

69545

LABORATOIRE DE SPECTROSCOPIE MOLECULAIRE

50376  
1990  
174

50376  
1990  
174

N° d'ordre : 564

# THÈSE

présentée à

L'UNIVERSITE DES SCIENCES ET TECHNIQUES DE LILLE FLANDRES ARTOIS

pour obtenir le titre de

**DOCTEUR EN PHYSIQUE**

par

René WROBEL



**ETUDE DE LA TRANSMISSION D'IMPULSIONS  
LUMINEUSES, DELIVREES PAR UN LASER A XeCl,  
DANS DES FIBRES OPTIQUES A USAGE MEDICAL.  
UTILISATION DE CE LASER A LA FRAGMENTATION  
ET A L'IDENTIFICATION IN-VITRO  
DE CALCULS BILIAIRES.**

Soutenu le 5 Juillet 1990 devant la Commission d'Examen

M.	J.P.	BERTHIER	Président
M.	J.M.	BRUNETAUD	Rapporteur
M.	J.	SCHAMPS	Rapporteur
M.	F.	HERLEMONT	Rapporteur
M.	J.P.	HUVENNE	Examineur
M.	P.	BERNAGE	Examineur
M.	P.	NIAY	Examineur



## REMERCIEMENTS

Je dois à P. BERNAGE et P. NIAY d'avoir pu mener à bien ce travail. Pour m'avoir témoigné une grande disponibilité et prodigué maints conseils, ainsi que pour m'avoir accordé leur confiance, je leur exprime ma plus profonde reconnaissance.

Je suis très sensible à l'honneur que me fait Monsieur le Professeur J.P. BERTHIER, de l'Université Paris XIII, en présidant le jury de thèse.

J'exprime ma gratitude à Monsieur le Professeur J.M. BRUNETAUD, du C.H.R. de Lille, qui a accepté d'examiner ce mémoire malgré ses nombreuses occupations.

Ce travail a été réalisé au sein du Laboratoire de Spectroscopie Moléculaire. Je remercie son directeur, Monsieur le Professeur J. SCHAMPS, qui a accepté de juger ce travail.

Monsieur F. HERLEMONT, du Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne, me fait l'honneur d'examiner ce mémoire. Je l'en remercie vivement.

Une partie de ce travail est le fruit d'une collaboration avec le CUMA de Lille II. Je remercie son directeur, Monsieur le Professeur J.P. HUVENNE, qui me fait l'honneur de juger ce travail. Je n'oublierai pas Madame B. LACROIX, à qui j'exprime ma gratitude pour l'aide précieuse qu'elle m'a apportée.

Je voudrais exprimer ma profonde reconnaissance à Monsieur de Docteur E. LEROY, du Laboratoire de Biochimie de l'Hopital Calmette, pour l'aide désintéressée dont il m'a gratifiée.

Je remercie H. BOCQUET, J.M. BLONDEAU et J.J. LEDEE pour leur contribution apportée à diverses étapes de ce travail.

Il me reste à exprimer mes remerciements les plus sincères à tous ceux qui ont contribué à la réalisation matérielle de ce mémoire, Messieurs J.M. RAFFAUD et S. FAUQUEMBERGUE, et plus particulièrement Madame M.T. LEDEE-WALASIAK qui s'est chargée avec gentillesse et efficacité de la dactylographie.



# T A B L E D E S M A T I E R E S

INTRODUCTION	p. 1
 <b>CHAPITRE I - ETUDE DE LA TRANSMISSION D'IMPULSIONS LUMINEUSES DELIVREES PAR UN LASER A XeCl DANS DES FIBRES OPTIQUES A USAGE MEDICAL</b>	
INTRODUCTION	p. 13
I.1 - Rappels théoriques concernant l'excitation d'une fibre multimode par une impulsion laser ultraviolette	p. 19
I.1.1 - Rappels sur la propagation de rayons lumineux dans une fibre optique multimode à saut d'indice	p. 19
I.1.1.1 - Définition du caractère multimodal de la fibre	
I.1.1.2 - Conditions de guidage des rayons lumineux	
I.1.1.3 - Evolution des paramètres d'une impulsion ultraviolette de faible puissance au cours de la propagation dans la fibre multimode à saut d'indice supposée idéale et parfaitement rectiligne	
I.1.1.3.1 - Invariants de la propagation - Nombre de réflexions subies par un rayon lumineux guidé en fonction des conditions d'injection	
I.1.1.3.2 - Influence de la dispersion chromatique et de la dispersion intermodale sur la longueur temporelle de l'impulsion	
I.1.1.3.3 - Présentation des mécanismes de pertes linéaires résultant de la propagation de rayons guidés dans la fibre	
I.1.1.3.3.1 - Pertes par diffusion Rayleigh	
I.1.1.3.3.2 - Pertes par absorption linéaire dans le coeur de fibre	

- I.1.3.3.3 - Pertes provoquées par l'absorption dans la gaine
  - I.1.3.3.4 - Pertes prenant en compte l'ensemble des mécanismes
  - I.1.3.4 - Effet de la propagation sur la distribution des énergies en sortie de fibre dans les champs proche et lointain
  - I.1.4 - Pertes introduites par les réflexions des rayons lumineux sur les faces d'entrée et de sortie des fibres
  - I.1.5 - Effet des écarts à la rectitude des fibres
- I.2 - Propagation d'une impulsion ultraviolette de forte puissance dans une fibre à saut** p. 52
- I.2.1 - Limitation de l'efficacité du couplage laser XeCl-fibre, introduite par des fractures optiques de fibre
    - I.2.1.1 - Définition de la fluence seuil correspondant à l'apparition d'une fracture optique de la fibre
    - I.2.1.2 - Présentation des lois empiriques décrivant l'évolution du seuil de fracture en fonction des paramètres de faisceau et de fibre
  - I.2.2 - Estimation des puissances optiques au-delà desquelles différents effets non-linéaires risquent de perturber les caractéristiques de la transmission
    - I.2.2.1 - Effet Raman
    - I.2.2.2 - Effet Brillouin, effet Kerr
    - I.2.2.3 - L'absorption à deux photons
- I.3 - Conclusion de la partie théorique** p. 75

- I.B - Etude expérimentale de la transmission d'impulsions laser ultraviolettes dans des fibres optiques multimodes** p. 77
  - I.B.1 - Caractéristiques techniques des matériels utilisés** p. 79
    - I.B.1.1 - La source laser
    - I.B.1.2 - Les fibres
  - I.B.2 - Couplage du faisceau laser dans la fibre** p. 91
    - I.B.2.1 - Position du problème
    - I.B.2.2 - Préparation et contrôle des extrémités de fibres
      - I.B.2.2.1 - Préparation des extrémités de fibres
      - I.B.2.2.2 - Contrôle des extrémités de fibres
    - I.B.2.3 - Dispositif d'enregistrement des distributions spatiales d'énergie dans les spots
    - I.B.2.4 - Anamorphose du faisceau par deux lentilles cylindriques
    - I.B.2.5 - Couplage au moyen d'une lentille sphérique
      - I.B.2.5.1 - Principe du montage
      - I.B.2.5.2 - Protocole de mise en place de la fibre
  - I.B.3 - Détermination expérimentale du seuil de fracture optique des fibres en fonction du diamètre de coeur et de la nature des fibres** p. 113
    - I.B.3.1 - Introduction
    - I.B.3.2 - Méthode de mesure
    - I.B.3.3 - Observations et résultats expérimentaux
    - I.B.3.4 - Discussion
  - I.B.4 - Etude des paramètres du faisceau transmis par la fibre** p. 125
    - I.B.4.1 - Caractéristiques spectrale et temporelle des signaux transmis par la fibre
      - I.B.4.1.1 - Etude spectrale
      - I.B.4.1.2 - Etude temporelle
    - I.B.4.2 - Distribution spatiale d'énergie de l'impulsion transmise par la fibre
    - I.B.4.3 - Etude de l'énergie disponible en sortie de fibre en fonction de l'énergie incidente
    - I.B.4.4 - Etude de l'énergie disponible en sortie de fibre en fonction du rayon de courbure de la fibre

- I.B.5 - Etude de l'évolution de la transmission des fibres en fonction du nombre de tirs** p. 133
- I.B.5.1 - Introduction**
  - I.B.5.2 - Etude de la transmission à 308 nm de fibres rectilignes en fonction de différents paramètres expérimentaux**
    - I.B.5.2.1 - Etude en fonction de la fluence incidente**
    - I.B.5.2.2 - Etude en fonction de la cadence des tirs**
    - I.B.5.2.3 - Etude en fonction de la longueur des échantillons**
  - I.B.5.3 - Etude de la transmission à 308 nm de fibres courbées en fonction du rayon de courbure et du nombre de tirs**
  - I.B.5.4 - Etude de la transmission spectrale (entre 300 nm et 650 nm) d'une fibre rectiligne en cours d'irradiation**
  - I.B.5.5 - Mise en évidence du rôle de la gaine optique de fibres PCS et HCS dans l'évolution de la transmission**
  - I.B.5.6 - Discussion**
- I.B.6 - Etude de la luminescence observée lors de l'irradiation des fibres par les impulsions ultraviolettes** p. 155
- I.B.6.1 - Introduction**
  - I.B.6.2 - Etude spectrale**
  - I.B.6.3 - Etude temporelle**
  - I.B.6.4 - Evolution de l'intensité de la luminescence en fonction du nombre de tirs**
  - I.B.6.5 - Discussion**
- I.B.7 - Conclusion de l'étude expérimentale** p. 163
- REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES DU CHAPITRE I** p. 165

**CHAPITRE II - ETUDE DE LA DESTRUCTION IN VITRO DE CALCULS  
BILIAIRES PAR LASER EXCIMERE A XeCl**

**II.1 - INTRODUCTION** p. 181

**II.2 - ARTICLE** p. 189

**II.3 - CONCLUSION** p. 198

**REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES DU CHAPITRE II** p. 202

**CHAPITRE III - DETERMINATION DE LA CONSTITUTION CHIMIQUE DE  
CALCULS BILIAIRES ASSISTEE PAR UNE ANALYSE  
MULTICANALE DE SPECTRES DE FLUORESCENCE  
INDUITS A FAIBLE FLUENCE PAR LASER :  
Classement des calculs dans la catégorie  
cholestérolique ou pigmentée**

**III.1 - INTRODUCTION** p. 207

**III.2 - DESCRIPTION DE LA METHODE D'ANALYSE** p. 209

III.2.1 - Les échantillons

III.2.2 - Description du dispositif expérimental

**III.3 - RESULTATS** p. 222

III.3.1 - Présentation des spectres de fluorescence

III.3.1.1 - Calculs cholestéroliques

III.3.1.2 - Calculs pigmentés

III.3.1.3 - Spectres de constituants purs

III.3.1.4 - Spectres de calculs prélevés dans des  
cas de lithiases présentant une  
fréquence d'apparition faible :  
calcul de palmitate et calcul  
de calcite.

**III.3.1.5 - Spectres de fluorescence corrigés de  
la réponse spectrale de la chaîne  
de mesure**

**III.3.2 - Détermination d'un critère quantitatif  
permettant le classement des calculs dans  
la catégorie pigmentée ou cholestérolique**

**III.3.3 - Introduction de paramètres expérimentaux  
nouveaux à des fins d'application in-vivo.**

**III.4 - CONCLUSION**

p. 248

**REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES DU CHAPITRE III**

p. 251

**CONCLUSION**

p. 259

**I N T R O D U C T I O N**



## I N T R O D U C T I O N

Les lasers à excimères appartiennent à la famille des lasers de puissance (typiquement 50 MW en 10 ns). Leur spectre d'émission se compose de raies discrètes, assez larges spectralement ( $\Delta\lambda \simeq 0,03 \text{ \AA}$ ), situées dans le domaine spectral ultraviolet et proche ultraviolet (tableau 1). Les premières études se rapportant à l'interaction du rayonnement délivré par les lasers à excimères avec des matériaux organiques ont été réalisées au début des années 1980 sur des films polymères [1,2]. [ Ces travaux ont montré que l'utilisation de ce type de laser permettait d'obtenir des découpes nettes et précises des matériaux, sans effet thermique apparent, et donc sans endommager la matière voisine du point d'impact. La qualité des coupes et l'absence d'effet thermique ont conduit de nombreux auteurs à envisager la possibilité d'utiliser ces lasers à des fins médicales.] Ainsi, les lasers à excimères apparaissent comme de bons candidats pour réaliser des angioplasties (désobstruction de voies artérielles [3-6], des kératectomies (correction du pouvoir de réfraction de la cornée) [7], ou des lithotripsies (destruction de calculs urinaires ou biliaires) [8,9]. }

Cependant, il reste à franchir de nombreuses étapes avant que les lasers excimères puissent entrer dans la pratique hospitalière quotidienne. Ainsi, les différents mécanismes régissant à l'échelle microscopique les processus d'interaction entre l'impulsion laser et les matériaux

Type de laser	Longueur d'onde d'émission	Durée d'impulsion	Energie par impulsion et cadence de tirs
Argon Fluoride <b>ArF</b>	193 nm	5-25 ns	jusqu'à 500 mJ à 1-1000 hz
Krypton fluoride <b>KrF</b>	249 nm	1-50 ns	jusqu'à 1 J à 1-500 hz
Xenon chloride <b>XeCl</b>	308 nm	1-80 ns	jusqu'à 1.5 J à 1-500 hz
Xenon fluoride <b>XeF</b>	351 nm	1-30 ns	jusqu'à 500 mJ à 1-500 hz

Tableau 1 Caractéristiques d'émission des principaux lasers à excimères

biologiques doivent être complètement identifiés et leurs paramètres maîtrisés [10]. D'autre part, il semble à l'heure actuelle délicat, pour des raisons technologiques, de mettre en oeuvre en milieu hospitalier des lasers excimères tels que ArF, KrF, XeF. En effet, pour prolonger la durée de vie relativement courte (une douzaine d'heures) des milieux amplificateurs de ces lasers, il est nécessaire de procéder à l'injection régulière de fluor ( $F_2$ ), gaz toxique et coûteux. Seul le laser à excimère XeCl présente un confort suffisant d'utilisation pour que l'on puisse envisager à court terme son développement en tant que laser médical [11].

La lithiase biliaire est une maladie très courante qui a suscité de nombreux travaux de recherche visant à la mise au point de méthodes de traitement non traumatisantes. Nous pouvons citer par exemple des études in-vitro de fragmentation de calculs réalisées avec des lasers pulsés visibles [12]. La destruction des calculs par des lasers visibles s'avère efficace, mais conduit cependant à des fragments résiduels de grande taille difficiles à évacuer par les voies naturelles. Nous nous sommes donc proposés d'utiliser les propriétés du rayonnement issu d'un laser à XeCl ( $\lambda = 308$  nm), pour détruire des calculs biliaires. L'objet de ce mémoire porte sur les résultats de cette étude de faisabilité.

Comme dans la plupart des applications médicales, l'utilisation in-vivo du laser XeCl nécessite de guider par voie endoscopique le faisceau ultraviolet de la source laser jusqu'à la cible. Cet impératif implique l'utilisation de fibres optiques souples, à l'exclusion des autres systèmes de transmission, inadaptés pour cet usage [13]. Les fibres optiques peuvent en effet être introduites simplement par les voies naturelles. [Elles doivent toutefois satisfaire à un cahier des charges rigoureux dont les différents éléments

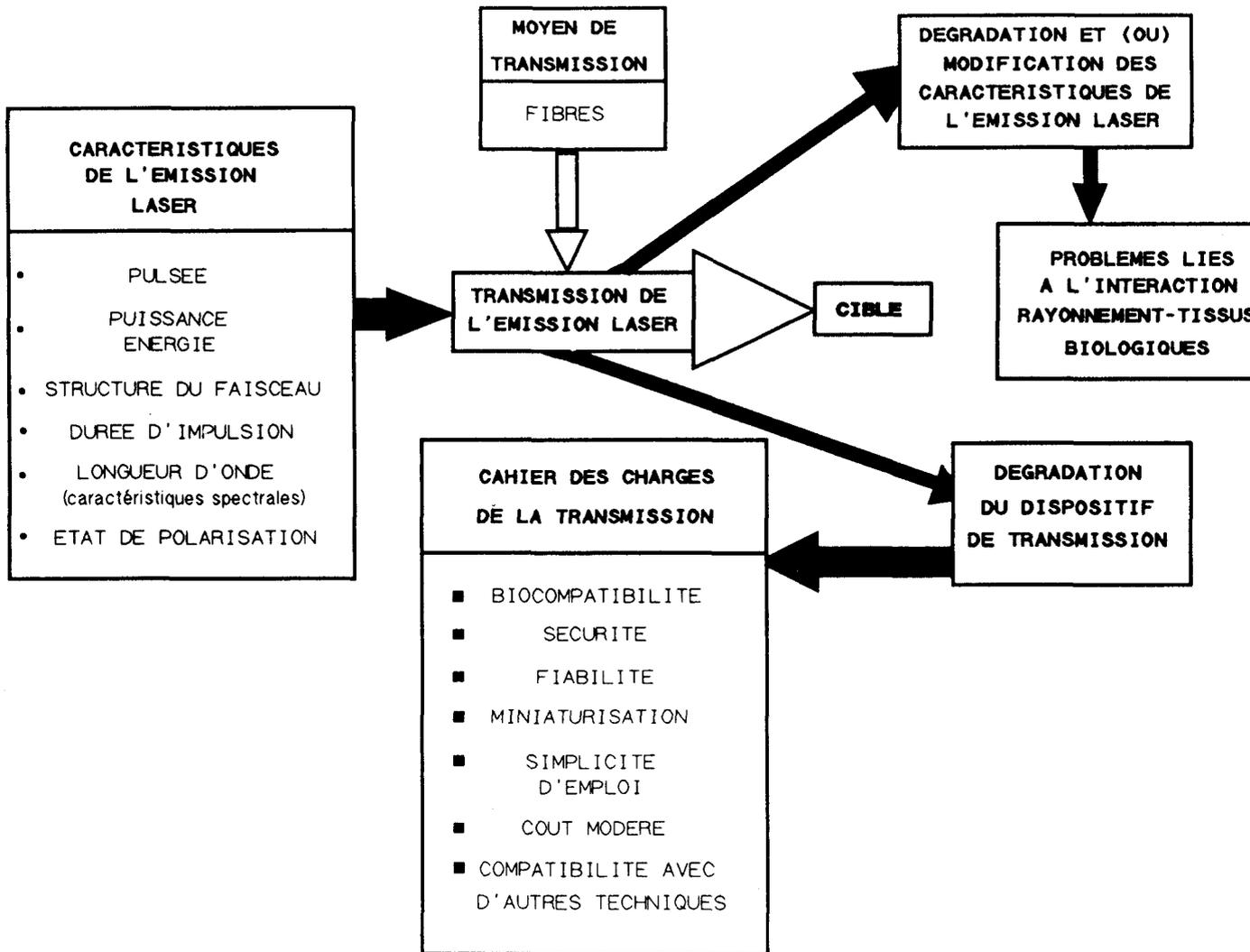


Figure 1 - Cahier des charges de la transmission par fibre.

sont rassemblés sur la figure 1. Si les fibres à coeur en silice présentent des caractéristiques compatibles avec une utilisation médicale (biocompatibilité, coût modéré), il apparaît cependant que la transmission des impulsions ultraviolettes dans ces fibres pose encore des problèmes. En effet, la transparence de la silice dans le domaine spectral ultraviolet est limitée par la diffusion Rayleigh et par la présence de bandes d'absorption (rendant par exemple ces fibres impropres à la transmission de la radiation à 193 nm (ArF) [14]). D'autre part, l'efficacité de l'injection d'énergie dans la fibre se trouve réduite par les phénomènes de fracture optique des fibres [15]. L'intensité et la nature ultraviolette de la radiation émise par le laser à XeCl peuvent provoquer l'apparition de phénomènes non-linéaires qui affectent la transmission de façon temporaire ou permanente.

