{q}{s} \text{tg} \left(2hq - m\pi - \text{Arctg} \left(\frac{p}{q} \right) \right) \right)}{2s}. \quad (18)$$

Here, so as to find a relation between $\frac{de}{dt}$ and $\frac{d\beta}{dt}$ the same methodology as before is applied. We thus compute the time-derivative of the $\frac{q}{s}$ ratio:

$$\frac{d}{dt} \left(\frac{q}{s} \right) = \frac{\left| \begin{smallmatrix} - \\ + \end{smallmatrix} q^2 - s^2 \right| \beta \frac{d\beta}{dt}}{qs^3}. \quad (19)$$

Then, we may define a parameter τ_e before computing its time derivative:

$$\tau_e = \text{tg} \left(2hq - m\pi - \text{Arctg} \left(\frac{p}{q} \right) \right). \quad (20)$$

$$\begin{aligned} & \frac{d\tau_e}{dt} \\ &= \frac{-2hpq^2 - 2hp^3 - q^2 - p^2 + (2hpq^2 - 2hp^3 - q^2 - p^2) \tau_e^2}{pq^3 + qp^3} \\ & \times \beta \frac{d\beta}{dt}. \end{aligned} \quad (21)$$

Then comes the derivative of the second term of the numerator of equation (18):

$$\frac{d}{dt} \left(\left| \begin{smallmatrix} \text{Arctg} \\ \text{Arctg} \end{smallmatrix} \left(\frac{q}{s} \tau_e \right) \right) \right) = \frac{\Delta}{Z} \beta \frac{d\beta}{dt} \quad (22)$$

with,

$$\Delta = -2hps^2q^3 - 2hqs^2p^3 - s^2q^3 - qs^2p^2 + \left(\left| \frac{-pq^4}{+} \right| \frac{-}{+} q^2p^3 - ps^2q^2 - s^2p^3 \right) \tau_e + (-2hps^2q^3 - 2hqs^2p^3 - s^2q^3 - qs^2p^2) \tau_e^2 \text{ and, } Z = pq^3s^3 + qp^3s^3 \left| \frac{-}{+} \right. (psq^5 + sp^3q^3) \tau_e^2.$$

Finally, by combining the previous different results, the time-derivative of e is:

$$\frac{de}{dt} = \frac{\alpha_e + \gamma_e \tau_e + \kappa_e \tau_e^2 \left| \frac{-}{+} \right. \xi_e \left(\left| \frac{\text{Arcth} \left(\frac{r}{s} \right) - \left| \frac{\text{Arcth} \left(\frac{q}{s} \tau_e \right) \right. \right.}{\text{Arctg} \left(\frac{r}{s} \right) - \left| \frac{\text{Arctg} \left(\frac{q}{s} \tau_e \right) \right. \right.} \right) \beta \frac{d\beta}{dt}}{\sigma_e + \chi_e \tau_e^2} \quad (23)$$

with,

$$\begin{aligned} \alpha_e &= \left| \frac{-}{+} \right. rq^3s^5 \left| \frac{-}{+} \right. qrp^2s^5 + s^3q^3r^3 + qp^2s^3r^3 \left| \frac{-}{+} \right. pq^3s^5 \left| \frac{-}{+} \right. qp^3s^5 \\ &\quad + pr^2q^3s^3 + qr^2p^3s^3 \left| \frac{-}{+} \right. 2hprq^3s^5 \left| \frac{-}{+} \right. 2hqrp^3s^5 + 2hpq^3r^3s^3 \\ &\quad + 2hqp^3r^3s^3, \\ \gamma_e &= \left| \frac{-}{+} \right. prq^2s^5 \left| \frac{-}{+} \right. rp^3s^5 - rps^3q^4 - rq^2p^3s^3 + pq^2s^3r^3 \\ &\quad + p^3r^3s^3 \left| \frac{-}{+} \right. psr^3q^4 \left| \frac{-}{+} \right. sq^2p^3r^3, \\ \kappa_e &= \left| \frac{-}{+} \right. rq^3s^5 + q^3s^3r^3 \left| \frac{-}{+} \right. rqp^2s^5 + qp^2s^3r^3 + ps^3q^5 \\ &\quad + q^3p^3s^3 \left| \frac{-}{+} \right. spr^2q^5 \left| \frac{-}{+} \right. sr^2p^3q^3 \left| \frac{-}{+} \right. 2hprq^3s^5 \left| \frac{-}{+} \right. 2hqrp^3s^5 \\ &\quad + 2hpq^3r^3s^3 + 2hqp^3r^3s^5, \\ \xi_h &= \left| \frac{-}{+} \right. rpq^3s^4 \left| \frac{-}{+} \right. qrp^3s^4 + pr^3q^3s^2 + qr^3p^3s^2 + (prs^2q^5 \\ &\quad + r^3p^3q^3s^2) \left| \frac{-}{+} \right. pr^3q^5 \left| \frac{-}{+} \right. r^3p^3r^3q^3 \tau_e^2, \\ \sigma_e &= 2prq^3s^7 + 2qrp^3s^7 \left| \frac{-}{+} \right. 2pr^3q^3s^5 \left| \frac{-}{+} \right. 2qr^3p^3s^5, \\ \chi_e &= \left| \frac{-}{+} \right. 2prs^5q^5 \left| \frac{-}{+} \right. 2rp^3q^3s^5 + 2pr^3s^3q^5 + 2r^3p^3q^3s^3 \text{ and } \beta \end{aligned}$$

defined in equation (1).

This analysis provides a valuable analytical link between the variation of geometrical features of the global dimensions structures and the correlated changes of all the effective propagation constants describing their associated modes. Each case we have investigated here yields the same generic architecture of relation, yet some significant differences are remarkable. Differences between 3-layer and 4-layer slab waveguides are easily identifiable; they rely on the presence of the factor τ_h respectively τ_e defined with equation (16) (respectively (20)) also present in the final relation (17) (respectively (23)). Considering the expressions of the variation of the guiding layer of the family of 4-layer slab waveguides for strongly and weakly guided modes, the only differences concern their sign and the expression of τ_h . Such sign differences are partially due to the definition of the parameter s whose time derivative only yields unlike signs between the strongly and the

weakly guided mode. The other cause of these changed signs is due to both hyperbolic tangent and hyperbolic arctangent functions in the strongly confined mode configuration instead of the conventional tangent and arctangent functions relevant with the weakly confined mode. Naturally, the time derivation of these terms yields only unlike signs. Eventually, the main difference between relations describing time varying guiding layer and time varying first upper cladding is in their dependence as regards the order m of the considered mode. Indeed, in the case of time varying guiding layer this dependency only occurs with the factor noted ξ_h conversely, considering the time varying first upper cladding, the order m of the mode is present in the parameter τ_e . Hence, the influence of the mode order is more significant in the case of time varying first upper cladding.

3 Numerical implementation and discussion

Numerical implementations of the previous relations have been performed through Matlab programs. These implementations aim at plotting the temporal derivative of the effective index ($\frac{dn_{\text{eff}}}{dt} = \frac{1}{k} \cdot \frac{d\beta}{dt}$) against time for different sets of opto-geometrical parameters and for different rates of variation of the geometrical features of the structures ($\frac{dh}{dt}$ and $\frac{de}{dt}$). For all the following computations, we consider negative values of $\frac{dh}{dt}$ and $\frac{de}{dt}$, i.e. decreasing values of h and e against time, a wavelength $\lambda = 0.8 \mu\text{m}$ and only the first mode ($m=0$) is investigated.

First, we consider the asymptotic case. Figure 3a represents $\frac{dn_{\text{eff}}}{dt}$ against time for a 3-layer slab waveguide and a 4-layer slab waveguide for which $2e \rightarrow \infty$. These two structures yields the same set of parameters (refractive index, initial height of the guiding layer, rate of variation of this height) in order to compare the results in a relevant way. The relative error between these two curves is plotted in Figure 3b. This graph shows that these two cases are numerically equivalent with a maximum relative error below 0.6%. The maximum of relative error occurs at the end of the decrease of the height of the guiding layer, i.e. when $2h$ is close to the cutting height of the mode.

Let us now investigate the influence of the rate of variation of the geometrical features. To do so, we plot $\frac{dn_{\text{eff}}}{dt}$ against time (Fig. 4a) for a 4-layer structure yielding a variation of the height $2h$ of the guiding layer, for three different values of the rate $\frac{dh}{dt} = -0.1 \mu\text{m.s}^{-1}$; $-0.5 \mu\text{m.s}^{-1}$; $-1 \mu\text{m.s}^{-1}$. The other parameters are the initial value of the height of the guiding layer $2h_{(t=0s)} = 1 \mu\text{m}$, the height of the first upper cladding $2e_{(t=0s)} = 0.4 \mu\text{m}$ and the set of indices $(n_1; n_2; n_3; n_4) = (2; 1.8; 1; 1.5)$. The plot of Figure 4 clearly yields that the ratio between the different values of $\frac{dn_{\text{eff}}}{dt}$ is equal to the ratio between the corresponding $\frac{dh}{dt}$ which is easily predictable from equation (17). Concerning the values of the times at which the mode disappear, their ratio is equal to the inverse of the ratio between the corresponding $\frac{dh}{dt}$. In addition, a simulation under COMSOL on a specific structure corroborates this slope, this time considering two close structures to calculate the rate of change Δn_{eff} (Fig. 4b and Tab. 1).