Nous consacrons donc le premier chapitre de ce mémoire à l'étude de la transmission d'impulsions lumineuses délivrées par un laser à XeCl dans des fibres optiques à usage médical. Nous divisons ce chapitre en deux parties. Dans la première partie nous abordons le problème de la transmission sur le plan théorique. Dans la seconde partie nous décrivons les expériences réalisées.

Dans le second chapitre, nous étudions la faisabilité de destruction de calculs biliaires in-vitro au moyen du laser à excimère XeCl. Nous déterminons les paramètres caractéristiques de l'interaction laser-calculs : seuils d'ablation, efficacité de l'ablation. Nous évaluons également les risques de toxicité des produits gazeux formés lors de l'ablation en procédant à leur analyse. Les principaux résultats de cette étude sont présentés sous forme d'un article paru à IEEE Journal of Biomedical Engineering.

Dans le troisième chapitre, nous présentons une méthode d'identification de la nature chimique de calculs biliaires, offrant des perspectives d'utilisation à des fins de diagnostic. La méthode repose sur l'analyse des spectres de fluorescence des calculs, excitée par des impulsions laser délivrées à faible niveau d'énergie.

REFERENCES DE L'INTRODUCTION

- [1] R. SRINIVASAN, V.M. BANTON  
Self-developing photoetching of poly(ethylenete-  
raphtalate) films by far-ultraviolet excimer laser  
radiation  
Appl. Phys. Lett., vol. 41, pp. 576-578, 1982.
- [2] J.E. ANDREW, P.E. DYER, D. FOSTER, P.H. KEY  
Direct etching of polymeric materials using a XeCl laser  
Appl. Phys. Lett., vol. 43, pp. 717-719, 1983.
- [3] W.S. GRUNDFEST et al.  
Pulsed ultraviolet laser and the potential for safe laser  
angioplasty  
Am. J. Surg., vol. 150, pp. 220-226, 1985.
- [4] W.S. GRUNDFEST et al.  
Laser ablation of human atherosclerotic plaque without  
adjacent tissue injury  
J. Am. Coll. Cardiol., vol. 5, pp. 929-933, 1985.
- [5] R. LINSKER, R. SRINIVASAN, J.J. WYNNE, D.R. ALONSO  
Far ultra-violet laser ablation of atherosclerotic  
lesions  
Lasers in Surgery and Medicine, vol. 4, pp. 201-206,  
1984.
- [6] E. DOWNAR, J. BUTANY, A. JARES, B.P. STOICHEFF  
Endocardial photoablation by excimer laser  
J. Am. Coll. Card., vol. 7, n° 3, pp. 546-550, 1986.

- [7] J. MARSHALL, S. TROKEL, S. ROTHERY, R. KRUEGER  
Photoablative reprofiling of the cornea using an excimer  
laser : Photorefractive keratectomy  
Lasers in Ophtalmology, vol. 1, n° 1, pp. 21-48, 1986.
- [8] Excimer laser shatters gallstones  
Laser-focus/Electro-optics, p. 31, 1987.
- [9] R. WROBEL, P. BERNAGE, P. NIAY, C. DESCAMPS,  
J.P. HUVENNE, B. LACROIX, J.M. BRUNETAUD, S. MORDON  
XeCl laser in biliary calculus fragmentation : fluence  
threshold and ablation products  
IEEE J. of Biomedical Engineering, vol. 36, n° 12,  
pp. 1202-1209, 1989.
- [10] S. MORDON, O. DEWITTE  
Applications médicales des lasers  
Encyclopédie Médico-chirurgicale, Instantanés Médicaux,  
pp. 35-39, 1989.
- [11] J.B. LAUDENSLAGER  
Excimer lasers adapt to angioplasty  
Laser-focus/Electro-optics, pp. 57-85, May 1988.
- [12] N.S. NISHIOKA, P.C. LEVINS, S.C. MURRAY, J.A. PARRISH,  
R.R. ANDERSON  
Fragmentation of biliary calculi with tunable dye lasers  
Gastroenteroly, vol. 93, pp. 250-255, 1987.
- [13] P. NIAY, P. BERNAGE  
Etude des principes de la transmisison des radiations  
laser  
dans "Lasers en Médecine et en Chirurgie", vol. 1,  
Ed. Société Française des Lasers Médicaux, à paraître.

- [14] E.A. NEVIS  
Alteration of the transmission characteristics of fused silica optical fibers by pulsed ultraviolet radiation  
SPIE, Southwest Conference on Optics, vol. 540,  
pp. 421-426, 1985.
- [15] R.S. TAYLOR, K.E. LEOPOLD, A.K. BRIMACOMBE, S. MIHAILOV  
Dependance of the damage and transmission properties of fused silica fibers on the excimer laser wavelengths  
Applied Optics, vol. 27, n° 15, pp. 3124-3134, 1988.



**CHAPITRE I**

**ETUDE DE LA TRANSMISSION D'IMPULSIONS LUMINEUSES DELIVREES**

**PAR UN LASER A XeCl ( $\lambda = 308 \text{ nm}$ ) DANS DES FIBRES OPTIQUES**

**A USAGE MEDICAL**



## INTRODUCTION

Les fibres optiques à usage médical présentent des différences marquées avec les fibres utilisées pour les télécommunications optiques :

i) Les fibres médicales sont courtes (typiquement quelques mètres) devant la longueur des liaisons classiquement réalisées dans les réseaux câblés ( $\sim$  km).

ii) Les fibres de télécommunication sont protégées des contraintes mécaniques extérieures et ne sont pas déplacées au cours de la transmission. Une fibre médicale utilisée par voie endoscopique est par contre soumise à des courbures et des torsions qui évoluent au cours de l'intervention.

iii) Les puissances optiques émises par les sources laser du domaine médical sont très supérieures (de 3 à 9 ordres de grandeur) à celles des lasers solides utilisées en télécommunication ( $\sim$  1 mW). Il est donc nécessaire pour transmettre ces puissances optiques élevées d'utiliser des fibres **multi-modes** de préférence à des fibres monomodes.

En télécommunication optique, on utilise deux catégories de fibres multimodes : les fibres à **saut d'indice** et les fibres à **gradient d'indice**. Ces deux catégories de fibres possèdent des propriétés très différentes, si bien qu'il est utile de déterminer laquelle parmi les deux est la mieux adaptée à la transmission des impulsions ultraviolettes délivrées par le laser à XeCl.

Dans une fibre à saut d'indice, le matériau constituant le coeur est homogène et possède un indice de réfraction  $n_c$  constant sur la section du coeur ( $n_c$  supérieur à l'indice de la gaine  $n_g$ ). Dans une fibre à gradient d'indice, l'adjonction de dopants dans le matériau constituant le coeur de fibre permet de contrôler la distribution radiale de l'indice. L'indice du coeur décroît depuis le centre de la fibre jusqu'à la gaine, selon une loi établie pour minimiser la dispersion intermodale. **Les fibres à gradient d'indice ne sont pas adaptées** à la transmission d'impulsions ultraviolettes : en effet, la plupart des dopants présentent des bandes d'absorption intenses dans l'ultraviolet. Les spectres d'absorption\* des dopants sont le plus souvent situés à des longueurs d'onde supérieures à celle correspondant au début de l'absorption de la silice pure. L'utilisation d'une fibre à saut d'indice à coeur en silice pure permet donc de diminuer l'absorption du guide dans l'ultraviolet.] D'autre part, la nature des rayons lumineux couplés dans une fibre (rayons guidés ou rayons guidés à fuite) peut être mieux contrôlée dans une fibre à saut que dans une fibre à gradient d'indice [2]. [Une fibre à saut permet de transmettre une quantité d'énergie lumineuse plus importante qu'une fibre à gradient présentant des paramètres optogéométriques comparables à ceux de la fibre à saut. Elle s'avère également moins sensible aux pertes par courbure [2].

---

\* à titre d'exemple le coefficient d'absorption du dopant  $GeO_2$  augmente fortement à mesure que la longueur d'onde  $\lambda$  diminue en deçà de 325 nm [1], alors que les bandes d'absorption ultraviolettes de la silice pure ne sont significatives que si la longueur d'onde  $\lambda$  est inférieure à 165 nm.

Le choix d'une fibre **multimode à saut d'indice et à coeur en silice** s'impose donc lorsque l'on cherche à transmettre des impulsions lumineuses ultraviolettes en vue d'application médicale.

La propagation d'une impulsion lumineuse le long d'une fibre optique multimode s'accompagne toujours d'une modification des paramètres physiques caractérisant le faisceau lumineux délivré par le laser : l'énergie lumineuse disponible en sortie de fibre est plus faible que celle injectée à l'entrée. Le degré de polarisation du faisceau est abaissé si la fibre ne maintient pas la polarisation. La cohérence spatiale de l'onde issue du laser est altérée par les phénomènes d'interférences et de couplage entre les modes de la fibre. Les processus de dispersions intermodale, intramodale, et chromatique, ainsi que d'éventuelles non-linéarités du milieu peuvent modifier l'enveloppe temporelle de l'impulsion. La distribution chromatique du flux lumineux peut être différente en sortie de fibre de celle enregistrée avant son passage dans la fibre. Ces quelques exemples montrent l'importance que revêt une réflexion théorique préalable, effectuée afin de fixer l'ordre de grandeur des variations des paramètres du faisceau optique\* au cours de la propagation dans la fibre. Nous nous proposons

-----

\* Dans une application médicale, le contrôle de tous les paramètres du faisceau ne revêt pas nécessairement la même importance. Ainsi l'état de polarisation ne semble pas devoir être pris en considération dans une description simplifiée des interactions rayonnement-matériau biologique. L'énergie délivrée par unité de surface (en  $J/cm^2$ ) et la durée de l'impulsion laser déterminent en fait le mécanisme spécifique de l'interaction [3]. La longueur d'onde du rayonnement fixe, pour un matériau donné, la profondeur de pénétration du rayonnement.

donc d'étudier théoriquement ces différents problèmes dans la **première partie de ce chapitre**, en nous plaçant dans l'approximation de l'optique géométrique. Cette approximation permet en effet de rendre compte de la plupart des propriétés de la propagation de rayons lumineux dans des fibres multimodes, et simplifie considérablement le formalisme.

**Dans la seconde partie de ce chapitre** nous exposons les résultats de nos expériences. Après avoir présenté les caractéristiques des impulsions délivrées par le laser à XeCl, nous décrivons les méthodes que nous avons utilisées pour préparer les extrémités de fibre avant d'effectuer les expériences de transmission. Nous présentons ensuite la procédure que nous avons suivie pour coupler le faisceau laser dans la fibre. Les valeurs des énergies ultraviolettes mesurées en sortie des fibres à saut sont limitées par les phénomènes de fracture optique. Nous rendons compte des mesures que nous avons effectuées pour estimer l'influence de ce phénomène sur la capacité de transmission d'énergie de différentes fibres. Des phénomènes de photochromisme peuvent être induits dans certaines fibres sous l'action de tirs laser répétés. Ces effets peuvent se révéler très gênants car ils sont susceptibles de modifier profondément le coefficient de transmission des fibres. Nous avons donc étudié l'évolution des facteurs de transmission de différents types de fibre sous l'effet du flux lumineux. L'irradiation des fibres par le rayonnement ultraviolet s'accompagne d'une émission (luminescence) dont nous présentons les caractéristiques.

**CHAPITRE I**

**PREMIERE PARTIE**

**RAPPELS THEORIQUES CONCERNANT L'EXCITATION  
D'UNE FIBRE MULTIMODE PAR UNE IMPULSION  
LASER ULTRAVIOLETTE**



I.A.1 - RAPPELS SUR LA PROPAGATION DE RAYONS LUMINEUX DANS  
UNE FIBRE OPTIQUE MULTIMODE A SAUT D'INDICE

I.A.1.1 - Définition du caractère multimodal de la fibre.

On suppose que la fibre, de diamètre de coeur  $2a$ , est excitée par une onde monochromatique de longueur d'onde  $\lambda$ . Le caractère monomodal ou multimodal de la propagation de l'onde dans la fibre est déterminé par l'intermédiaire d'un paramètre  $V$ , appelé fréquence normalisée de la fibre, défini par la relation (I.1) [4].

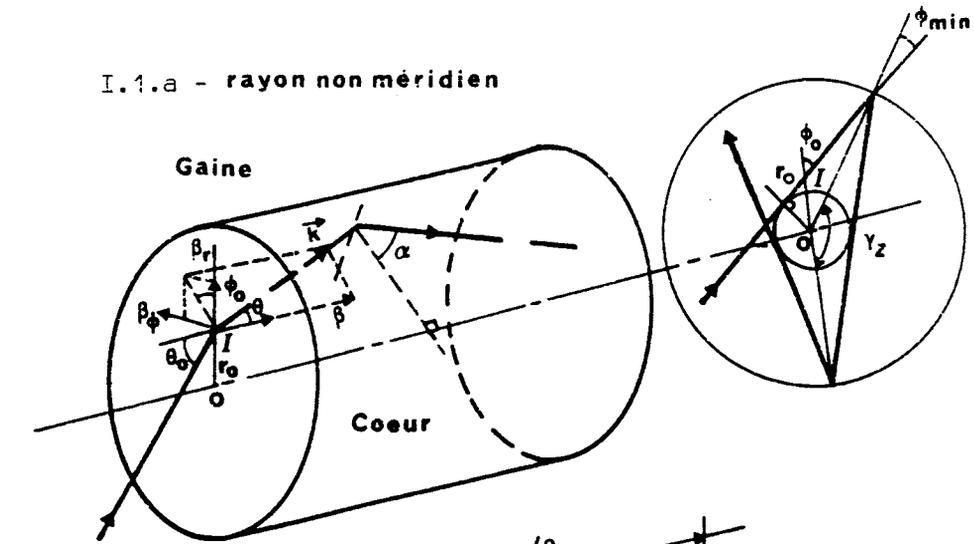
$$(I.1) \quad V = \frac{2 \pi a}{\lambda} (n_c^2 - n_g^2)^{1/2}$$

Le nombre de modes de propagation guidée  $N$  qui peuvent se propager dans la fibre s'exprime à l'aide de la relation approchée (I.2) [4] :

$$(I.2) \quad N \simeq \frac{V^2}{2}$$

Un exemple numérique ( $n_c = 1,48$  ,  $n_g = 1,45$ ,  $a = 200 \mu\text{m}$ ,  $\lambda = 0,3 \mu\text{m}$ ) s'appliquant typiquement aux caractéristiques d'une fibre à usage médical, montre que  $N$  est de l'ordre de  $5 \cdot 10^6$  . Puisque  $N \gg 1$ , la fibre est fortement multimode. La valeur élevée de  $N$  autorise l'assimilation de l'ensemble des modes de propagation guidée à un continuum : l'approximation des rayons lumineux s'avère dans ce cas légitime [5].

I.1.a - rayon non méridien



I.1.b - rayon méridien

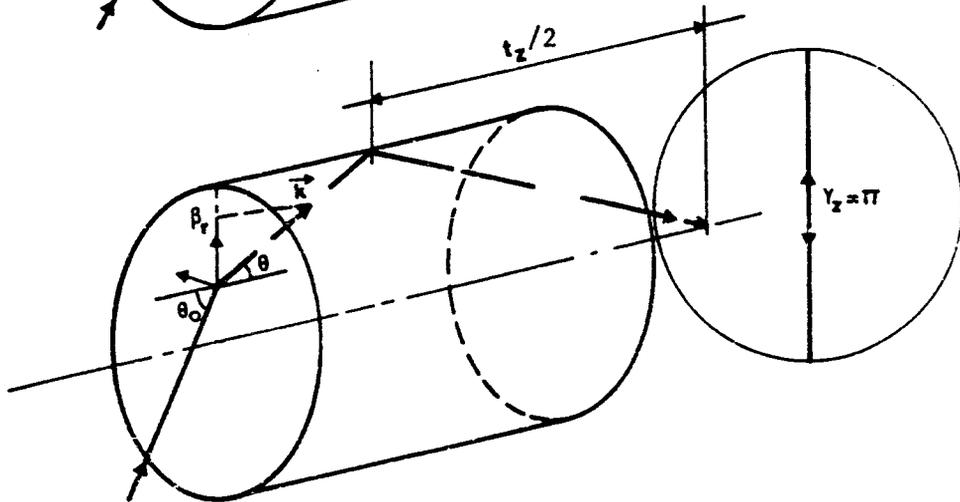


Figure I.1 - Trajet de rayon méridien (I.1.b) et non-méridien (I.1.a) dans une fibre à saut d'indice parfaitement cylindrique.

**I.1.1.2 - Conditions de guidage des rayons lumineux.**

On considère la fibre parfaitement circulaire et sans défaut. Après clivage, les faces d'entrée et de sortie sont polies perpendiculairement à l'axe de la fibre. On suppose qu'un rayon lumineux tombe en un point I du coeur de la fibre sous l'incidence  $\theta_0$ . Deux cas de figures peuvent être envisagés, selon que le rayon incident se situe ou non dans un plan méridien de la fibre (plan contenant l'axe de la fibre). Ces deux situations sont représentées sur la figure (I.1). Le cas de la figure (I.1.b) correspond au trajet suivi par un rayon méridien guidé dans la fibre. Le rayon guidé se propage dans son plan d'incidence et coupe périodiquement l'axe  $\vec{Oz}$  de la fibre. La condition de guidage se déduit de la relation (I.3), qui s'interprète simplement à l'aide de la figure (I.2).

$$(I.3) \quad \theta_0 < \theta_{0c} \quad , \quad n_0 \sin \theta_{0c} = \sqrt{n_c^2 - n_g^2}$$

Dans la relation (I.3)  $n_0 \simeq 1$  représente l'indice du milieu extérieur dans lequel plonge la fibre, et  $\sqrt{n_c^2 - n_g^2}$  l'ouverture numérique de la fibre :

$$(I.4) \quad ON = \sqrt{n_c^2 - n_g^2}$$

Si l'inégalité (I.3) n'est pas vérifiée, les rayons méridiens sont réfractés.

Le cas des rayons non méridiens s'avère plus complexe. En effet, comme le représente la figure (I.1.a), la direction de chaque rayon non méridien est caractérisée par la donnée des angles  $\theta_0$  et  $\varphi_0$  en chaque point d'incidence I. L'angle  $\varphi_0$  correspond à l'angle que fait la projection du rayon incident sur la face d'entrée avec OI (lorsque

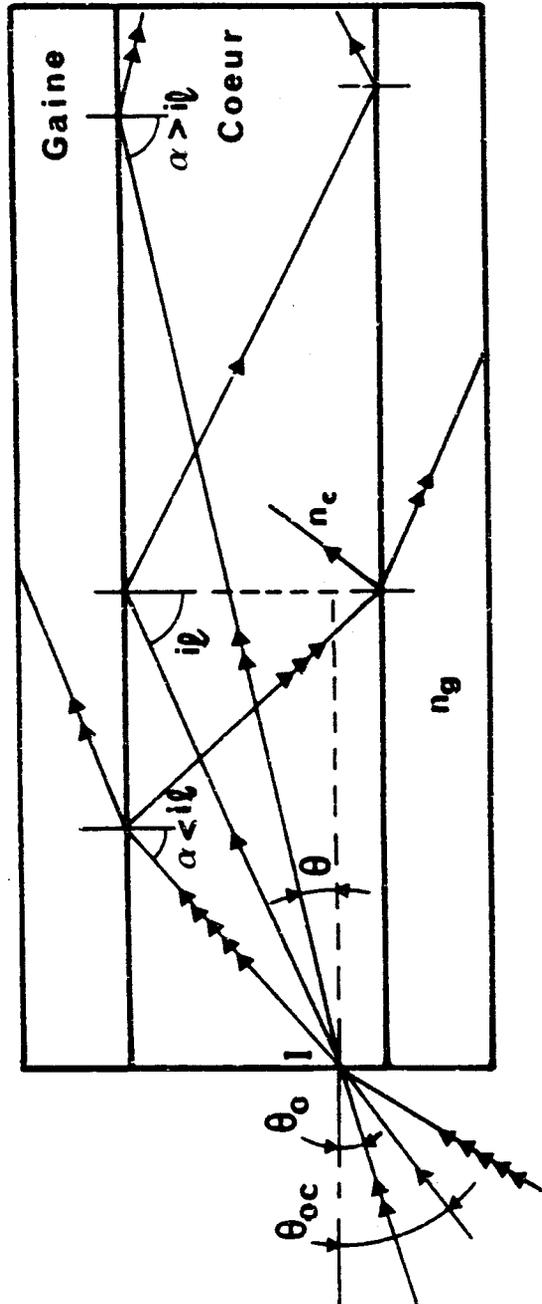


Figure I.2 - Couplage d'un rayon méridien dans une fibre à saut. Si l'angle d'incidence  $\alpha$  sur le dioptre coeur-gaine est  $> i_0$ , le rayon subit la réflexion totale et se trouve guidé. Si l'angle  $\alpha$  est  $< i_0$ , une grande partie de l'énergie se trouve réfractée dans la gaine.