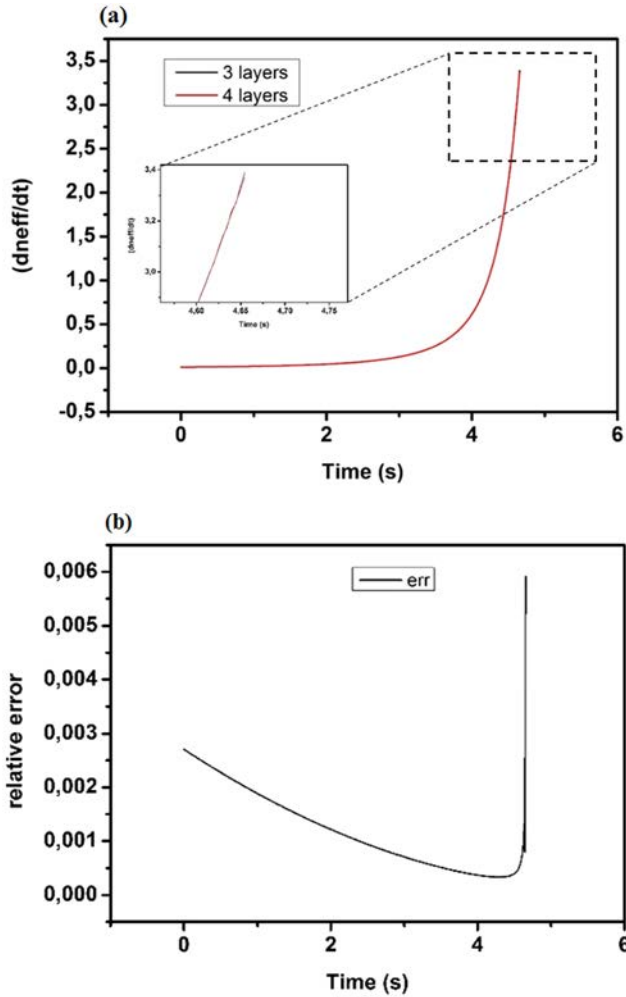


Fig. 3. Asymptotic case. (a) Plot of $\frac{dn_{\text{eff}}}{dt}$ in function of time (time derivation operator (TDO) formulation) for two different structures: the black curve stands for a 3-layer structure (Eq. (8)), and the red curve for a 4-layer structure (Eq. (17)) for which the height e of the first upper cladding tends to infinity. The other parameters are $2h_{(t=0\text{s})} = 1 \mu\text{m}$, $\frac{dh}{dt} = -0.1 \mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$, and $(n_1; n_3; n_4) = (2; 1.5; 1)$ for the 3-layer structure and $(n_1; n_2; n_3; n_4) = (2; 1.5; 1; 1)$ for the 4-layer one. (b) Relative error between the two cases depicted in (a).

The influence of the set of indices is investigated in Figures 5a and 5b, which represent the evolution of $\frac{dn_{\text{eff}}}{dt}$ against time for a 4-layer structure yielding varying value of the height of the first upper cladding, for strongly and weakly guided mode, respectively. The parameters taken for this simulation are $2h_{(t=0\text{s})} = 0.4 \mu\text{m}$, $2e_{(t=0\text{s})} = 1 \mu\text{m}$, $\frac{de}{dt} = -0.1 \mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ and the investigated set of indices are $(n_1; n_2; n_3; n_4) = (2; 1.5; 1; 1); (2; 1.8; 1; 1.5); (2; 1.8; 1.5; 1.5)$. We can see from the graph that the more the mode is confined (great difference between the values of indices) the more abrupt is the slope. Another remarkable property is that the red curve begins to increase before the black one, which begins to increase before the blue one. The reason is that the evanescent part (strongly confined mode) or the oscillating part (weakly confined mode) present in the

n_2 layer is more sensitive to the index n_3 in the red curve case because the difference $n_2 - n_3$ is greater. Concerning the black curve, as the difference $n_1 - n_2$ is greater than for the other two cases, there is less energy in the n_2 layer so the influence of the n_3 layer is weaker. Similarly, simulations under COMSOL prove the correspondence in terms of variation of the eigenvalue as the dimensions of the structure change (Figs. 5c and 5d and Tab. 2).

The TDO formulation starts from an initial condition, defining a starting point in the eigenvalue equation (that is a starting opto-geometric structure), then it deploys its evolutionary principle by giving access to the variation of the eigenvalue when the dimensions of the structure changes over time.

4 Conclusion

This work presents the derivation of generic and rigorous analytical expressions evaluative in time regarding the propagation constant for various families of slab waveguides in case of temporal variation of their geometrical characteristics.

Since the theoretical framework presented in this article hinges on analytical expressions, it provides a valuable tool, easily implementable for numerical computation in one way. Graphically, these expressions are interpretable as a temporal displacement along all the family of dispersion curves of the investigated versatile structures and modes; computing their integral along time obviously leads to the original and generic eigenvalue equations (2) and (9), which gives all the families of dispersion curves (Fig. 1). Their physical meaning, based on the link between $\frac{d\beta}{dt}$ and $\frac{d(\text{dim})}{dt}$ put them up as specific evolution laws of the propagation constant during any growth or deposition process or during an attack or etching process as regards shaping a given structure. Thus, a direct in situ monitoring becomes possible during thin layer deposition processes in ultra-high-vacuum chambers. The analysis has been performed with 3-layer and 4-layer slab waveguides. In the latter case, the investigation has been carried out for both the variation of the guiding layer and of the first upper cladding, and for the two different families of guided modes. The results computed by the proposed TDO method have been compared to numerical calculations obtained via COMSOL simulations and are in good agreement. Dynamics and therefore evolution are intrinsically contained in the TDO formulation, with the possibility of obtaining a whole family of structures at one time. The advantage brought by this TDO model compared to other numerical simulations, besides that it provides analytical expressions that contain the dynamic, resides in the fact that the other numerical simulations can only resolve static structures, step by step. The simulations have thus to be performed at every time step which take a great amount of time, whereas the proposed TDO formulation (Eqs. (8), (17) and (23)) can be implemented on a regular computer via Matlab or Python, for example, and give results within a few seconds. Furthermore, in a theoretical view, an extended and comprehensive study