$\theta_0 = 0$  , le rayon est méridien). On peut montrer [2] que, selon les conditions initiales d'injection, les rayons peuvent être classés dans trois catégories : les rayons guidés, les rayons guidés à fuite, et les rayons réfractés. Le tableau I.1 résume ce classement.

Dans le tableau I.1 l'angle  $\theta_M$  est défini par la relation (I.5a) en chaque point I vérifiant l'inégalité  $OI = r_0 < a \cos \theta_0$

$$(I.5a) \quad \sin \theta_M = \sin \theta_{0c} \cdot \sqrt{\frac{1}{1 - \frac{r_0^2}{a^2}}}$$

$$(I.5b) \quad \text{si } r_0 \geq a \cos \theta_{0c} \quad \theta_M = \pi/2$$

\* Les rayons guidés subissent la réflexion totale à l'interface coeur-gaine et se propagent dans la fibre sans atténuation si le coeur et la gaine sont parfaitement transparents.

\* Les rayons réfractés ne remplissent pas les conditions de réflexion totale. A chaque réflexion sur le dioptré coeur-gaine, une fraction T de l'énergie lumineuse transportée dans le coeur de fibre par le pinceau de rayons lumineux est perdue par réfraction. Ces rayons s'atténuent donc plus ou moins rapidement selon la valeur de l'angle d'incidence  $\alpha$  sur le dioptré. Par ailleurs , le phénomène de réfraction peut s'avérer gênant pour une autre raison. Il peut en effet\* conduire à une dégradation de la fibre si la gaine, ou le revêtement plastique protecteur sont absorbants dans l'ultraviolet.

---

\* L'énergie réfractée se propage dans la gaine et peut subir, à son tour, une réfraction à l'interface gaine-revêtement si l'indice de ce dernier est inférieur à l'indice de gaine.

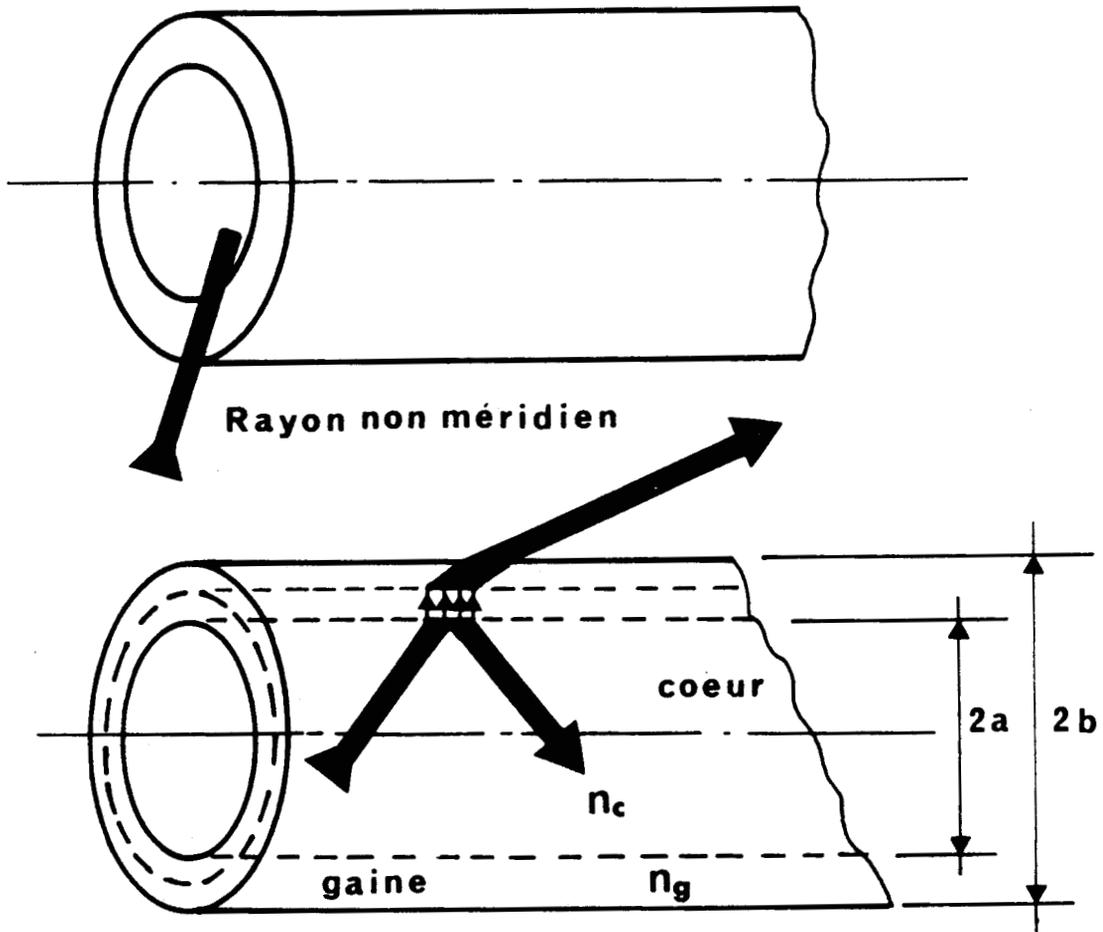
Nature des rayons	Conditions sur $\theta_0$	Conditions sur $\phi_0$
Rayons guidés (méridiens ou non-méridiens)	$\theta_0 < \theta_{0c}$	Aucune condition
Rayons guidés à fuite (non-méridiens)	$\theta_{0c} < \theta_0 < \theta_M$	$1 > \sin \phi_0 > \frac{a}{r_0} \sqrt{1 - \frac{\sin^2 \theta_{0c}}{\sin^2 \theta_0}}$
Rayons réfractés (méridiens ou non-méridiens)	$\frac{\pi}{2} > \theta_0 > \theta_M$ $\theta_M > \theta_0 > \theta_{0c}$	Aucune condition $0 < \sin \phi_0 < \frac{a}{r_0} \sqrt{1 - \frac{\sin^2 \theta_{0c}}{\sin^2 \theta_0}}$

Tableau I.1- Nature des rayons couplés dans une fibre à saut selon les conditions d'injection.

\* Les rayons guidés à fuite appartiennent à une classe particulière de rayons non-méridiens qui subissent la réflexion dans les conditions de réflexion totale, mais qui perdent une partie de leur énergie dans la gaine par un effet physique que l'on peut assimiler à un "effet tunnel". La description précise de ce phénomène est détaillée dans la référence [2]. Nous avons représenté schématiquement sur la figure (I.3) la propagation d'un rayon à fuite dans le coeur, la gaine et le revêtement de la fibre. Le rayon à fuite perd de l'énergie à l'interface coeur-gaine. Cette énergie se propage dans la gaine à la manière d'une onde évanescente, puis réapparaît sous forme d'un pinceau de rayons lumineux à une côte  $r > a$  dans la gaine.

Du point de vue de l'utilisateur, il apparaît clairement que les rayons à fuite peuvent, pour les mêmes raisons que les rayons réfractés, introduire des dégradations dans la fibre. Lorsque l'on couple un laser de forte puissance (continue ou pulsée) à une fibre, il est donc nécessaire de n'injecter dans la fibre que **des rayons guidés**. Nous avons représenté sur la figure (I.4) une vue de face de l'extrémité d'une fibre à saut d'indice. Les cercles tracés sur cette figure correspondent à une vue de face de cônes de révolution d'angle au sommet  $\theta_{0c}$  constant, et d'axes parallèles à celui de la fibre. Les cônes sont représentés pour différentes positions du point d'injection des rayons. La trace des cônes d'acceptance des rayons guidés à fuite est représentée par les parties hachurées comprises entre les cercles et les ellipses\*. La figure (I.4) montre que, dans une fibre à saut, il est possible d'injecter des

-----  
\* On peut noter que les cônes représentés sur la figure (I.4) correspondent à  $r_0 < a \cos \theta_{0c}$ . Si  $r_0 > a \cos \theta_{0c}$ , les ellipses doivent être remplacées par des hyperboles [6].



### Fibre à saut

Figure I.3 - Propagation de rayons non-méridiens à fuite dans le coeur, la gaine et le revêtement de fibres ( $n_{\text{revêtement}} < n_g$ ).

rayons guidés en tout point du coeur de la fibre sans coupler de rayons guidés à fuite ou de rayons réfractés. Il suffit de respecter pour cela la condition  $\theta_0 < \theta_{0c}$ .

**I.A.1.3 - Evolution des paramètres d'une impulsion ultraviolette de faible puissance au cours de la propagation dans la fibre multimode à saut d'indice supposée idéale et parfaitement rectiligne.**

On suppose que la fibre de longueur  $L$  ( $L$  de l'ordre de quelques mètres) ne se trouve soumise à aucune contrainte. Les matériaux constituant la fibre sont parfaitement homogènes à l'échelle macroscopique. Le coeur et la gaine sont parfaitement cylindriques. Une telle fibre peut être désignée sous le vocable de fibre idéale parfaitement rectiligne. Bien que ce modèle simplifié ne constitue qu'une première approche de la réalité expérimentale, son étude se révèle utile car elle permet de préciser quels sont les paramètres caractéristiques de l'émission laser incidente susceptibles d'être modifiés par la propagation dans la fibre.

**I.A.1-3-1 - Invariants de la propagation - Nombre de réflexions subies par un rayon lumineux guidé en fonction des conditions d'injection**

La trajectoire d'un rayon guidé injecté au point  $I(r_0)$  selon les angles  $\theta_0$  et  $\varnothing_0$  est constituée de segments de longueurs égales qui se déduisent les uns des autres par une translation  $t_z$  comptée le long de l'axe  $\vec{Oz}$  de la fibre, et par une rotation  $\gamma_z$  autour de l'axe  $\vec{Oz}$  (figure (I.1.a)).

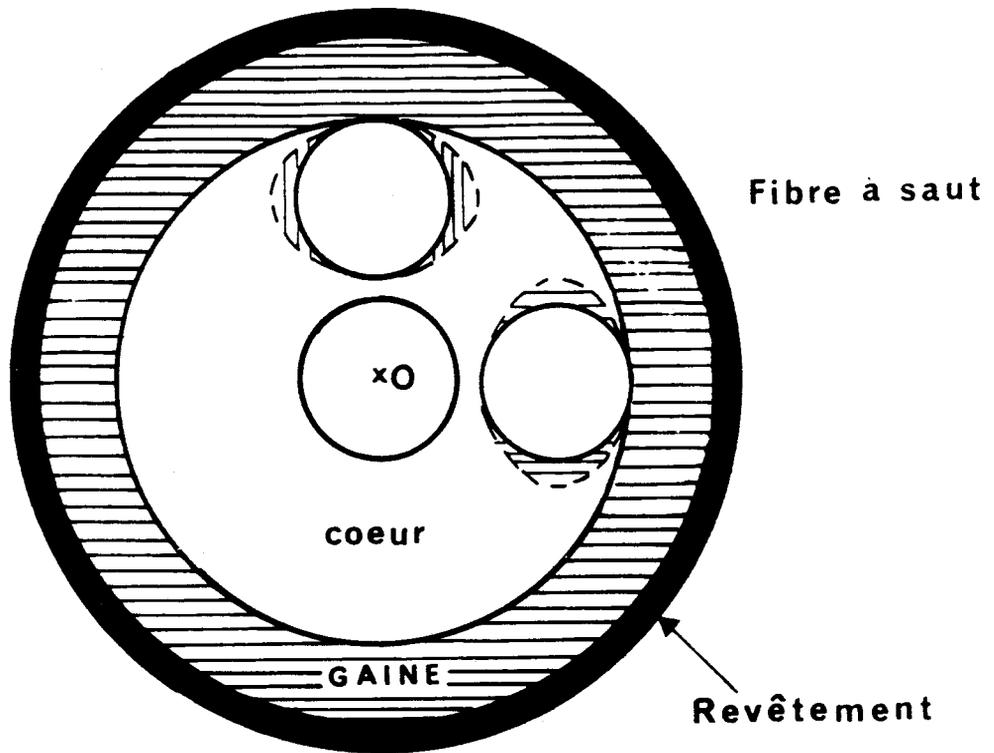


Figure I.4 - Vue de face des cones d'acceptance des rayons guidés (cercle) et des rayons guidés à fuite (partie hachurée comprise entre cercle et ellipse).

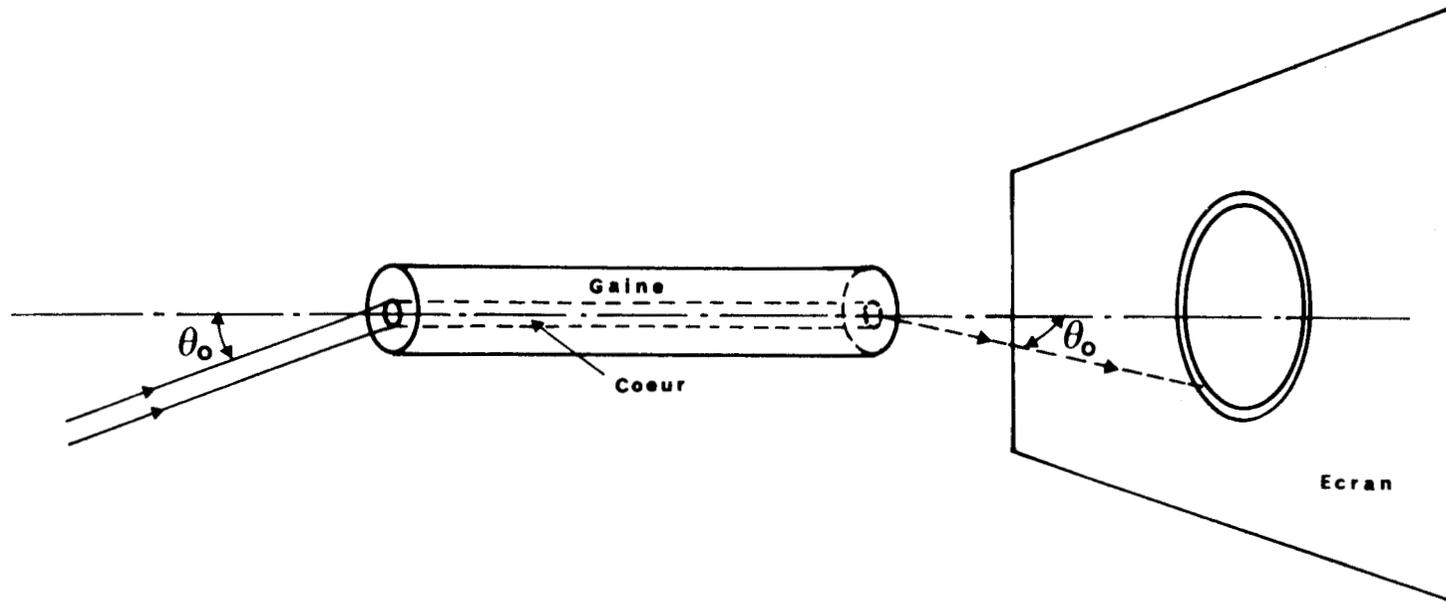


Figure I.5 - Mise en évidence de la conservation de l'angle  $\theta$ . Le coeur de la fibre rectiligne est uniformément éclairé par un faisceau de lumière parallèle faisant l'angle  $\theta_0$  avec l'axe  $\vec{Oz}$ . On observe sur un écran placé en sortie de la fibre une couronne lumineuse circulaire. Les rayons lumineux forment un cône d'angle au sommet  $\theta_0$ .

Comme le montre la figure (I.5), l'angle  $\theta$  que fait le rayon avec l'axe de la fibre se conserve au cours de la propagation. Cette invariance repose sur l'hypothèse supplémentaire selon laquelle la fibre idéale est parfaitement homogène à l'échelle microscopique. Les rayons lumineux guidés n'échangent donc pas d'énergie entre eux et se propagent dans la fibre indépendamment les uns des autres. L'angle  $\theta$  se calcule en fonction de l'angle  $\theta_0$  à l'aide de la relation (I.6). Les rayons se propageant dans la fibre sous l'angle  $\theta$  émergent sous l'angle  $\theta_0$  et forment donc sur l'écran de la figure (I.5) une couronne circulaire.

$$(I.6) \quad n_c \sin \theta = n_0 \sin \theta_0 \quad \theta_0 \leq \theta_{0c}$$

La projection du rayon sur la face d'entrée de la fibre est tangente à un cercle de rayon  $r_0 \cdot \sin \varnothing_0$  centré sur 0. La quantité  $\bar{\ell}$ , définie par la relation (I.7), constitue également un invariant de la propagation (figure (I.1)).

$$(I.7) \quad \begin{aligned} \bar{\ell} &= r \cdot \sin \varnothing = r_0 \cdot \sin \varnothing_0 \\ &= a \cdot \sin \varnothing_{\min} \end{aligned}$$

$$(I.8) \quad t_z = \frac{2a \cos \theta}{\sin \theta} \cdot \cos \varnothing_{\min} = \frac{2 \cos \theta}{\sin \theta} \sqrt{a^2 - r_0^2 \sin^2 \theta_0}$$

Le trajet effectif  $L_{eff}$ , suivi par le rayon entre 2 réflexions s'exprime par la relation (I.9) :

$$(I.9) \quad L_{eff} = \frac{t_z}{\cos \theta} = \frac{2}{\sin \theta} \sqrt{a^2 - r_0^2 \sin^2 \varnothing_0}$$

et le nombre  $N_r$  de réflexions subies par le rayon lors de sa traversée de la fibre de longueur  $L$  est donné par (I.10) :

$$(I.10) \quad N_r = \frac{L}{t_z} = \frac{\operatorname{tg} \theta}{2 \sqrt{a^2 - r_0^2 \sin^2 \theta_0}} \cdot L$$

Le temps mis par le rayon pour parcourir la fibre est égal à :

$$(I.11) \quad \Delta t = \frac{n_1}{c} \cdot N_r \cdot L_{\text{eff}} = \frac{n_1}{c} \cdot \frac{L}{\cos \theta}$$

Les relations (I.9), (I.10) et (I.11) montrent que le trajet effectif suivi par un rayon, le nombre de réflexions subies par ce rayon à l'interface coeur-gaine, et son temps de transit dans la fibre dépendent des conditions initiales d'injection de ce rayon dans la fibre.

#### I.A.1-3-2 - Influence de la dispersion chromatique et de la dispersion intermodale sur la largeur temporelle de l'impulsion.