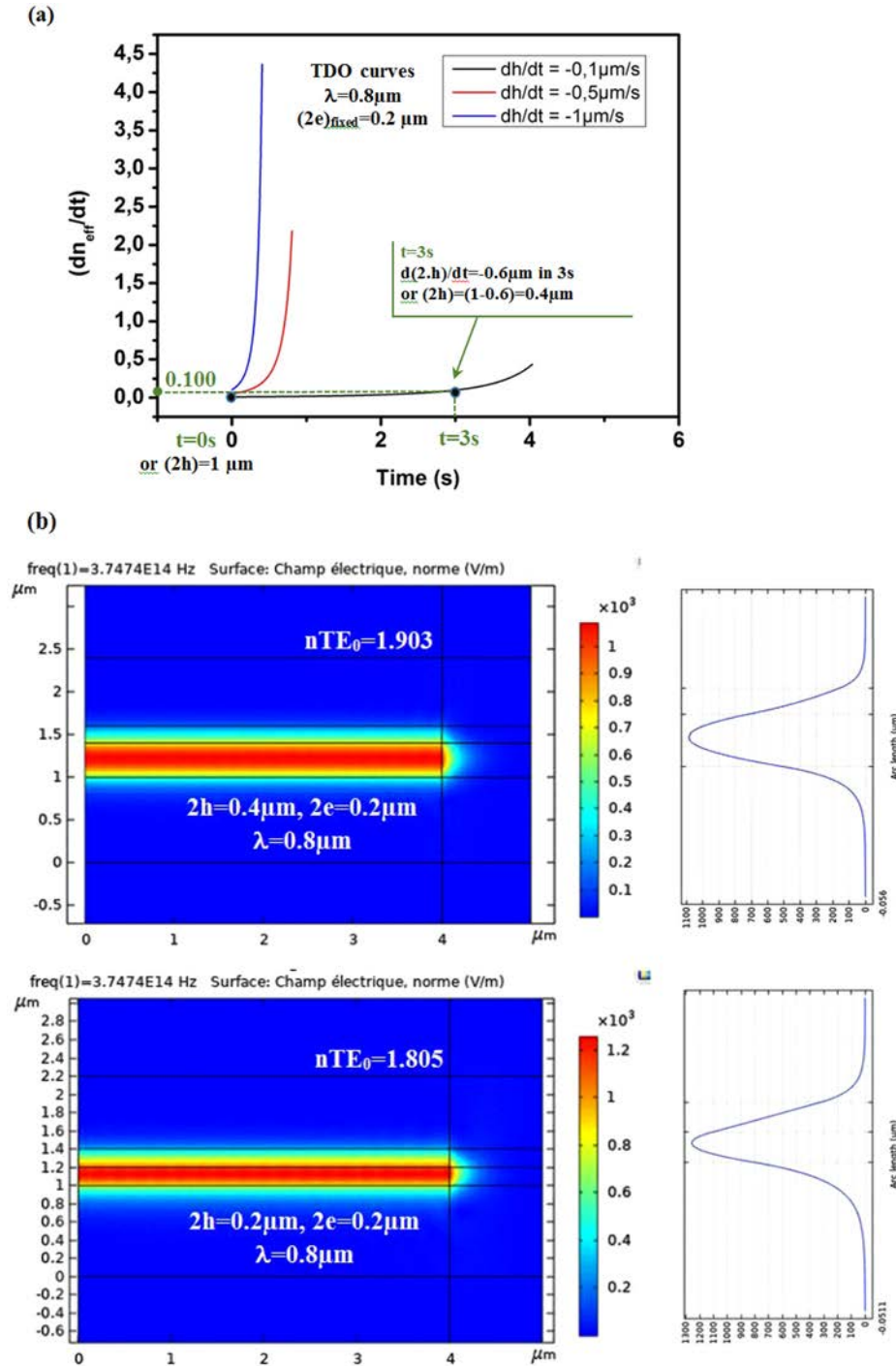


Fig. 4. (a) Plot of $\frac{dn_{\text{eff}}}{dt}$ with time derivation operator (TDO) formulation, against time for the first strongly guided mode of a 4-layer waveguide (Eq. (17)) for three different rates of variation of the height h of the core layer: $\frac{dh}{dt} = -0.1 \mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$; $-0.5 \mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$; $-1 \mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$. The other parameters are $2h_{(t=0\text{s})} = 1 \mu\text{m}$, $2e_{\text{fixed}} = 0.2 \mu\text{m}$ and $(n_1; n_2; n_3; n_4) = (2; 1.8; 1; 1.5)$. For example, by TDO formulation, the slope at $t = 3\text{s}$ (or $2h = 0.4 \mu\text{m}$) is $0.100 \equiv \Delta n_{\text{eff}}$. (b) The COMSOL simulations associated at the specific point $2h = 0.4 \mu\text{m}$ (or $t = 3\text{s}$) of the previous (a) TDO formulation curves. With COMSOL, the slope is calculated by a simple rate of change Δn_{eff} , between two fixed structures or situations $2h = 0.4 \mu\text{m}$ ($t = 3\text{s}$) and $2h = 0.2 \mu\text{m}$ ($t = 4\text{s}$): $\Delta n_{\text{eff}} = 0.098$.

Table 1. Compared results of the variation of the eigenvalues Δn_{eff} with our variational method based on time derivation operator (TDO), that is, equation (17) and Figure 4, and COMSOL software. As an example, this opto-geometric guiding structure is chosen at fixed parameters: optical indices $(n_1; n_2; n_3; n_4) = (2; 1.8; 1; 1.5)$, wavelength $\lambda = 0.8 \mu\text{m}$ and $2e_{\text{fixed}} = 0.2 \mu\text{m}$, with $2h = 0.4 \mu\text{m}$.

	TDO (Eq. (17) – Fig. 4a)	COMSOL (see Fig. 4b)
Variation of Eigenvalues Δn_{eff}	0.100 (directly by the data of coordinate)	0.098 (=1.903 – 1.805)

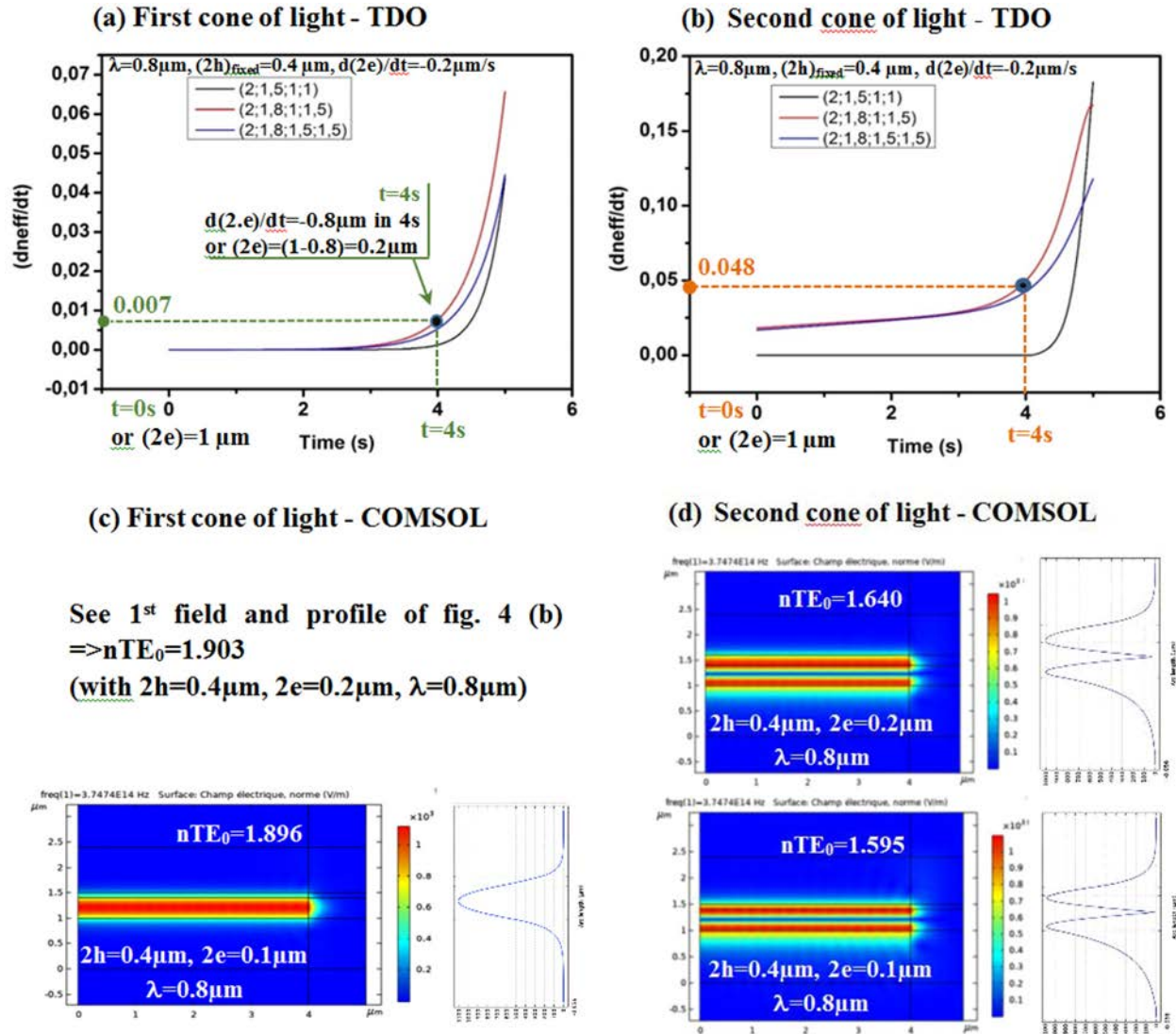


Fig. 5. (a) Plot of $\frac{dn_{\text{eff}}}{dt}$ with time derivation operator (TDO) formulation, against time for (a) the first strongly guided mode and (b) the first weakly guided mode of a 4-layer structure in case of variation of the height e of the first upper cladding (Eq. (23)) and for different sets of indices $(n_1; n_2; n_3; n_4) = (2; 1.5; 1; 1); (2; 1.8; 1; 1.5); (2; 1.8; 1.5; 1.5)$. The other parameters are $2h_{\text{fixed}} = 0.4 \mu\text{m}$, $2e_{(t=0s)} = 1 \mu\text{m}$, and $\frac{de}{dt} = -0.1 \mu\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$. For example, by TDO formulation, the slope at $t = 4\text{s}$ (or $2e = 0.2 \mu\text{m}$) is respectively $\Delta n_{\text{eff}} \equiv 0.007$ and 0.048 for both cones of light. (c) and (d) Represent the COMSOL simulations associated at the specific point of the previous (a) and (b) TDO formulation curves. With COMSOL, the slope is calculated by a simple rate of change Δn_{eff} , between two fixed structures or situations $2e = 0.2 \mu\text{m}$ ($t = 4\text{s}$) and $2e = 0.1 \mu\text{m}$ ($t = 4.5\text{s}$): $\Delta n_{\text{eff}} = 0.007$ and 0.045 respectively for both cones of light.