La forme temporelle et la durée d'une impulsion injectée dans la fibre peuvent se modifier au cours de la propagation dans la fibre en raison principalement des phénomènes **de dispersion chromatique et de dispersion intermodale** [7]. Nous montrerons dans la deuxième partie de ce chapitre que l'émission du laser excimère à XeCl est constituée de deux raies séparées de 0,25 nm. Chaque raie présente une largeur spectrale  $\Delta\lambda \simeq 0,02$  nm. L'hypothèse de monochromaticité implicitement adoptée pour calculer le temps  $\Delta t$  de traversée de la fibre n'est manifestement pas vérifiée. Il est plus correct dans ces conditions d'introduire le temps de groupe, défini comme le temps mis par l'enveloppe de l'impulsion lumineuse pour parcourir la fibre. On suppose de façon simplifiée que l'impulsion se propage le long de l'axe  $\vec{Oz}$  de la fibre ( $\theta = 0$ ).

---

$$A_1 = 0,6961633$$

$$A_2 = 0,4079426$$

$$A_3 = 0,8974794$$

$$B_1 = 0,0684043$$

$$B_2 = 0,1162414$$

$$B_3 = 9,896161$$

---

(la longueur d'onde  $\lambda$   
est exprimée en  $\mu\text{m}$ )

Tableau I.2 - Coefficients de Sellmeier de  
la silice pure, à 20°C [8].

La variation  $\Delta t_{D,C}$  du temps de groupe en fonction de la longueur d'onde  $\lambda$  (dispersion chromatique) peut s'exprimer de façon approchée sous la forme [7] :

$$(I.12) \quad \Delta t_{D,C} = \Delta t_{\lambda} - \Delta t_{\lambda_0} = - (\lambda - \lambda_0) \cdot \frac{\lambda_0}{C} \cdot L \left( \frac{d^2 n(\lambda)}{d\lambda^2} \right)_{\lambda=\lambda_0}$$

L'indice de réfraction  $n(\lambda)$  de la silice est fonction de la longueur d'onde excitatrice selon un développement de type Sellmeier :

$$(I.13) \quad n(\lambda) = 1 + \left( \sum_{i=1} \frac{A_i \cdot \lambda^2}{\lambda^2 - B_i^2} \right)^{1/2}$$

Les coefficients  $A_i$  et  $B_i$ , déterminés par I.H. Malitson [8], sont rassemblés dans le tableau (I.2).

L'application numérique effectuée à partir des relations (I.12) et (I.13), et correspondant à nos conditions expérimentales ( $L = 10$  m,  $\lambda = 0,308$   $\mu\text{m}$ ,  $\lambda - \lambda_0 \simeq 0,25$  nm), montre que la variation  $\Delta t_{D,C}$  est égale à environ  $4 \cdot 10^{-11}$  s, valeur négligeable devant la durée  $\tau$  de l'impulsion délivrée par le laser à XeCl ( $\tau = 2 \cdot 10^{-8}$  s).

La dispersion intermodale provient du fait que le temps de groupe est fonction de l'inclinaison  $\theta$  du rayon lumineux guidé par rapport à l'axe de la fibre. La limite supérieure de la dispersion des temps de groupe  $\Delta t_{D,i}$  s'obtient en supposant que tous les rayons guidés de la fibre (vérifiant  $\theta \leq \theta_c$ ) sont excités :

$$(I.14) \quad \Delta t_{D,i} = \Delta t_{\theta=\theta_c} - \Delta t_{\theta=0} \simeq \frac{L}{C} \cdot \frac{ON^2}{2n_1}$$

Avec les valeurs numériques précédentes, la limite supérieure de l'élargissement susceptible d'être provoqué par dispersion intermodale ( $\Delta t_{p_i} = 0,7$  ns) s'avère là encore négligeable devant la durée d'impulsion du laser excimère à XeCl ( $\tau = 20$  ns).

**I.A.1-3-3 - Présentation des mécanismes de pertes linéaires résultant de la propagation de rayons guidés dans la fibre**

On considère un pinceau de rayons parallèles guidés se propageant selon un angle  $\theta$  avec l'axe de la fibre, supposée idéale. Le coeur de la fibre est constituée par de la silice pure. La gaine est réalisée en silice dopée ou en un matériau de type silicone ou polymère. L'énergie transportée par le pinceau lumineux s'atténue tout au long de la propagation en raison principalement de trois mécanismes de pertes :

- les pertes résultant de la diffusion linéaire :  
Diffusion Rayleigh ;
- les pertes provoquées par l'absorption dans le coeur de la fibre ;
- les pertes induites par l'absorption de la gaine de la fibre.

**I.A.1.3.3.1. Pertes par diffusion Rayleigh**  
-----

On suppose que la puissance optique injectée dans la fibre reste suffisamment faible pour ne pas induire de diffusion stimulée (Raman ou Brillouin). Les pertes par diffusion proviennent alors essentiellement d'un phénomène de

diffusion linéaire provoquée par les fluctuations de densité ou de composition du matériau constituant le coeur de la fibre. Les fluctuations thermiques, inhérentes à la fusion de la silice lors de la fabrication de la fibre, se trouvent en effet figées par la trempe du verre de 2000°C à la température ambiante [9]. Dans le cas des fibres à coeur en silice, on peut négliger les fluctuations d'indice résultant des fluctuations de composition du matériau, puisque la silice utilisée est très pure. Si l'on suppose que la taille des inhomogénéités induites par les fluctuations de densité reste inférieure à  $\lambda/100$ , c'est-à-dire à  $\approx 3$  nm, le rayonnement diffusé est quasi-isotrope \* et son intensité varie comme  $\lambda^{-4}$  : il s'agit de diffusion Rayleigh. On ne peut plus supposer que les rayons lumineux se propagent indépendamment les uns des autres. La diffusion se manifeste en particulier par un échange d'énergie des rayons guidés vers les rayons réfractés et les rayons guidés à fuite. De ce fait, cette énergie se trouve perdue en partie en sortie de fibre. On estime les pertes par diffusion Rayleigh à l'aide du coefficient d'atténuation  $\alpha_{Ray}$  [10] :

$$(I.15) \quad \alpha_{Ray} = \frac{8 \pi^3}{3 \lambda^4} \cdot (n^2(\lambda) - 1)^2 \cdot \beta \cdot k_B \cdot T_v$$

Dans l'expression (I.15),  $\beta$  désigne le coefficient de compressibilité isotherme de la silice ( $\beta = 7 \cdot 10^{-11} \text{ mkg}^{-1} \text{ s}^2$  [10]),  $T_v$  la température de vitrification ( $T_v = 1400$  K),  $k_B$  la constante de Boltzman. La puissance transportée par un pinceau de lumière parallèle se propageant sous un angle  $\theta$  s'exprime en tout point  $z$  de l'axe  $\vec{Oz}$  de la fibre par la

---

\* Le rayonnement diffusé est dans ce cas sensiblement deux fois plus intense dans la direction de propagation du rayon que dans la direction perpendiculaire [47].

Longueur d'onde $\lambda$ (nm)	Coefficient d'atténuation $\alpha_R$		Transmission $T = \frac{P(z=10 \text{ m})}{P(z=0)}$
	dB/km	$\text{m}^{-1}$	
193	720	0,1659	0,19
249	209	0,0480	0,62
308	79	0,0181	0,83
351	45	0,0102	0,90

Tableau I.3 - Coefficients d'atténuation Rayleigh d'une fibre en silice, à différentes longueurs d'onde ultraviolettes ; atténuation pour une longueur de propagation 10 m.

relation (I.16).

$$(I.16) P_p(z) = P_p(z=0) \cdot \exp(-\alpha_{Ray} z/\cos \theta) \quad \theta < \theta_c$$

Les valeurs numériques du coefficient  $\alpha_{Ray}$ , calculées à différentes longueurs d'onde d'émission des lasers excimères sont rassemblées dans le tableau I.3. A la longueur d'onde  $\lambda = 308 \text{ nm}$ , et pour une longueur de propagation  $\ell = 10 \text{ m}$  ( $\ell = z/\cos \theta$ ) l'atténuation du faisceau, due à la diffusion Rayleigh, est égale à environ 17%.

#### **I.1.3.3.2 Pertes par absorption linéaire dans le coeur ----- de fibre -----**

L'absorption ultraviolette dans les fibres en silice pure provient de transitions intenses de longueurs d'onde inférieures à 140 nm [11], et de bandes d'absorption plus faibles localisées respectivement à 165 nm, 245 nm et 275 nm [12]. L'origine de toutes les bandes peu intenses n'est pas encore élucidée clairement [12]. Il semble cependant que la plupart d'entre elles proviennent de défauts provoqués dans la structure de la fibre lors de la phase de consolidation de la préforme. Le coefficient  $\alpha_a$  de l'atténuation induite à 308 nm par ces bandes varie entre 10 dB/km et 3 dB/km selon les conditions de fabrication [12].

L'atténuation de la puissance transportée par un pinceau de lumière parallèle se propageant dans la fibre selon l'angle  $\theta$  se déduit de l'expression (I.17)

$$(I.17) P_p(z) = P_p(z=0) \cdot \exp(-\alpha_a z/\cos \theta) \quad \theta < \theta_c$$

Pour une longueur de propagation  $\ell = 10 \text{ m}$  ( $\ell = z/\cos \theta$ ), l'atténuation induite par l'absorption dans le coeur de la fibre s'élève à environ 2%, et peut donc être négligée si on la compare aux pertes induites par la diffusion Rayleigh.

### I.1.3.3.3 Pertes provoquées par l'absorption dans la gaine

---

Dans une fibre à coeur en silice, le coefficient d'absorption de la gaine est en général très supérieur à celui du coeur de fibre. En effet, la gaine de ces fibres est constituée, soit par du silicone (fibres PCS), soit par un polymère (fibre HCS), soit par de la silice dopée (fibre STU). Ainsi, le silicone présente une forte absorption dans l'UV (25 000 dB/km à 0.4  $\mu\text{m}$  [13]). L'adjonction de dopants dans la silice permet d'en réduire l'indice, mais augmente son absorption. Pour rendre compte de l'effet d'absorption de la gaine sur un pinceau de rayons guidés dans le coeur, on néglige l'absorption dans le coeur de fibre (indice du coeur réel), et on exprime l'indice de la gaine  $n_g$  sous forme complexe :

$$(I.18) \quad n_g = n_g^r + j n_g^i$$

Le coefficient d'absorption  $\alpha_g$  de la gaine (en puissance optique) prend la forme (I.19)

$$(I.19) \quad \alpha_g = \frac{4 \pi}{\lambda} n_g^i$$

L'absorption dans la gaine se traduit par une atténuation de l'onde évanescente prenant naissance dans le milieu de bas indice ( $n_g$ ) lors de la réflexion du faisceau incident sur le dioptre coeur transparent-gaine absorbante. On suppose que l'on peut étendre le domaine de validité du traitement classique de la réflexion sur un dioptre plan séparant deux milieux transparents. On assimile un petit pinceau de lumière parallèle à une onde quasi-plane, et on introduit la relation (I.18) dans les relations de Fresnel permettant de calculer le coefficient de réflexion [13]. Dans l'approximation du guidage faible ( $n_{\text{coeur}} \simeq n_{\text{gaine}}^r$ ), les coeffi-

cients de réflexion complexe en amplitude pour un mode TE et pour un mode TM sont sensiblement égaux :

$$(I.20) \quad \hat{r} = \hat{r}_{\parallel} = \hat{r}_{\perp}$$

Ce calcul analytique permet d'établir que le coefficient de réflexion en intensité  $R_{(\theta, \varnothing)}$ , ( $R = \hat{r} \cdot \hat{r}^*$ ), est inférieur à 1 [13]. Le pinceau de rayons lumineux perd de l'énergie à chaque réflexion en raison de l'absorption de la gaine. En comptant le nombre  $N_r$  de réflexions par unité de longueur de fibre, on évalue la puissance optique perdue sur un tronçon de fibre de longueur  $dz$  comptée le long de l'axe de la fibre [2] :

$$(I.21) \quad dP_p(z) = P_p(z) \cdot N_r \cdot (1-R) \cdot dz$$

On peut de façon équivalente définir les pertes à la réflexion en introduisant un coefficient de perte distribuée  $\gamma_g$  :

$$(I.22) \quad \gamma_g = N_r \cdot (1-R) = - \frac{dP_p(z)}{P_p(z) dz}$$

$$P_p(z) = P_p(z=0) \cdot e^{-\gamma_g \cdot z}$$

L'expression de  $\gamma_g$  peut se calculer en fonction des paramètres de la propagation [2] :

$$(I.23) \quad \gamma_g = \frac{\alpha_g}{V} \cdot \left( \frac{\theta}{\theta_c} \right)^2 \cdot \left( \frac{1}{1 - \left( \frac{\theta}{\theta_c} \right)^2 \cdot \cos^2 \varnothing_{\min}} \right)^{1/2} \quad \theta < \theta_c$$

L'expression (I.23) est correcte à condition que les hypothèses restrictives énoncées précédemment soient vérifiées (faible guidage, et  $n_g^i \ll n_g^r$ ). D'après (I.23), l'atténuation par réflexion sur la gaine est donc maximale pour les rayons

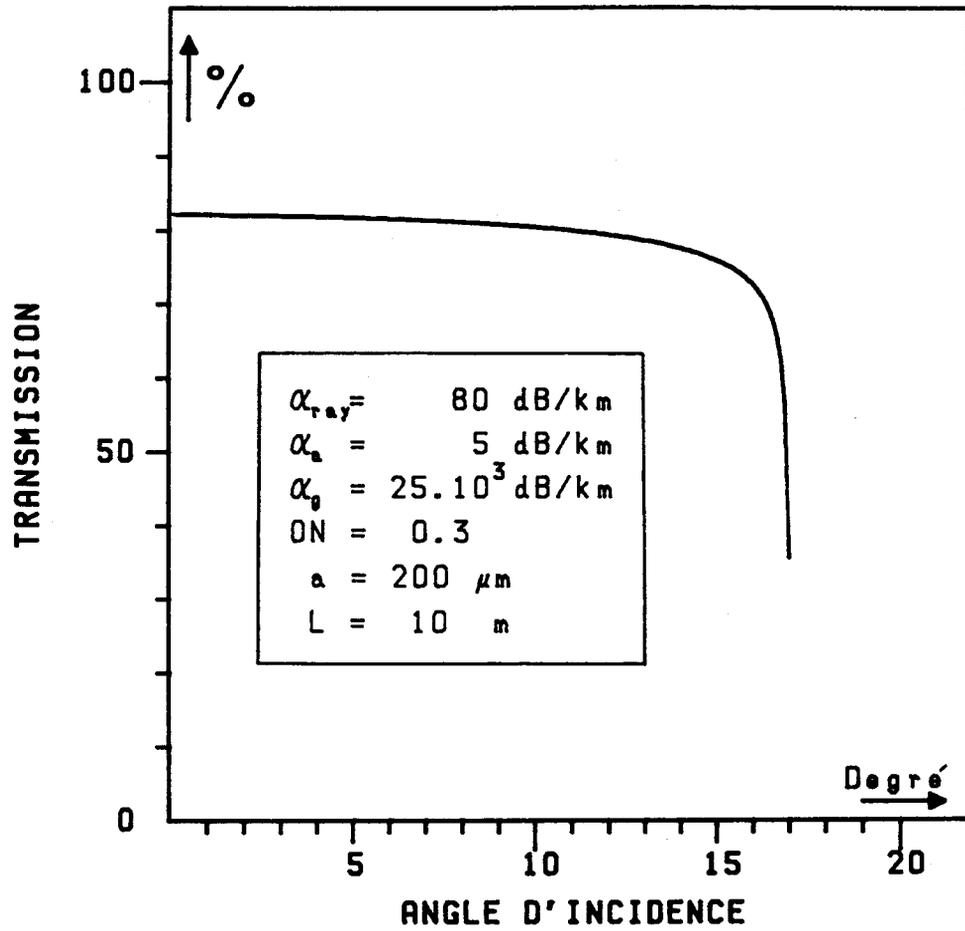


Figure I.6 - Evolution du facteur de transmission d'un pinceau de rayons parallèles méridiens en fonction de l'angle d'incidence sur le coeur de fibre.

guidés méridiens ( $\varnothing_{min} = 0$ ) très inclinés ( $\theta \simeq \theta_c$ ) par rapport à l'axe de la fibre.

#### I.A.1.3.3.4 Pertes prenant en compte l'ensemble des mécanismes

-----

Il est dès lors possible de définir le coefficient d'atténuation totale  $\alpha$  subie par un pinceau de rayons parallèles guidés dans une fibre selon l'angle  $\theta$  par rapport à l'axe. Nous avons représenté sur la figure (I.6) la variation en fonction de  $\theta$  de la transmission d'une fibre pour laquelle nous admettons que le coefficient  $\alpha$  est déterminé en première approximation par la relation (I.24) [2] :

$$(I.24) \quad \alpha = \alpha_{ray} / \cos \theta + \alpha_a / \cos \theta + \gamma_g(\theta)$$
$$P_p(z) = P_p(0) \cdot \exp(-\alpha z)$$

La courbe de la figure (I.6) a été tracée à partir des paramètres de fibre suivants : diamètre de coeur  $2a = 400 \mu\text{m}$ ,  $ON = 0.3$ ,  $\alpha_g = 25 \cdot 10^3 \text{ dB/km}$ , et pour une propagation  $L$  égale à  $10 \text{ m}$ . On peut remarquer l'importance grandissante de l'atténuation à mesure que l'angle d'incidence du pinceau de rayons parallèles s'approche de l'angle critique (ici  $\theta_{oc} = 17^\circ 27'$ ).

La loi de dépendance en  $\theta$  du coefficient d'atténuation  $\alpha$  explique que la détermination expérimentale précise des trois facteurs d'atténuation se révèle compliquée. Il n'est, en effet, pas possible qu'un pinceau de lumière strictement parallèle puisse se propager dans la fibre, si bien que le résultat de la mesure résulte de la prise en compte des pertes et des gains subis par les différents rayons guidés. Dans la pratique, le facteur d'atténuation d'une fibre est spécifié par le constructeur à différentes longueurs d'onde d'utilisation. Ces valeurs tiennent compte des pertes par absorption et par diffusion. Elles sont mesurées sur des fibres de grande longueur pour lesquelles on admet que l'équilibre des modes est atteint, excitées par des sources

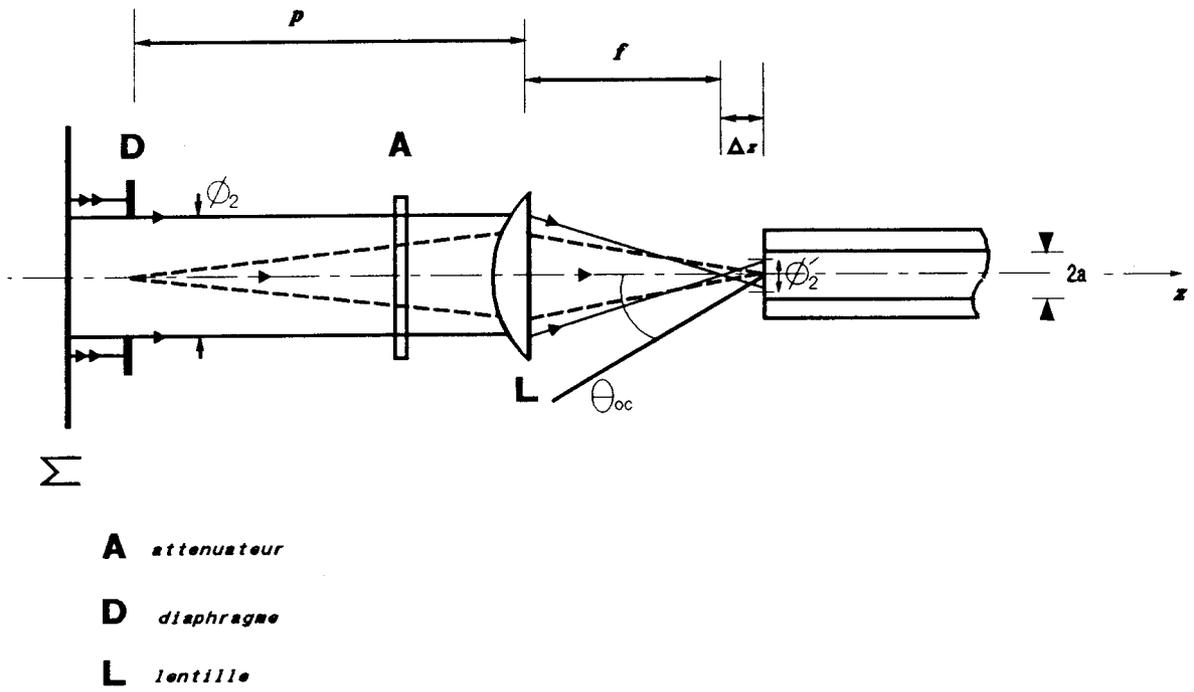


Figure I.7 - Schéma du montage optique utilisé pour coupler le faisceau laser dans la fibre.

lumineuses de faible puissance. Ces conditions ne s'appliquent pas aux fibres médicales courtes. Dans une fibre courte, les pertes par transmission dépendent des conditions d'injection du faisceau laser dans la fibre.

I.1-3-4 - Effets de la propagation sur la distribution des énergies en sortie de fibre dans les champs proche et lointain

Lors d'une transmission d'énergie laser par fibre, il est important de déterminer la distribution radiale de l'énergie obtenue sur la face de sortie de la fibre (champ proche) et d'autre part la distribution angulaire du rayonnement observée à plusieurs centimètres de cette même face (champ lointain). Des considérations simples d'optique géométrique permettent de prévoir les limites géométriques des distributions d'énergie, à condition de supposer que la fibre idéale est parfaitement **rectiligne et non diffusante**, et à condition de connaître les conditions d'excitation de la fibre. Dans la pratique, la fibre est diffusante et se trouve plus ou moins courbée. L'hypothèse d'indépendance des rayons lumineux n'est plus strictement vérifiée. Les écarts entre théorie et observation sont fonction de la nature de la fibre, des courbures et des contraintes imposées à la fibre. Ces écarts augmentent avec la longueur de la fibre. Les fibres à usage médical sont courtes, si bien que la prévision théorique des distributions d'énergie constitue une **première approche**, utile, de la réalité expérimentale.

On suppose que le couplage du faisceau laser à la fibre est réalisé à l'aide du montage de la figure (I.7). Le faisceau issu du laser à excimère est focalisé à l'aide d'une lentille L selon un spot de forme elliptique se formant dans le plan focal de la lentille. La forme ellip-

tique du spot résulte de ce que le faisceau laser ne présente pas la symétrie de révolution autour de son axe de propagation. La fibre est placée à quelques millimètres derrière le plan focal de la lentille et son axe est aligné avec celui du faisceau laser. Un diaphragme circulaire d'ouverture ajustable  $\varnothing_2$  est placé sur le parcours du faisceau incident. La lentille L forme l'image  $\varnothing'_2$  de  $\varnothing_2$  sur la face d'entrée de la fibre. L'ouverture de  $\varnothing_2$  est réglée de façon à obtenir sensiblement  $\varnothing'_2 = 1.6 a$ .

Un atténuateur A permet d'ajuster la valeur de la puissance optique incidente sur le coeur de la fibre. La distance focale  $f$  de la lentille L est choisie de façon à ce que les angles d'incidence des rayons lumineux sur le coeur de la fibre soient inférieurs à  $\theta_{0c}$  :

$$(I.25) \quad f > \frac{\varnothing_2}{2 \operatorname{tg} \theta_{0c}}$$

La conservation de l'angle  $\theta_0$  implique que la distribution d'énergie en sortie de la fibre se répartit dans un cône de révolution d'angle  $\theta_{0\max}$  égal à  $\varnothing_2/f$ . Par contre, comme le montre la relation (I.7), la totalité de la section du coeur de fibre est éclairée en sortie. Les caractéristiques géométriques du faisceau incident ne sont donc pas conservées après propagation dans la fibre.

#### **I.A.1-4 - Pertes introduites par les réflexions des rayons lumineux sur les faces d'entrée et de sortie de fibre.**

Lors de l'injection du faisceau dans la fibre, une fraction de l'énergie incidente est perdue par réflexion sur le dioptre air-coeur. De même, en sortie de fibre, une fraction de l'énergie guidée dans la fibre est perdue par réflexion.

xion sur le dioptre coeur-air. Le calcul des pertes, en entrée de fibre (et en sortie), doit tenir compte du fait que les coefficients de réflexion  $\rho(\theta_0)^*$  des rayons dépendent des angles d'incidence  $\theta_0$  des rayons sur les dioptres :

$$(I.26) \quad \rho(\theta_0) = \frac{1}{2} (|r_{TE}|^2 + |r_{TM}|^2)$$

Dans (I.26),  $r_{TE}$  et  $r_{TM}$  désignent respectivement les coefficients de réflexion en amplitude des composantes transverse électrique et transverse magnétique du champ optique. L'expression (I.26) est correcte sous l'hypothèse que le degré de polarisation du faisceau incident est voisin de zéro. Le coefficient  $\rho(\theta_0)$  peut encore s'exprimer en fonction des conditions d'injection sous la forme (I.27)

$$(I.27) \quad \left\{ \begin{array}{l} \rho(\theta_0) = \frac{1}{2} \left\{ \frac{\text{tg}^2(\theta_0 - \theta)}{\text{tg}^2(\theta_0 + \theta)} + \frac{\sin^2(\theta_0 - \theta)}{\sin^2(\theta_0 + \theta)} \right\} \\ \sin \theta_0 = n_c \sin \theta \end{array} \right.$$

L'évolution de  $\rho$  en fonction de  $\theta_0$  est représentée sur la figure (I.8) dans le cas d'un dioptre air-silice éclairé par un faisceau de lumière parallèle émis à  $\lambda = 308 \text{ nm}$  ( $n_0 \simeq 1$ ,  $n_c = 1.485$ ). L'ordre de grandeur de l'angle maximum d'acceptance  $\theta_{0c}$  des fibres se situe vers  $28^\circ$  (cas d'une fibre d'ouverture numérique 0.48). Comme le montre la figure (I.8),  $\rho$  évolue peu en fonction de  $\theta_0$  dans le domaine  $0 \leq \theta_0 \leq 25^\circ$ , si bien que l'on peut considérer avec une bonne approximation que tous les pinceaux de rayons lumineux subissent la même atténuation quel que soit  $\theta_0$ . La perte totale par réflexion sur les faces d'entrée et de sortie de la fibre, s'élève à environ 7%, sous les hypothèses énoncées.

---

\* Dans ce calcul on suppose que les relations de Fresnel sont légitimes.



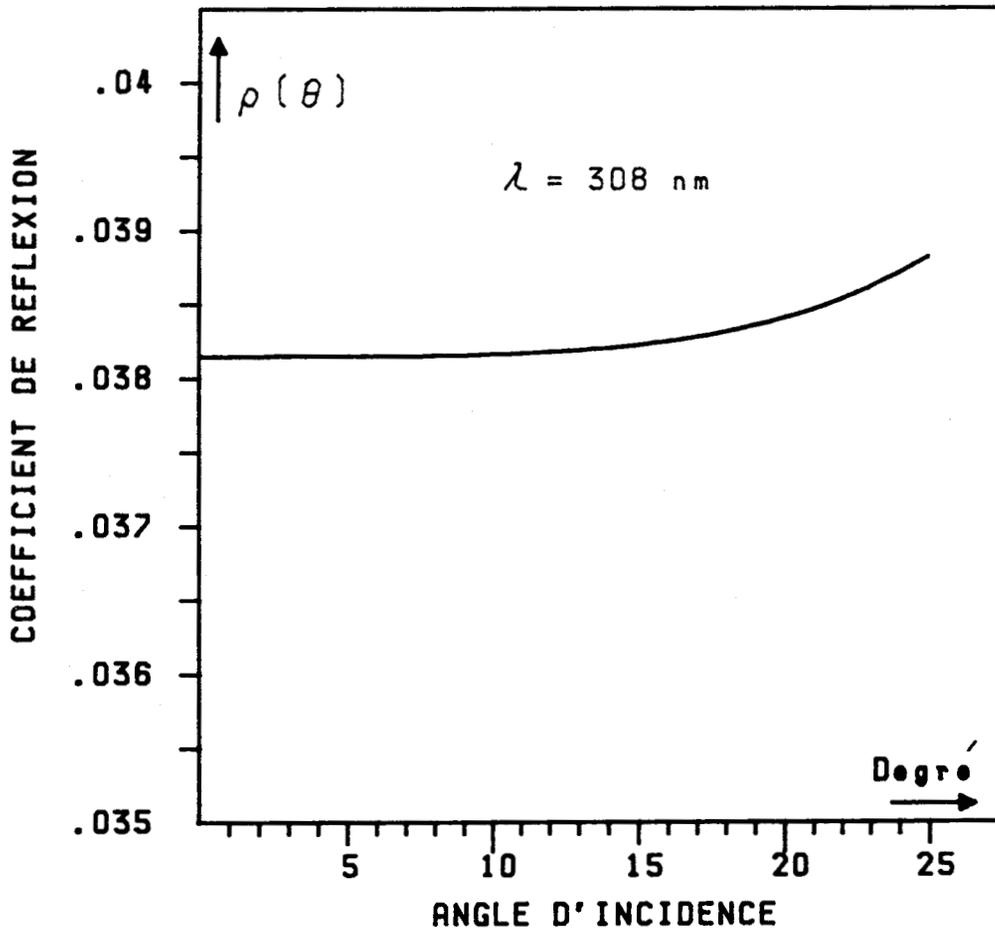


Figure I.8 - Variation du coefficient de réflexion  $\rho$  en fonction de l'angle d'incidence  $\theta_0$ . (cas d'un dioptre silice-air éclairé par un faisceau de lumière parallèle de longueur d'onde  $\lambda = 308 \text{ nm}$ ).

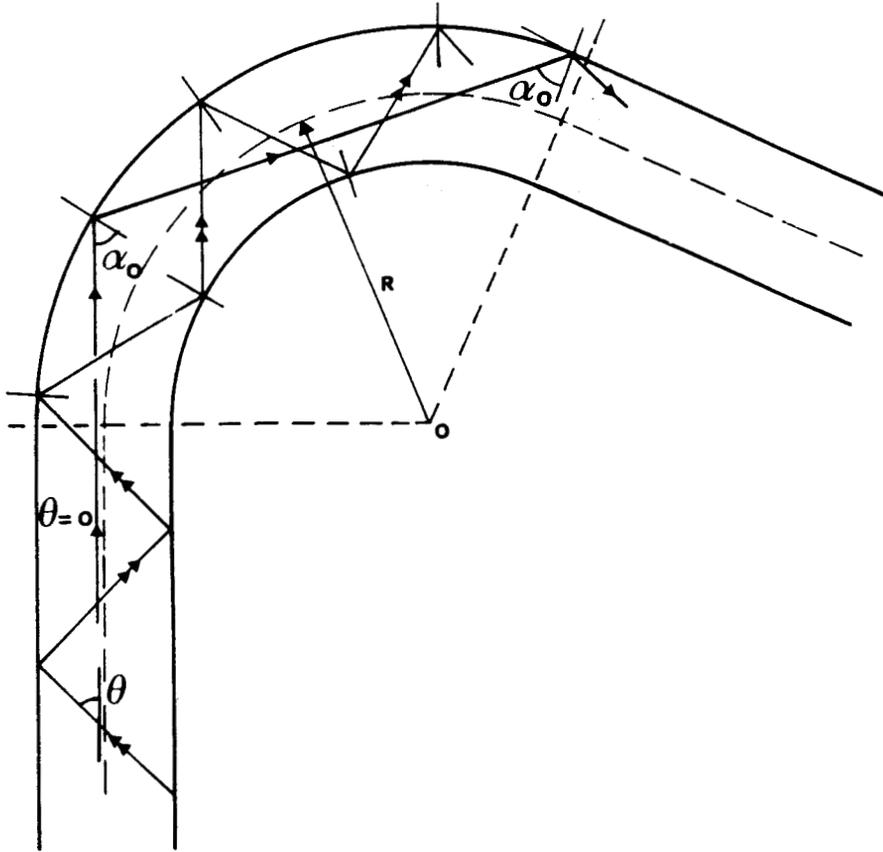


Figure I.9 - Trajet de rayons se propageant dans le plan méridien contenant le centre de courbure .

### **I.A.1-5 - Effet des écarts à la rectitude des fibres.**

Nous avons supposé jusqu'à présent que les fibres étaient maintenues rectilignes. Il est clair que cette hypothèse ne se trouve pas vérifiée dans une application médicale.

Si la fibre est courbée, les quantités  $\theta$  et  $\bar{\ell}$  définies par les relations (I.6) et (I.7) ne peuvent plus être considérées comme des invariants de la propagation. La figure (I.9) représente la vue en coupe d'une fibre soumise à une courbure de rayon  $R$ , réalisée selon un plan méridien contenant le centre de courbure  $O$  et l'axe de la fibre. Des rayons lumineux se propagent dans la fibre sous différentes inclinaisons par rapport à l'axe de la fibre. Comme le montre la figure (I.9), un rayon lumineux injecté dans la fibre parallèlement à l'axe sort de la partie courbée de la fibre (si la courbure de la fibre est suffisamment faible pour que le rayon ne soit pas réfracté), selon une inclinaison par rapport à l'axe différente de  $\theta = 0$ . Le diagramme de rayonnement en champ lointain peut donc être modifié par la courbure de la fibre. Les rayons lumineux se répartissent en sortie de fibre dans un cône d'angle  $\theta_0$  de plus en plus grand et voisin de  $\theta_{0c}$  ( $\theta_0 < \theta_{0c}$ ), à mesure que la fibre est courbée.

On peut montrer [2], qu'il n'existe plus de rayons guidés dans les parties courbées de la fibre. Les seuls rayons qui s'y propagent sont, soit des rayons guidés à fuite, soit des rayons réfractés. L'énergie lumineuse s'échappe de la fibre dans la partie courbée car la réflexion totale se trouve frustrée par la courbure de fibre [2]. Le calcul théorique des pertes par courbure dans une fibre multimode peut être effectué en utilisant un modèle de

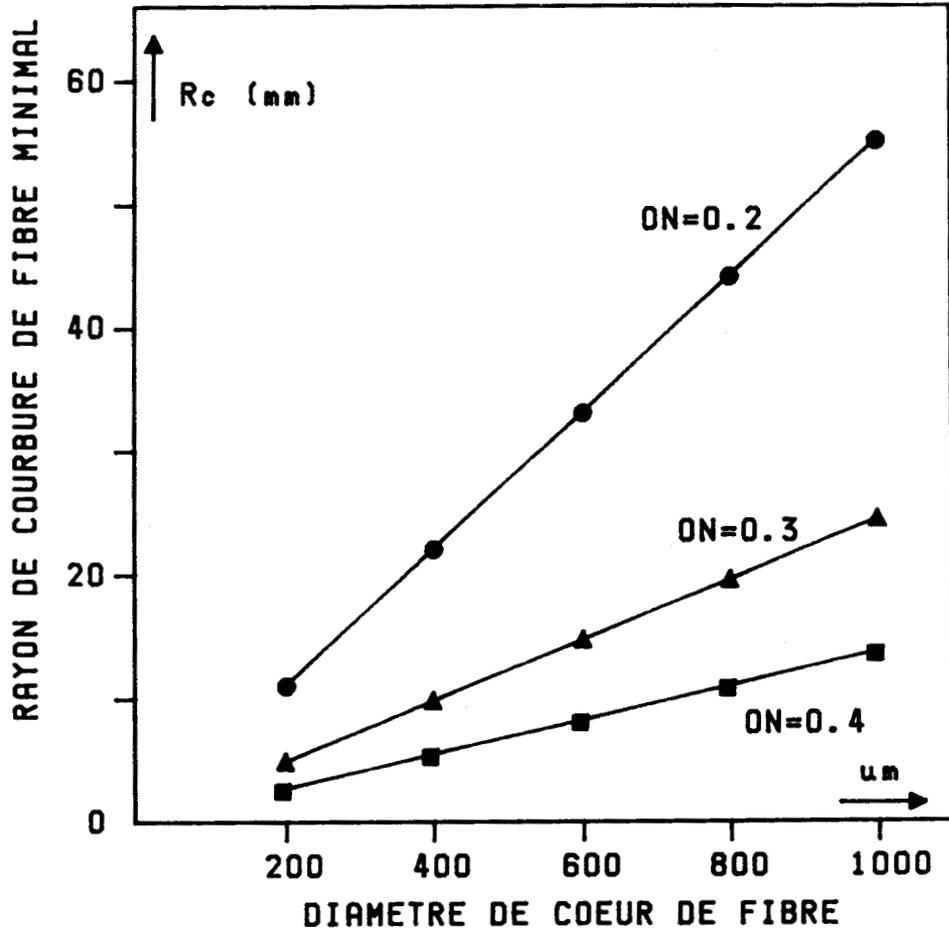


Figure I.10 - Variation du rayon de courbure de fibre minimal  $R_c$  en fonction du diamètre de cœur de fibre, pour différentes ouvertures numériques ( $\lambda = 308$  nm).

propagation à 3 dimensions dans lequel il faut prendre en compte des expressions analytiques des facteurs de réflexion généralisant les relations classiques de Fresnel [14]. Ces calculs aboutissent aux deux principales conclusions suivantes [14] :

→ (i) On peut considérer que, sous l'effet de la courbure, l'ouverture numérique d'une fibre optique diminue. On caractérise l'angle  $\theta_0^c$  d'acceptance de la fibre courbée par la relation semi-empirique (I.28) [15] :

$$(I.28) \quad \sin \theta_0^c = \sin \theta_{0c} \left( 1 - \frac{a n_c}{(n_c - n_g) R} \right)^{1/2}, \quad \theta_0^c < \theta_{0c}$$

→ Un rayon lumineux injecté selon un angle d'incidence  $\theta_0 > \theta_0^c$  dans la fibre soumise à la courbure de rayon  $R$  subira donc des pertes importantes. On peut définir de façon arbitraire une valeur limite  $R_c$  du rayon de courbure au delà de laquelle les pertes pourront être négligées ( $R \gg R_c$ ). L'ordre de grandeur de  $R_c$  est donné par la relation (I.29) :

$$(I.29) \quad R_c \simeq \frac{a \cdot n_c}{n_c - n_g} \simeq \frac{2an_c^2}{ON^2}$$

D'après (I.29), une fibre à saut est d'autant moins sensible aux pertes par courbure que son ouverture numérique est grande, et que le rayon du coeur est faible. La figure (I.10) montre l'évolution du rayon de courbure minimal  $R_c$  dans le cas de fibre à coeur de silice, en fonction du diamètre de coeur de fibres, et pour des valeurs d'ouverture numérique typiques.

→ (ii) Les pertes par courbure dépendent des conditions d'injection des rayons dans la fibre. Les rayons méridiens subissent la plus grande atténuation [2]. Un rayon couplé

dans la fibre sous un angle  $\theta$  voisin de  $\theta_{0c}$  sera très vite réfracté dans la gaine si l'on soumet la fibre initialement rectiligne à une courbure progressivement croissante. Un rayon incident sous un angle  $\theta_0$  voisin de zéro sera par contre faiblement atténué, à moins que la courbure ne devienne très importante.

### **I.A.2 - PROPAGATION D'UNE IMPULSION ULTRAVIOLETTE DE FORTE PUISSANCE DANS UNE FIBRE A SAUT**

Comme l'indique le tableau 1, les lasers à excimères peuvent délivrer des impulsions de puissance et d'énergie optique très élevées. Ils s'apparentent à des sources directionnelles (angle de divergence  $\approx 3$  mrd), à cohérence spatiale limitée. La section du faisceau en sortie du laser est rectangulaire, et la divergence verticale diffère de la divergence horizontale. La distribution d'énergie sur cette section est spatialement et temporellement inhomogène. Ces propriétés entraînent plusieurs conséquences :

- l'excitation d'une fibre par un laser à excimère présente des difficultés d'ordre pratique ;
- les puissances optiques couplées dans les fibres sont suffisamment importantes pour que l'apparition de non-linéarité optique dans le coeur de fibre puisse être envisagée.