could be performed in order to determine the overall dynamics of the effective propagation constants in case of the temporal variation of both the above-mentioned layers at the same time. By considering the temporal variation of both $2h(t)$ and $2e(t)$ in the 4-layer family waveguides, the

time-derivation of equations (10) and (18) should lead to a system of two coupled equations whose resolution should be equivalent to the displacement associated with a set of 2D dispersion maps vision instead of a set of 1D dispersion curves. This model is valid not only for dielectric materials,

Table 2. Compared results of the variation of the eigenvalues Δn_{eff} with our variational method based on time derivation operator (TDO), that is equation (23) and Figures 5a and 5b, and COMSOL software. As an example, the opto-geometric guiding structure is chosen at fixed parameters: optical indices $(n_1; n_2; n_3; n_4) = (2; 1.8; 1; 1.5)$, wavelength $\lambda = 0.8 \mu\text{m}$ and $2h_{\text{fixed}} = 0.4 \mu\text{m}$, with dimension $2e = 0.2 \mu\text{m}$.

	TDO (Eq. (23) – Figs. 5a and 5b)	COMSOL (see Figs. 5c and 5d)
Variation of Eigenvalues Δn_{eff}	0.007 (directly by the data of coordinate)	0.007 (=1.903 – 1.896)
	0.048 (directly by the data of coordinate)	0.045 (=1.640 – 1.595)

but also in the presence of a metallic layer, as the eigenvalue equations from which our expressions have been derived are valid whatever the material (see Sect. 2.5 of Ref. [3]). In the case of the presence of a metallic layer, when plasmonic waves can establish, one must take into account the imaginary part of the permittivity $\varepsilon = (n + iK)^2$ of the metal. The value of n^2 used in the calculations has thus to be modified to $(n^2 - K^2)$ in order to describe the physical behavior of a waveguide comprising a metallic layer, including the propagation of plasmonic waves. Extended studies should also be performed in order to investigate the influence of the temporal variation of the opto-geometrical parameters of more complex photonic structures such as rib waveguide, optical fiber, slab waveguide of an arbitrary large number of layers and metal layers.

Author contribution statement

Bêche and Gaviot developed the idea of this method (called TDO method) and procedure based on the introduction of a time managing the evolution of electromagnetic structures and thus the course of dispersion curves; they have supervised such project and worked on the manuscript. Garnier performed all the analytical calculation plus the associated simulations; he drafted the manuscript. Doliveira and Mahé simulated under COMSOL to corroborate the previous TDO results.

References

1. J.D. Colladon, C.R. Acad. Sci. **15**, 800 (1842)
2. J. Hecht, *City of Light: The Story of Fiber Optics* (Oxford University Press, Oxford, 1999)
3. M.J. Adams, *Introduction to Optical Waveguides* (John Wiley & Sons, Chichester, 1981)

4. A.W. Snyder, J.D. Love, *Optical Waveguide Theory* (Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, 2000)
5. A. Yariv, *Quantum Electronics*, 2nd edn. (John Wiley & Sons, Chichester, 1957)
6. T. Tamir, *Guided-Wave Optoelectronics*, 2nd edn. (Springer-Verlag, Berlin, 1990)
7. D. Marcuse, *Theory of Dielectric Optical Waveguides* (Academic Press, New York, 1974)
8. D. Marcuse, IEEE J. Quant. Electron. **28**, 459 (1992)
9. R.L. Gallawa, I.C. Goyal, Y. Tu, K. Gharak, IEEE J. Quant. Electron. **27**, 518 (1991)
10. P.N. Robson, P.C. Kendall, *Rib Waveguide Theory by the Spectral Index Method Research*, (Studies Press Ltd., New York, 1990)
11. E.A.J. Marcatili, Bell Syst. Techn. J. **48**, 2071 (1969)
12. T. Begou, B. Bêche, N. Grossard, J. Zyss, A. Gouillet, G. Jézéquel, E. Gaviot, J. Opt. A: Pure Appl. Opt. **10**, 053310.1 (2008)
13. M. Koshiba, K. Hayata, M. Suzuki, Electron. Lett. **18**, 411 (1982)
14. B. Bêche, J.F. Jouin, N. Grossard, E. Gaviot, J. Zyss, Sens. Actuators Phys. A **114**, 59 (2004)
15. P. Yeh, A. Yariv, C.-S. Hong, J. Opt. Soc. Am. **67**, 423 (1977)
16. K.H. Schlereth, M. Tacke, IEEE J. Quant. Electron. **26**, 627 (1990)
17. M. Heiblum, J. Harris, IEEE J. Quantum Electron. **11**, 75 (1975)
18. L. Garnier, C. Saavedra, R. Castro-Beltran, M.J.L. Lucio, E. Gaviot, B. Bêche, Optik **142**, 536 (2017)
19. B. Bêche, E. Gaviot, A. Renault, J. Zyss, F. Artzner, Optik **121**, 188 (2010)

Open Access This article is distributed under the terms of the Creative Commons Attribution License <https://creativecommons.org/licenses/by/4.0> which permits unrestricted use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original author(s) and source are credited.