#### **I.A.2-1 - Limitation de l'efficacité du couplage laser XeCl-fibre, introduite par des fractures optiques de fibre.**

On considère le schéma du montage optique représenté sur la figure (I.7). On peut définir l'efficacité du couplage  $\eta$  par la relation (I.30)

$$(I.30) \quad \eta = \frac{P_{gc}}{P_l}$$

Dans (I.30),  $P_{gc}$  représente la puissance optique effectivement guidée dans le coeur de fibre, et  $P_l$  la puissance maximale que peut délivrer le laser. Pour que l'efficacité  $\eta$  du couplage laser-fibre soit maximale, il est nécessaire que l'étendue optique du faisceau soit inférieure à l'étendue optique de la fibre [6]. Cette condition se trouve réalisée pour la plupart des fibres multimodes faisant l'objet de notre étude ( $1000 \mu\text{m} \geq 2a \geq 200 \mu\text{m}$ ,  $0,48 \geq \text{ON} \geq 0,2$ ). D'autre part il est nécessaire que seuls les rayons guidés soient excités dans le coeur de la fibre. Cette dernière condition est réalisée quand la double inégalité (I.31) est vérifiée.

$$(I.31) \quad \begin{cases} \theta_{0\text{max}} < \theta_{0c} \\ \varnothing'_2 < 2a \end{cases}$$

Sous ces conditions, l'efficacité du couplage n'est alors théoriquement limitée que par les pertes introduites lors de la traversée de la face d'entrée ( $P_{gc} = T \cdot P_l$ ). Cependant, le phénomène de fracture optique implique que la valeur de la puissance incidente sur la fibre soit ajustée à une valeur inférieure à la puissance optique  $P_l$  maximale délivrée par le laser. L'efficacité maximale du couplage qu'il est alors possible d'atteindre est donnée par la relation (I.32)

$$(I.32) \quad \eta_{\text{max}} = T \cdot \frac{P_f}{P_l}$$

Dans (I.32)  $P_f$  représente la puissance optique incidente à laquelle apparaît la fracture optique ( $P_f < P_l$ ).

I.4.2.1.1 - Définition de la fluence seuil correspondant à l'apparition d'une fracture optique de la fibre.

On convient de définir la densité d'énergie du faisceau laser sur le coeur de la fibre par la relation (I.33)

$$(I.33) \quad F = \frac{E_p}{\pi a^2}$$

Dans (I.33),  $E_p$  désigne l'énergie par impulsion incidente sur le coeur de la fibre, de rayon  $a$ . La densité d'énergie  $F$  correspond donc à une densité d'énergie moyenne. La densité d'énergie crête peut se révéler très supérieure à cette valeur moyenne.

Si la fluence  $F$  est augmentée progressivement en utilisant l'atténuateur  $A$  représenté sur la figure (I.7), il apparaît qu'au delà d'une valeur critique  $F_c$  ( $F > F_c$ ) la face d'entrée de la fibre commence par se marquer en des points très localisés, sans que la transmission globale de la fibre en soit affectée de façon significative. On définit arbitrairement la fluence seuil caractérisant l'apparition de la fracture optique par la relation (I.34) :

$$(I.34) \quad F_{\text{seuil}} = F_c$$

Plusieurs remarques peuvent être formulées :

- (i) la fracture optique du matériau se produit essentiellement au niveau de la face d'entrée de la fibre. Cependant, si le faisceau laser n'est pas correctement aligné avec l'axe de la fibre, et s'il est faiblement colimaté ( $\theta_{\text{max}}$  faible), on peut parfois observer [16] l'apparition d'une fracture optique dans le coeur de la fibre. Cette fracture se produit à l'interface coeur-gaine, à quelques millimètres de la face d'entrée. Son seuil d'apparition est en général plus faible que  $F_{\text{seuil}}$ .

Différents arguments ont été avancés pour expliquer le fait que la fracture du matériau se produisait en surface. La surface du matériau peut être altérée par la présence de micro-défauts tels que poussières, impuretés ou constituants d'origines diverses amenés sur la surface de la fibre lors de sa manipulation. Ces constituants sont susceptibles d'absorber localement l'énergie ultraviolette et de créer des points chauds à l'origine de la création d'un plasma [17]. Par ailleurs, ils se comportent comme des sources diffusant l'onde ultraviolette incidente. Les interférences entre l'onde diffusée et l'onde incidente peuvent être localement constructives. En ces points, l'amplitude du champ optique peut atteindre la limite disruptive, et créer également un plasma [17]. A notre connaissance, l'estimation de l'influence relative de ces deux phénomènes n'a pas été étudiée dans le cas des fibres optiques. Nous n'avons pas examiné plus en détail ces mécanismes dans nos expériences, mais ce problème pourrait faire l'objet d'études ultérieures.

- (ii) si l'on augmente la fluence au delà de  $F_{seuil}$ , un arc audible s'amorce à l'entrée de la fibre. L'apparition de cet arc s'accompagne d'une fracture qui se propage sur une distance de quelques dixièmes de millimètres dans le coeur de fibre. Le matériau constituant le coeur devient alors très inhomogène et impropre à toute transmission.

- (iii) la lentille L forme l'image  $\varnothing'_2$  du diaphragme  $\varnothing_2$  sur le coeur de la fibre. L'homogénéité de la distribution spatiale de puissance du faisceau évaluée sur la section de l'image  $\varnothing'_2$  est sensiblement analogue à celle observée au niveau du diaphragme  $\varnothing_2$ .

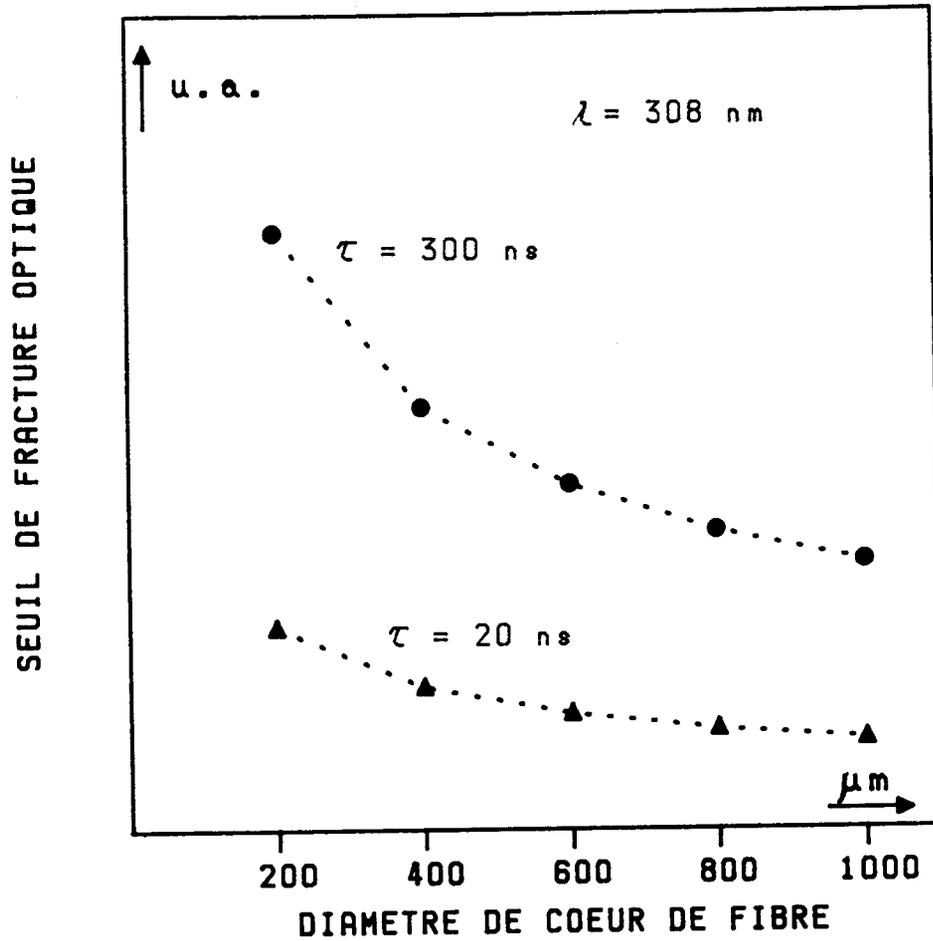


Figure I.11 - Evolution du seuil de fracture optique normalisé en fonction du diamètre de coeur de fibre, pour des durées d'impulsion  $\tau = 20$  ns et  $\tau = 300$  ns.

I.A.2-1-2 - Présentation de lois empiriques décrivant l'évolution du seuil de fracture en fonction des paramètres de faisceau et de fibre.

La valeur de la densité d'énergie seuil dépend des nombreux paramètres caractérisant le faisceau laser et(ou) la fibre [18]. On peut citer par exemple :

- la longueur d'onde laser  $\lambda_p$
- la durée de l'impulsion  $\tau$
- l'aire A du faisceau sur le coeur de fibre  
( $A = \frac{\pi \varnothing_2'^2}{4}$ )
- la nature des matériaux constituant la fibre.

Elle dépend également de paramètres plus difficilement appréciables tels que la qualité de l'état de surface de l'entrée de fibre et la qualité de l'alignement de l'axe de propagation du faisceau laser avec l'axe de la fibre. R.S. Taylor et al. [19] [20] ont suggéré à partir de leurs résultats expérimentaux que la valeur du seuil de fracture de la silice suivait une loi de dépendance en fonction de  $\lambda_p$  en  $\sim \lambda_p^4$  (pour  $190 \text{ nm} \leq \lambda_p < 360 \text{ nm}$ ). L'évolution en fonction de  $\tau$  s'effectue selon une loi de proportionnalité en  $\tau^{-0,4}$  ( $7,5 \text{ ns} < \tau < 300 \text{ ns}$ ). Si l'on augmente la surface A, le seuil décroît comme  $A^{-1/4}$  (avec  $A \simeq 0.8 \pi a^2$ ) ( $200 \mu\text{m} < 2a < 1000 \mu\text{m}$ ). Il faut noter que ces lois empiriques ont été établies à partir d'expériences dont la reproductibilité est estimée à 20% [20]. L'évolution du seuil normalisé de fracture est représentée sur la figure (I.11) en fonction de A pour différentes valeurs de  $\tau$ .

**I.A.2-2 - Estimation des puissances optiques au delà  
desquelles différents effets non-linéaires  
risquent de perturber les caractéristiques  
de la transmission.**

Jusqu'à présent nous avons supposé que la fibre se comportait comme un milieu passif et linéaire. Dans cette hypothèse, la puissance optique recueillie en sortie de fibre est proportionnelle à la puissance couplée à l'entrée de la fibre. En réalité, cette loi de dépendance ne constitue qu'une approximation plus ou moins bien vérifiée. En effet on peut observer sous certaines conditions des effets de puissance dans les fibres. Ces effets se traduisent, par exemple, par des pertes ou des gains non-linéaires (et) ou par des conversions de fréquences [21]. De façon générale, la non-linéarité s'avère d'autant plus significative que la longueur de fibre est grande, et que son atténuation est faible. Les effets non-linéaires les plus souvent cités sont relatifs à la diffusion Raman stimulée, à la diffusion Brillouin stimulée, à l'automodulation de phase et aux interactions paramétriques à 4 ondes. Cependant, les références bibliographiques se rapportent surtout à des effets mis en évidence dans des fibres utilisées en télécommunication : fibres monomodes, de grandes longueurs (km), de faible atténuation (typiquement 0.2 dB/km à 1.55  $\mu\text{m}$ ), excitées par des sources lasers émettant dans le proche infrarouge. Les caractéristiques de ces fibres s'écartent notablement de celles des fibres médicales excitées par la longueur d'onde ultraviolette 308 nm. Dans le cas de nos expériences la longueur des fibres multimodes excède rarement 10 m. Leur atténuation provient principalement de la diffusion Rayleigh et reste supérieure à environ 100 dB/km à 308 nm [22]. La valeur maximale de la puissance optique que l'on peut coupler à la fibre ( $\sim 300$  kW pour des impulsions de durée

20 ns) est fixée par l'ordre de grandeur de la fluence\* seuil de fracture optique.

D'autres effets non-linéaires tels que, par exemple, l'absorption à deux photons s'avèrent très peu probables dans le domaine spectral des sources lasers utilisées dans les télécommunications optiques. Il existe donc assez peu de références bibliographiques concernant ces effets [23]. Cependant, dans l'ultraviolet ( $\lambda \leq 308$  nm), l'énergie d'un photon est proche de la moitié de l'énergie de la transition correspondant à la bande d'absorption fondamentale de la silice, dont le centre est situé vers 140 nm [11]. L'absorption à deux photons risque donc à priori de limiter la transmission de puissance ultraviolette [24]. Il apparaît donc nécessaire d'évaluer le risque d'apparition de ces effets non-linéaires dans les fibres en partant de données numériques typiques.

#### I.4.2-2-1 - Effet Raman

L'effet Raman peut être décrit de façon phénoménologique comme un phénomène de diffusion inélastique de l'onde optique pompe se propageant dans la fibre, par couplage avec les niveaux vibrationnels de l'édifice moléculaire que constitue la silice vitreuse. A faible niveau de puissance optique, l'impulsion pompe de longueur d'onde  $\lambda_p$  donne naissance par émission spontanée à de nouvelles fréquences optiques réparties continûment sur une bande de fréquences de largeur  $1400 \text{ cm}^{-1}$  [25]. Cette bande est

---

\* Pour estimer l'ordre de grandeur des effets non-linéaires, nous supposons que cette fluence seuil est voisine de  $20 \text{ J/cm}^2$  pour une fibre de diamètre de coeur  $200 \text{ }\mu\text{m}$ .

déplacée vers le rouge par rapport à  $\lambda_p$  (émission Stokes), et présente un maximum d'intensité pour un décalage en fréquence d'environ  $440 \text{ cm}^{-1}$ . Si l'on augmente la valeur de la puissance pompe, l'émission Stokes observée en sortie de la fibre (émission codirective avec la puissance pompe)\* croît de façon quasi-exponentielle, en tirant son énergie de celle de l'onde pompe. Cette croissance s'effectue jusqu'à ce que l'amplitude de l'onde Stokes devienne comparable à celle de l'impulsion pompe. Si l'atténuation de la fibre est suffisamment faible et la puissance de l'onde pompe importante, l'onde Stokes peut atteindre une intensité suffisante pour pomper une seconde radiation Stokes, puis d'autres ordres successifs par cascade.

Le spectre de la première émission Stokes stimulée apparaît beaucoup plus étroit que  $1400 \text{ cm}^{-1}$  (effet de rétrécissement spectral par le gain). L'apparition des impulsions Stokes se traduit par une chute de l'intensité de l'onde pompe en sortie de fibre. D'autre part, l'interaction Raman peut conduire à des formes temporelles et à des durées d'impulsion différentes en sortie de fibre de celles de l'impulsion pompe. L'effet Raman peut donc s'avérer gênant dans une application médicale si le choix de la longueur

-----  
\* Bien que les gains Raman pour l'amplification codirective et contradirective soient du même ordre de grandeur [21], il n'y a cependant pas lieu de considérer l'amplification de l'émission spontanée contradirective avec l'impulsion pompe. En effet, la longueur moyenne du train d'onde que constitue l'impulsion pompe de durée 20 ns est d'environ 4 m. Le recouvrement entre l'onde pompe et l'onde Raman contradirective est limitée à 4 m. Dans le cas d'ondes codirectives, la longueur d'interaction est égale à celle de la fibre, dans la mesure où la dispersion des vitesses de groupe peut être négligée.

d'onde de l'impulsion lumineuse, et/ou, si la forme temporelle de l'impulsion constituent des paramètres critiques de l'intervention.

R.G. Smith [26] a développé un modèle analytique simplifié permettant d'évaluer la puissance pompe critique  $P_c$  injectée dans la fibre, au delà de laquelle l'effet Raman devient significatif. La puissance pompe critique  $P_c$  est arbitrairement définie par cet auteur comme la puissance couplée à la fibre pour laquelle la puissance de la première émission Stokes en sortie de fibre devient égale à la puissance pompe transmise par la fibre. L'onde Stokes stimulée se développe par amplification du flux lumineux généré à partir de la diffusion Raman spontanée de l'onde pompe en chaque point de la fibre. Dans le modèle de R.G. Smith, la puissance Stokes en sortie de fibre peut se calculer en remplaçant la diffusion Raman spontanée créée le long de la fibre par une source fictive placée à l'entrée de la fibre délivrant un photon Stokes par mode (longitudinal et transverse) de fibre. Ce modèle conduit à une expression analytique de la puissance Stokes stimulée en sortie de fibre en fonction de la puissance pompe couplée à la fibre. Si la fibre multimode ne maintient pas la polarisation, la valeur de la puissance critique peut se calculer à l'aide de la relation approchée (I.35).

$$(I.35) \quad P_c = \frac{32 \cdot \alpha \cdot S}{G_R}$$

Dans la relation (I.35),  $\alpha$  (en  $m^{-1}$ ), représente le coefficient d'atténuation linéaire en puissance de la fibre,  $G_R$  le gain Raman de la fibre à coeur de silice pour la longueur d'onde 308 nm ( $G_R \simeq 3,2 \cdot 10^{-13} m/W$  [21]), et  $S$  l'aire du coeur de fibre.

Pour une fibre de diamètre de coeur  $200 \mu\text{m}$  et d'atténuation  $120 \text{ dB/km}$  ( $\alpha = 0.0276 \text{ m}^{-1}$ ), la puissance critique  $P_c$  vaut environ  $90 \text{ kW}$ . La relation (I.35) est établie cependant sous un certain nombre d'hypothèses restrictives :

- l'atténuation de l'onde pompe induite par l'interaction non-linéaire est négligée.
- la longueur d'interaction est grande devant  $1/\alpha$ .

La plupart des fibres médicales sont plus courtes que  $1/\alpha$  ( $1/\alpha = 36 \text{ m}$  pour une fibre dont l'atténuation est égale à  $120 \text{ dB/km}$ ), si bien que la valeur calculée à l'aide de la relation (I.35) constitue en fait une limite inférieure de la puissance pompe critique  $P_c$ . D'autres modèles analytiques développés récemment lèvent les hypothèses restrictives énoncées par R.G. Smith [27], [28], [29], [30]. Ils permettent de calculer l'évolution des intensités des radiations Stokes en tout point de la fibre. Une valeur approchée de la puissance transportée par la première onde Stokes peut être obtenue également à partir d'un **modèle numérique simplifié** que nous a inspiré une méthode développée par R.H. Stolen [25].

Dans ce modèle, la fibre, de longueur  $L$ , est partagée en  $N$  tronçons de longueur  $\Delta\ell$  :

$$(I.36) \quad L = N \cdot \Delta\ell$$

A la côte  $\ell = k \cdot \Delta\ell$  ( $k$  entier  $\leq N$ ), la puissance Stokes est désignée par  $P_s(\ell)$  et la puissance pompe par  $P_p(\ell)$ . L'aspect modal de la propagation guidée est négligée. L'onde pompe est assimilée à une onde plane de densité de puissance  $P_p(\ell)/S$ . Sur un tronçon de longueur  $\Delta\ell$ , la puissance Stokes augmente en raison de l'amplification de l'onde Stokes incidente et de la diffusion Raman spontanée, et décroît en raison des pertes provoquées par la propagation dans la

fibre. La puissance pompe est diminuée par conversion Raman et par les pertes de fibre. L'évolution des puissances pompe  $P_p(\ell)$  et Stokes  $P_s(\ell)$  s'exprime au travers des équations différentielles couplées (I.37.a) et (I.37.b) :

$$\begin{aligned} dP_s(\ell) &= P_s(\ell + \Delta\ell) - P_s(\ell) \\ &= G_R \cdot \frac{P_p(\ell)}{S} \cdot P_s(\ell) \cdot \Delta\ell \end{aligned}$$

(I.37.a)

$$\begin{aligned} &+ \frac{1,5 \cdot 10^{-27}}{\lambda_p^4} \cdot P_p(\ell) \cdot G_R \cdot \pi \cdot (ON)^2 \cdot \Delta\nu \\ &- \alpha \cdot P_s(\ell) \cdot \Delta\ell \end{aligned}$$

$$dP_p(\ell) = P_p(\ell + \Delta\ell) - P_p(\ell)$$

(I.37.b)

$$= -\alpha \cdot P_p(\ell) \cdot \Delta\ell - \frac{\lambda_s}{\lambda_p} \cdot G_R \cdot \frac{P_p(\ell)}{S} \cdot P_s(\ell) \cdot \Delta\ell$$

Le second terme de la relation (I.37.a) correspond à la contribution apportée par la diffusion Raman spontanée (en W), guidée dans la fibre. Son expression est calculée dans la référence [25]. Dans les expressions (I.37.a) et (I.37.b) il convient d'exprimer l'incrément de longueur  $\Delta\ell$  en cm, la largeur spectrale de l'émission Raman stimulée  $\Delta\nu$  en  $\text{cm}^{-1}$ , ON l'ouverture numérique de la fibre sans dimension,  $G_R$  le gain Raman en  $\text{cm/W}$ ,  $P_p(\ell)$  et  $P_s(\ell)$  en W,  $\lambda_p$  et  $\lambda_s$  en cm. Le coefficient d'atténuation  $\alpha$ , exprimé en  $\text{cm}^{-1}$ , est supposé identique aux deux longueurs d'onde  $\lambda_p$  et  $\lambda_s$ . Les puissances pompe et Stokes calculées le long de la fibre à l'aide des relations (I.37.a) et (I.37.b) sont représentées sur la figure (I.12) en fonction de la puissance injectée dans la fibre, pour différentes longueurs L de fibre. Ces calculs ont été effectués avec les valeurs des paramètres suivants :  $P_s(\ell=0) = 0$ ,  $G_R = 3,2 \cdot 10^{-11} \text{ cm/W/2}$  (la division

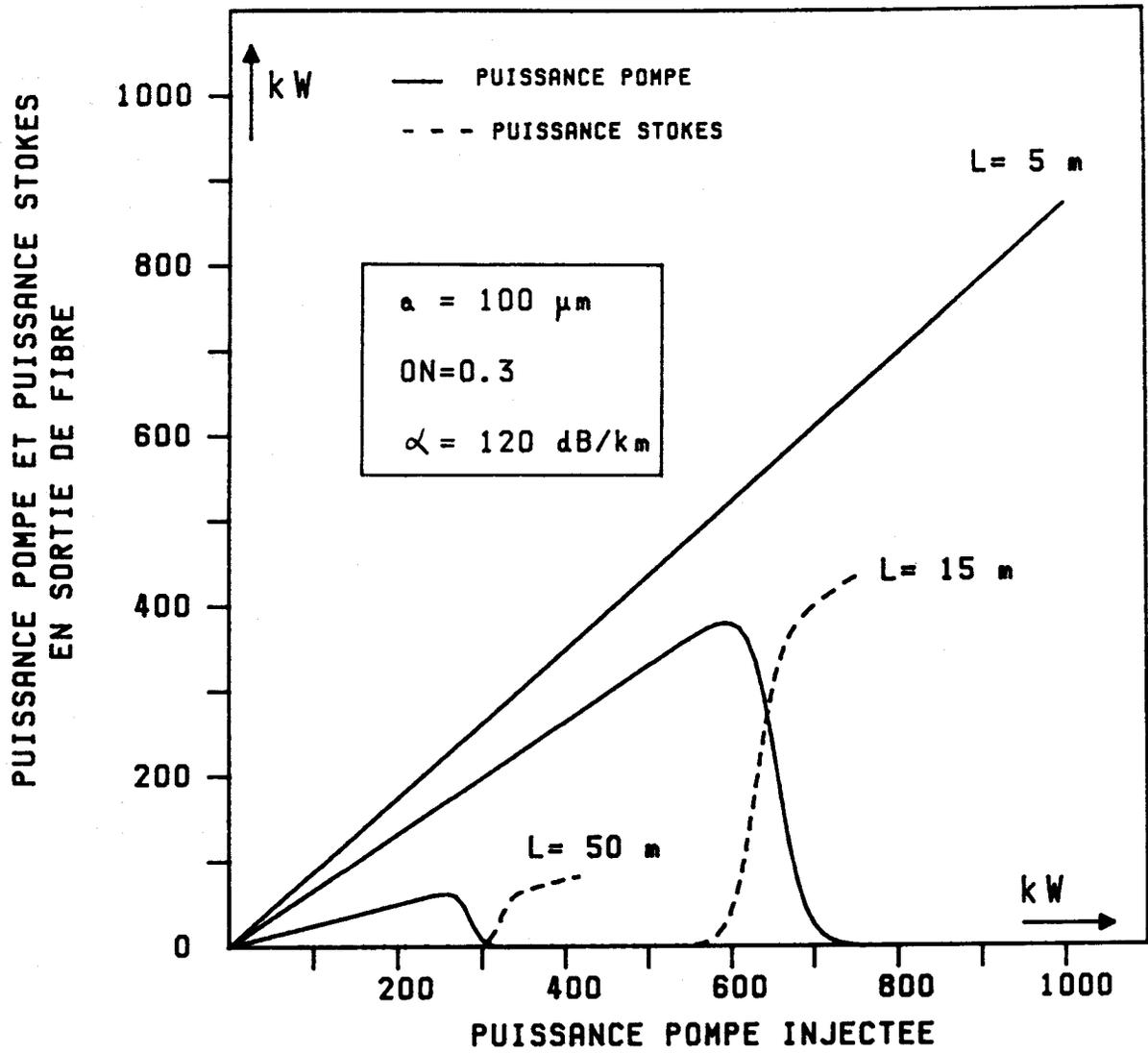


Figure I.12 - Evolution de la puissance pompe et de la puissance Stokes mesurée en sortie de fibre en fonction de la puissance pompe injectée, pour différentes longueurs de fibre.

par 2 de la valeur du gain tient compte du fait que la fibre ne maintient pas la polarisation [21]),  $\bar{\Delta\nu} = 20 \text{ cm}^{-1}$ ,  $ON=0.3$ ,  $\alpha=2,77 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^{-1}$ . Les puissances pompe critiques pour les différentes valeurs de L se déduisent de cette figure.

Différentes remarques concernant le modèle que nous avons utilisé peuvent être formulées :

i) Le système d'équations (I.36) et (I.37) ne prend pas en compte l'apparition éventuelle d'une deuxième radiation Stokes. Cette simplification ne modifie pas de façon appréciable la valeur de la puissance pompe critique  $P_c$ . Il faut cependant noter que l'évolution de la puissance Stokes représentée en fonction de la puissance pompe sur la figure (I.12) n'est plus correcte au-delà de la puissance pompe critique.

ii) Nous supposons implicitement dans notre modèle que seule une bande étroite de fréquences, déplacée de  $440 \text{ cm}^{-1}$  par rapport à la fréquence pompe, est amplifiée par le gain Raman créé par la radiation pompe. L'amplification s'effectue en réalité sur la totalité de la bande de gain Raman de largeur spectrale  $1400 \text{ cm}^{-1}$  ; chaque bande Stokes déplacée de  $\Delta\sigma$  par rapport à  $\sigma_p$  ( $\sigma_p=1/\lambda_p$ ) se trouve également amplifiée par le gain Raman provenant des raies Stokes déplacées d'un écart en fréquence inférieur à  $\Delta\sigma$ . Cette bande Stokes contribue pour sa part à amplifier les raies Stokes déplacées d'un écart en fréquence supérieur à  $\Delta\sigma$ . Ces effets, associés à la dissymétrie de la courbe de gain Raman, conduisent à l'obtention d'une première raie Stokes stimulée présentant un maximum marqué centré sur une fréquence décalée de  $490 \text{ cm}^{-1}$  par rapport à la fréquence pompe  $\sigma_p$  [25] (au lieu de  $440 \text{ cm}^{-1}$ , valeur correspondant au centre de la courbe de gain). Notre modèle sous-estime donc probablement le gain Raman effectif à la fréquence de la raie

Longueur de fibre (m)	DIAMETRE DE COEUR DE FIBRE ( $\mu\text{m}$ )							
	100		200		400		600	
	$P_{\text{p kW}}$	$F_{\text{ J/cm}^2}$	$P_{\text{p kW}}$	$F_{\text{ J/cm}^2}$	$P_{\text{p kW}}$	$F_{\text{ J/cm}^2}$	$P_{\text{p kW}}$	$F_{\text{ J/cm}^2}$
5	465	118.4	1860	118.4	7435	118.4	16700	118.4
10	235	59.8	940	59.8	3755	59.8	8450	59.8
15	165	41.7	656	41.7	2616	41.7	5887	41.7
20	130	32.9	515	32.9	2066	32.9	4648	32.9
50	71	18.2	285	18.2	1140	18.2	2568	18.2
100	56.5	14.4	225	14.4	904	14.4	2034	14.4

Durée d'impulsion 20 ns

Paramètres du calcul

$\alpha = 120 \text{ dB/km}$   
 $\text{ON} = 0.3$   
 $\Delta\bar{\nu} = 20 \text{ cm}^{-1}$   
 $\lambda_p = 308 \text{ nm}$   
 $\lambda_s = 312.4 \text{ nm}$   
 $\Delta\lambda = 2 \text{ cm}$   
 $G = 1.6 \times 10^{-11} \text{ cm/W}$

Tableau I.4 - Puissance pompe qu'il est nécessaire de coupler dans la fibre pour obtenir un effet Raman stimulé ( $P_p(L) = P_s(L)$ ) ; densités d'énergie incidentes correspondantes.

Stokes stimulée  $\sigma_p - \Delta\sigma$  ( $\Delta\sigma = 490 \text{ cm}^{-1}$ ). De ce fait, les valeurs des puissances et des densités d'énergie critiques, reportées dans le tableau I.4 pour différentes longueurs de fibre et diamètre de coeur de fibre sont donc certainement légèrement sur-estimées.

iii) Les valeurs numériques des puissances critiques s'avèrent peu sensibles à une variation des paramètres  $\Delta\bar{\nu}$  et ON, alors qu'elles dépendent fortement de  $\alpha$ ,  $G_r$ , A. Par exemple, le fait de choisir une ouverture numérique de 0,2 (au lieu de 0,3) ne modifie la puissance critique que de 3%.

Comme le montre le tableau I.4, la valeur de la densité d'énergie critique est indépendante du diamètre du coeur de fibre. La figure (I.13) représente sa variation en fonction de la longueur L de fibre (pour une impulsion de durée  $\tau = 20 \text{ ns}$ ). Si l'on adopte une valeur maximale de densité d'énergie égale à  $20 \text{ J/cm}^2$  (seuil de fracture optique de la fibre) il apparaît sur la figure (I.13) que l'effet Raman ne peut pas se révéler gênant tant que la longueur de la fibre reste inférieure à 42 m. Sur la figure (I.14) nous avons représenté l'évolution de la densité d'énergie critique Raman en fonction de la durée de l'impulsion laser pour deux longueurs de fibre ( $L = 20 \text{ m}$ ,  $L = 50 \text{ m}$ ). Nous y avons également fait figurer l'évolution du seuil de fracture optique en fonction de la durée de l'impulsion  $\tau$ . On suppose que la loi de variation empirique en  $\tau^{0,4}$  s'applique au cas d'une fibre de diamètre de coeur  $200 \mu\text{m}$  pour laquelle on admet que le seuil de fracture est égal à  $20 \text{ J/cm}^2$  pour  $\tau = 20 \text{ ns}$ . Il ressort de l'examen de la figure (I.14) que le risque d'apparition d'un effet Raman dans des fibres de longueur inférieure à 20 m n'est réel que si la durée de l'impulsion laser est inférieure à 7 ns. Pour une durée d'impulsion de 20 ns, l'effet Raman n'intervient pas, tant

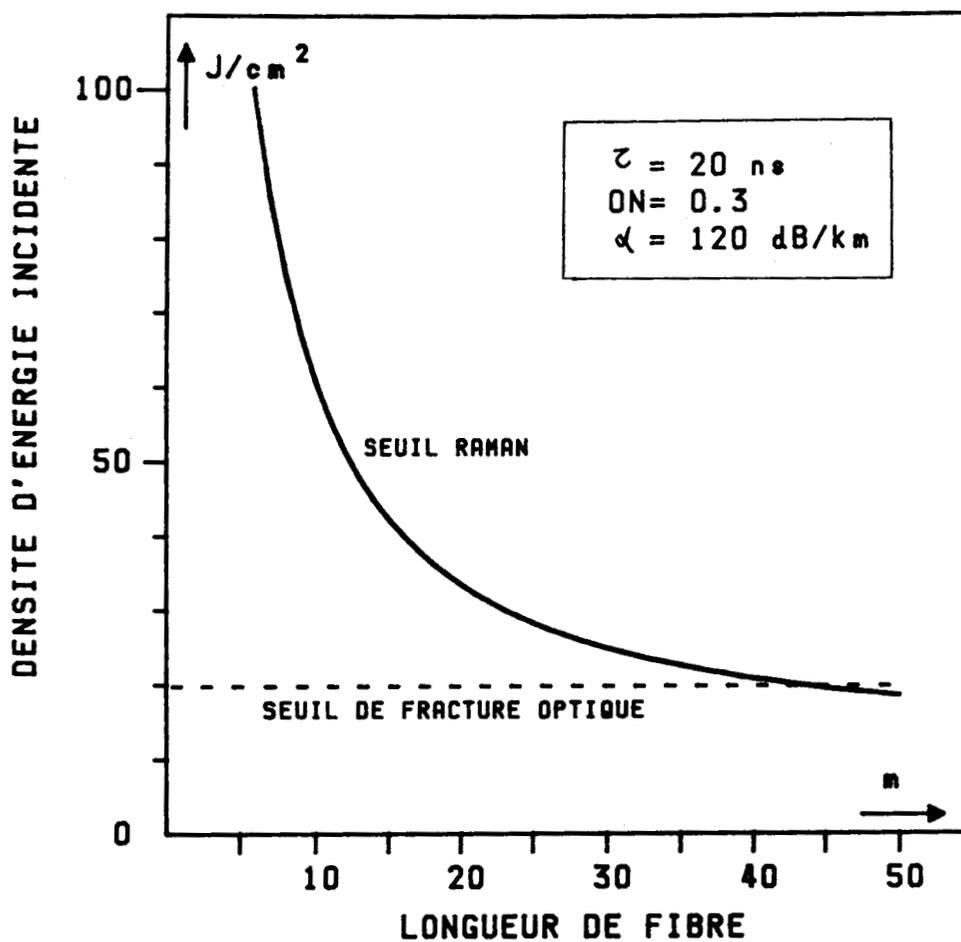


Figure I.13 - Variation de la densité d'énergie critique, correspondant au seuil d'apparition de l'effet Raman, en fonction de la longueur de fibre.

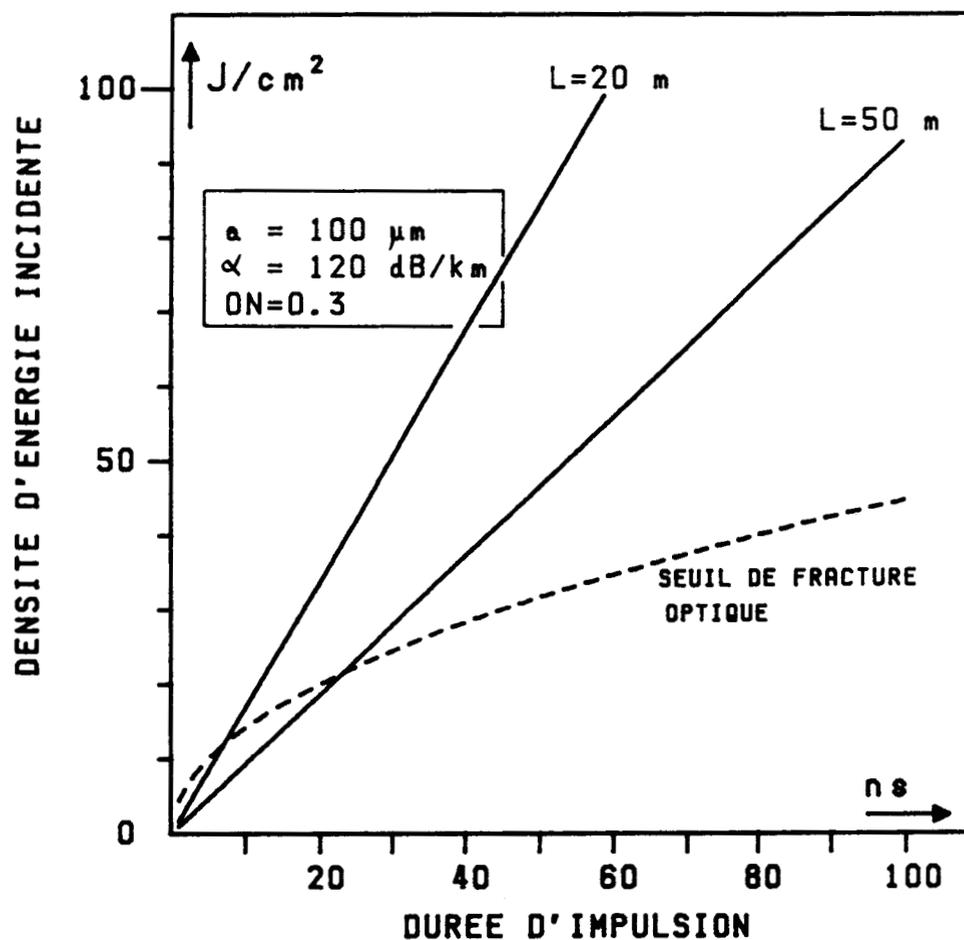


Figure I.14 - Evolution de la densité d'énergie critique d'effet Raman (traits pleins) en fonction de la durée d'impulsion.

La courbe en tirets représente la loi de dépendance en  $\tau^{0,4}$  du seuil de fracture optique (la valeur du seuil est fixée à  $20 J/cm^2$  pour une impulsion de durée  $\tau$  égale à 20 ns).

que la longueur de la fibre reste limitée à quelques dizaines de mètres.

### I.4.2-2-2 - Effet Brillouin, effet Kerr

La diffusion Brillouin provient de l'interaction d'une onde optique pompe avec les vibrations acoustiques du matériau constituant le coeur de la fibre. Comme dans le cas de l'effet Raman, un régime stimulé s'établit lorsque l'onde pompe est suffisamment intense : l'onde pompe transfère alors une partie de son énergie vers l'onde acoustique et vers l'onde diffusée. La diffusion Brillouin s'effectue de façon contradictoire en raison de la condition d'accord de phase (conservation de l'impulsion lors de l'interaction), alors que l'onde acoustique est codirective [26]. La fréquence de l'onde rétrodiffusée est inférieure à celle de l'onde pompe d'une quantité  $\Delta\nu$  égale à la fréquence de l'onde acoustique. La valeur de  $\Delta\nu$  peut être estimée à l'aide de la relation (I.38) [31] :

$$(I.38) \quad \Delta\nu \simeq \frac{17}{\lambda_p}$$

Dans la relation (I.38),  $\Delta\nu$  est exprimé en GHz et  $\lambda_p$  en  $\mu\text{m}$ . Pour la longueur d'onde de pompe  $\lambda_p = 0,308 \mu\text{m}$ ,  $\Delta\nu$  est donc de l'ordre de 55 GHz.