Cite this article as: L. Garnier, A. Doliveira, F. Mahé, E. Gaviot, B. Bêche, Temporal derivation operator applied on the historic and school case of slab waveguides families eigenvalue equations: another method for computation of variational expressions, Eur. Phys. J. Appl. Phys. **87**, 10501 (2019)

Titre : Sondes de lumière résonante et traitement des signaux pour le suivi dynamique de processus de la matière molle.

Mots clés : Photonique Intégrée, Micro-Résonateur, Métrologie Fine, Matière Molle, Transitions de phase, Sédimentation et crémage

Résumé : Les micro-résonateurs photoniques intégrés ont de nombreuses applications dans le domaine de la détection et de la métrologie fine. Les travaux présentés au cours de cette thèse ont pour objet d'étudier et de répertorier leurs utilisations pour le diagnostic et le suivi de processus dynamiques de la matière molle comme les mesures de vitesses de sédimentation, les détections de transitions de phases propres aux produits de pharmacologie galénique, de l'agro-alimentaire, de la cosmétique... Le minimum théorique mathématique relatif au principe de fonctionnement des micro-résonateurs est présenté. Il porte tout d'abord sur les définitions des valeurs propres en électromagnétisme associées aux structures guidantes (constante de propagation effective associée au mode propre optique), puis sur la notion de couplage évanescent en physique des ondes. La fonction de transfert générique de la structure photonique globale résonante est ensuite calculée, donnant lieu aux attributs spectraux fondamentaux des signaux.

Les procédés de fabrication en salle blanche de telles structures puis le montage complet de la plateforme de mesures et traitement des signaux optiques sont ensuite développés. Cette plateforme a été mise en oeuvre afin d'étudier différents processus dynamiques associés à la matière molle qui seront suivis en temps réels par les sondes de lumière résonante. Ces phénomènes sont : les mécanismes de condensation brusque de vapeur, l'évaporation d'une goutte d'eau sessile et la mesure différentielle de perte de masse, les mesures de vitesse de sédimentation, puis le suivi des transitions de phase ; cette dernière application porte respectivement sur une transition gel/fluide de la sphingomyéline et sur une transition morphologique d'un composé d'acide gras.

Enfin, des développements mathématiques sont réalisés dans le but de construire une formulation intégrant l'ensemble des variations géométriques de la structure et décrivant donc un déplacement sur les courbes de dispersion lors des dits processus.

Title: Resonant light probes and signals treatment for the dynamic tracking of soft matter processes.

Keywords: Integrated Photonics, Micro-Resonators, Metrology, Soft Matter, Phase Transitions, Sedimentation and creaming

Abstract: Integrated photonic micro-resonators have numerous applications in the range of detection and fine metrology. The works presented in this thesis aim at studying and list their use for the diagnosis and the tracking of dynamic soft matter processes such as measurements of sedimentation speed, detections of phase transitions related to products from galenic pharmacology, food industry, cosmetics...

The theoretical and mathematical minimum description related to the operating principle of micro-resonators is presented. It first deals with definitions of eigenvalues associated to a guiding structure (effective propagation constant associated with the optical mode), then on the notion of evanescent coupling in waves physics. The generic transfer function of the global resonant photonic structure is then computed, giving rise to the fundamental spectral attributes of signals.

The fabrication process in clean room of such structures and the complete mounting of the

measurements and optical signals treatment platform are then developed. This platform has been enforced to study different dynamic processes associated to soft matter which will be tracked in real time by the resonant light probes. These phenomena are : the mechanism of brutal condensation vapor, the evaporation of a sessile water droplet and the differential loss of mass measurements, the measures of the speed of sedimentation of nano-particles, and the tracking of phase transitions ; this last application concerns respectively the gel/fluid transition of sphingomyelin and on a morphologic phase transition of a compound of fatty acids.

Finally, mathematical developments are realized in order to work out a formulation integrating all the geometric variations of the structure, and thus describing a displacement on the dispersion curves during the said processes.