Dans le cas où la largeur spectrale du laser de pompe  $\Delta\nu_p$  est supérieure à la largeur spectrale  $\Delta\nu_B$  de l'émission Brillouin spontanée, ( $\Delta\nu_B \simeq 69 \text{ MHz}$ ), le gain Brillouin effectif  $G_B$  est donné par la relation approchée (I.39) [26]

$$(I.39) \quad G_B \simeq 4,3 \cdot 10^{-11} \cdot \frac{\Delta\nu_B}{\Delta\nu_p} \text{ (m/W)}$$

Si la fibre est excitée par un laser excimère à XeCl ( $\Delta\nu_p \simeq 60$  GHz) le gain Brillouin effectif s'avère environ cinq fois plus faible que le gain Raman. L'apparition d'une émission Brillouin stimulée ne doit donc pas être redoutée dans nos conditions d'expérience.

L'effet Kerr optique se traduit par l'augmentation de l'indice de réfraction du matériau sous l'effet du rayonnement laser. Si l'on assimile l'impulsion laser se propageant dans la fibre à une onde plane d'intensité  $I = \frac{P}{S}$ , la variation d'indice  $\delta_n$  se déduit de la relation (I.40) [32].

$$(I.40) \quad \delta_n \simeq 5.10^{-20} \cdot I \quad (I \text{ en } W/m^2)$$

En choisissant des valeurs typiques (fibre de diamètre de coeur 200  $\mu\text{m}$ ,  $P = 300$  kW (soit  $F = 20$  J/cm<sup>2</sup>)), l'application de la relation (40) conduit à la valeur  $\delta_n = 5.10^{-7}$ . Cette variation d'indice peut être tout à fait négligée devant la différence d'indices entre coeur et gaine de fibre ( $n_c - n_g \simeq 0,03$ ), et ne modifie donc pas les propriétés de guidage de la fibre.

### I.A.2-2-3 - L'absorption à deux photons

L'absorption simultanée de deux photons peut constituer un phénomène de pertes significatif pour la transmission d'impulsions ultraviolettes dans les fibres à coeur de silice, dans la mesure où la fréquence du photon ultraviolet est supérieure à la moitié de la fréquence de transition de la bande fondamentale d'absorption [24]. Ce processus de pertes non-linéaires peut être décrit de façon phénoménologique par l'intermédiaire d'un coefficient d'absorption  $\alpha_{NL}$  défini par la relation (I.41) :

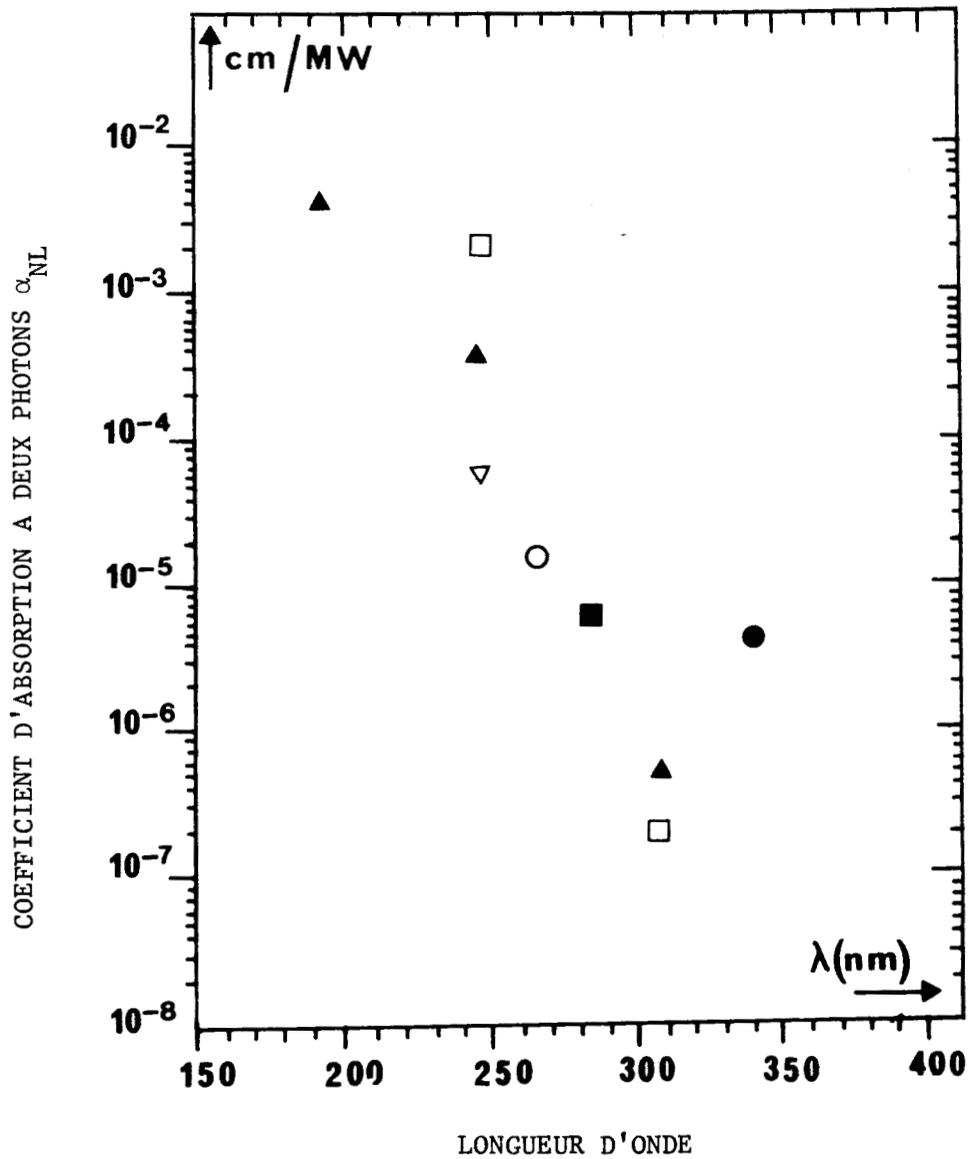


Figure I.15 - Valeurs expérimentales du coefficient d'absorption à deux photons  $\alpha_{NL}$  en fonction de la longueur d'onde, d'après les références [20] ( $\blacktriangle$ ), [33] ( $\square$ ), [23] ( $\blacksquare$ ), [34] ( $\bullet$ ), [35] ( $\nabla$ ), [24] ( $\circ$ ).

$$(I.41) \quad \frac{\partial I}{\partial z} = -\alpha \cdot I - \alpha_{NL} \cdot I^2$$

Dans l'expression (I.41),  $\alpha$  représente le coefficient d'atténuation linéaire (en  $\text{cm}^{-1}$ ),  $I$  la densité de puissance ( $\text{W}/\text{cm}^2$ ), et  $z$  la distance mesurée le long de l'axe de la fibre (cm) (à l'entrée de la fibre  $z=0$ ). L'onde guidée dans la fibre est assimilée à une onde plane d'intensité  $I$ , et les seules pertes prises en compte dans ce modèle proviennent de l'atténuation due à la propagation dans la fibre,  $\alpha$ , et de l'absorption non-linéaire,  $\alpha_{NL}$ . Des mesures du coefficient d'absorption non-linéaire  $\alpha_{NL}$  de la silice ont été effectuées dans différents laboratoires, et sont reportées en fonction de la longueur d'onde de pompe  $\lambda_p$  sur la figure (I.15). Les valeurs de  $\alpha_{NL}$  décroissent depuis l'ultraviolet lointain ( $\alpha_{NL} \simeq 3 \cdot 10^{-3} \text{ cm}/\text{MW}$  à  $\lambda = 193 \text{ nm}$ ) jusqu'à une valeur estimée, inférieure à  $2 \cdot 10^{-7} \text{ cm}/\text{MW}$  à  $\lambda = 308 \text{ nm}$ . Une mesure effectuée par R.S. Rotschild [34] conduit à une valeur de  $3,3 \cdot 10^{-6} \text{ cm}/\text{MW}$  à la longueur d'onde  $\lambda = 337 \text{ nm}$ . Ce résultat se révèle surprenant car la probabilité de transition à deux photons devrait au contraire décroître à mesure que  $\lambda$  croît [24]. La valeur du coefficient  $\alpha_{NL}$  à  $308 \text{ nm}$  peut donc a priori être suspectée. Il apparaît de ce fait important d'effectuer de nouvelles expériences vers  $308 \text{ nm}$  afin de vérifier la validité des mesures précédentes.

L'intégration de l'équation (I.41) aboutit à l'expression (I.42) de la transmission de la fibre en fonction de sa longueur en présence d'atténuations linéaire et non-linéaire [23]

$$(I.42) \quad T = \frac{P_s}{P_e} = \frac{e^{-\alpha \cdot L}}{1 + \alpha_{NL} \cdot \left( \frac{1 - e^{-\alpha L}}{\alpha} \right) \cdot \frac{P_e}{S}}$$

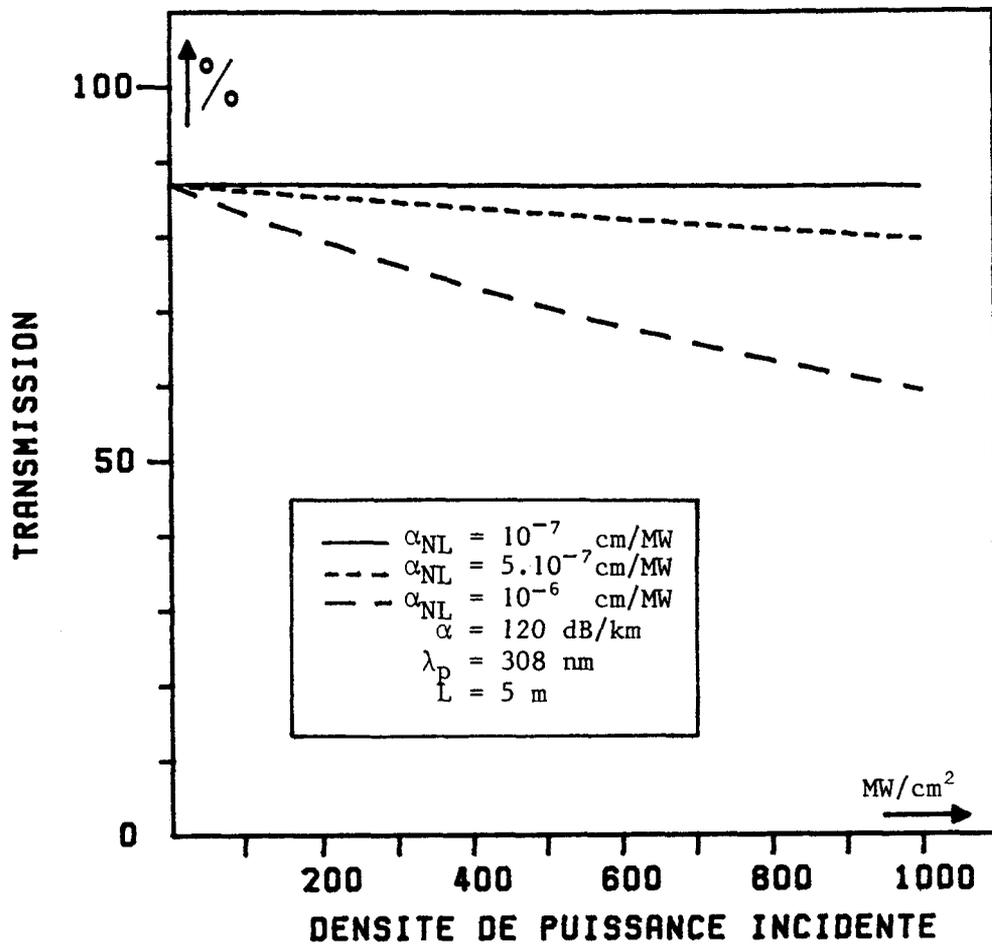


Figure I.16 - Evolution de la transmission en fonction de la densité de puissance incidente en présence d'absorption à deux photons.

Dans (I.42),  $P_e$  désigne la puissance optique effectivement couplée dans la fibre, et  $P_s$  la puissance à l'extrémité de la fibre de longueur  $L$ , juste avant la face de sortie. Pour évaluer l'importance que peut revêtir l'absorption à deux photons sur la transmission de la fibre, la transmission  $T$  a été calculée en fonction de la densité de puissance couplée, exprimée en  $\text{MW}/\text{cm}^2$ , pour une longueur de fibre  $L = 5 \text{ m}$ , et pour trois valeurs du paramètre  $\alpha_{NL}$  ( $\alpha_{NL} = 10^{-7} \text{ cm}/\text{MW}$ ,  $5 \cdot 10^{-7} \text{ cm}/\text{MW}$ ,  $10^{-6} \text{ cm}/\text{MW}$ ) (figure I.16). Plusieurs remarques peuvent être formulées à partir de cette figure. Pour des valeurs du coefficient d'absorption non-linéaire  $\alpha_{NL}$  inférieures à  $2 \cdot 10^{-7} \text{ cm}/\text{MW}$ , la perte par absorption non-linéaire reste de l'ordre de quelques pour cent, même aux valeurs voisines du seuil de fracture optique de la fibre (fixé à  $20 \text{ J}/\text{cm}^2$  pour une fibre de diamètre de coeur  $200 \mu\text{m}$  et pour une impulsion de durée  $\tau = 20 \text{ ns}$ ), soit une puissance seuil de  $1000 \text{ MW}/\text{cm}^2$ . Par contre, l'absorption non-linéaire s'avère très sensible et devrait donc être facile à mettre en évidence si  $\alpha_{NL} \geq 10^{-6} \text{ cm}/\text{MW}$ , et ceci même en utilisant des fibres courtes ( $L \simeq 5 \text{ m}$ ) éclairées à des densités d'énergie faibles devant  $20 \text{ J}/\text{cm}^2$ .

### I.A.3 - CONCLUSION

Dans cette première partie nous avons traité théoriquement le problème de la transmission d'impulsions lumineuses ultraviolettes dans des fibres optiques multimodes à saut d'indice, à usage médical.

Parmi les principales radiations délivrées par les différents lasers à excimères (ArF, KrF, XeCl, XeF), il apparaît que seules les émissions à  $\lambda = 308 \text{ nm}$  (XeCl) et à  $\lambda = 351 \text{ nm}$  (XeF) sont susceptibles d'être transmises (de façon efficace) dans les fibres à coeur en silice.

Nous avons montré qu'une fibre longue de 10 m, convenablement excitée, pouvait transmettre 75% de l'énergie d'une impulsion lumineuse émise à faible puissance à 308 nm. Il n'apparaît pas de déformation significative de la forme temporelle d'impulsions délivrées dans le domaine nanoseconde. A forte puissance, le phénomène de fracture optique localisé sur la face d'entrée de la fibre constitue le principal facteur limitant l'efficacité de la transmission d'énergie. Nous avons, par ailleurs, montré que les effets non-linéaires s'avèrent improbables dans les conditions courantes d'utilisation des fibres en médecine. Seul le risque d'apparition d'une absorption à deux photons n'a pu être évalué du fait de l'absence de données expérimentales indiscutables concernant les valeurs des coefficients d'absorption non-linéaires à 308 nm.

**CHAPITRE I**

**DEUXIEME PARTIE**

**ETUDE EXPERIMENTALE DE LA TRANSMISSION  
D'IMPULSIONS LASERS ULTRAVIOLETES ( $\lambda = 308$  nm)  
DANS DES FIBRES OPTIQUES MULTIMODES**



## I.B.1 - CARACTERISTIQUES TECHNIQUES DES MATERIELS UTILISES

### I.B.1-1 - La source laser

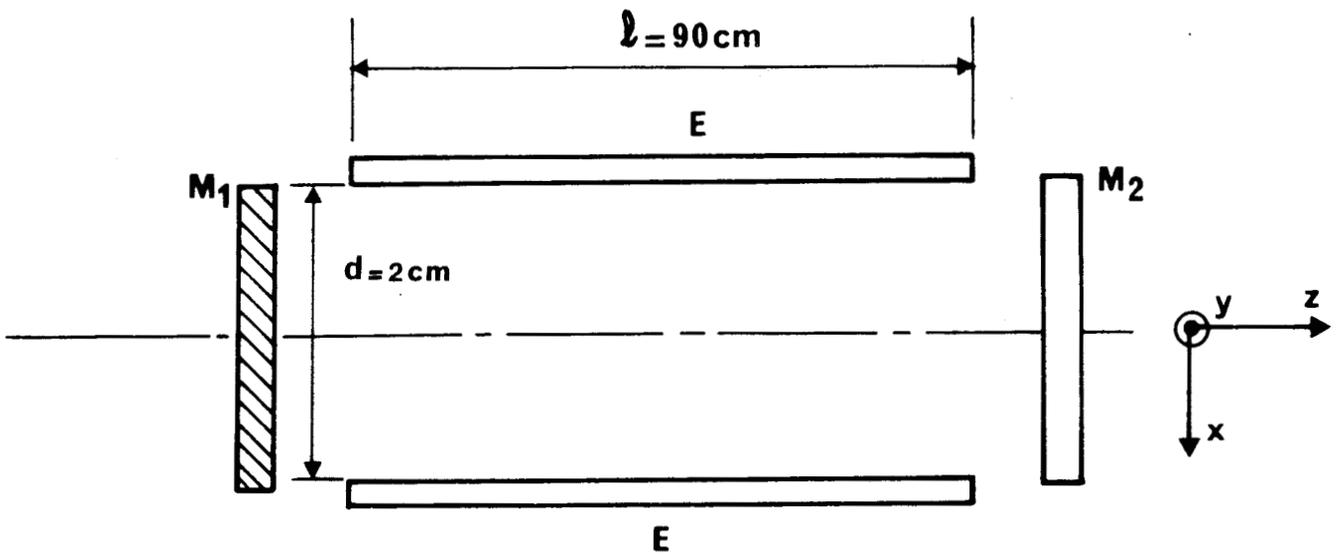
La source laser ultraviolette utilisée dans cette étude est constituée par un laser à excimère XeCl, acquis par le Laboratoire en 1986 (SOPRA, modèle 1250 E 20). Nous rappelons d'abord brièvement le principe de son fonctionnement.

Le milieu amplificateur est constitué par un mélange de gaz HCl, Ar, Ne, Xe, réalisé selon des proportions établies par le constructeur (tableau I.5). Ce mélange gazeux est placé dans une cavité résonnante montée en configuration plan-plan (figure (I.17)). Le pompage est réalisé par une décharge électrique haute tension, établie transversalement entre deux électrodes parallèles en nickel, disposées de part et d'autre de l'axe de la cavité. La décharge crée des molécules de gaz rare halogène XeCl\* dans un état électronique excité, en inversion de population avec l'état fondamental dissociatif. Cette inversion de population constitue la source de l'amplification optique.

La distribution spectrale d'énergie de l'émission laser, relevée avec une résolution de 0,05 nm au moyen d'un monochromateur à réseau, est représentée sur la figure (I.18). L'émission laser se compose de deux raies, séparées de 0,25 nm. Une étude réalisée avec un spectromètre de résolution plus élevée montre que la largeur spectrale de chaque raie est égale à environ  $\Delta\lambda \simeq 0.02$  nm [36]. L'évolution temporelle du flux lumineux transporté par l'impulsion laser est représentée sur la figure (I.19). Cet enregistrement a été effectué au moyen d'un photomultiplicateur (Hamamatsu

Nature de gaz		Proportion (mbar)
Milieu amplificateur	HCl	(dilué à 5 % dans He) 100
	Xe	50
Gaz tampon	Ar	850
	Ne	300

Tableau I.5 - Nature et proportions des constituants gazeux composant le milieu amplificateur du laser à excimère XeCl utilisé dans l'étude expérimentale.



- $M_1$  : miroir plan réflecteur à  $\sim 100 \%$
- $M_2$  : miroir plan réflecteur à  $\sim 8 \%$
- $E$  : électrode de décharge en nickel

Figure I.17 - Schéma de la configuration de la cavité laser.

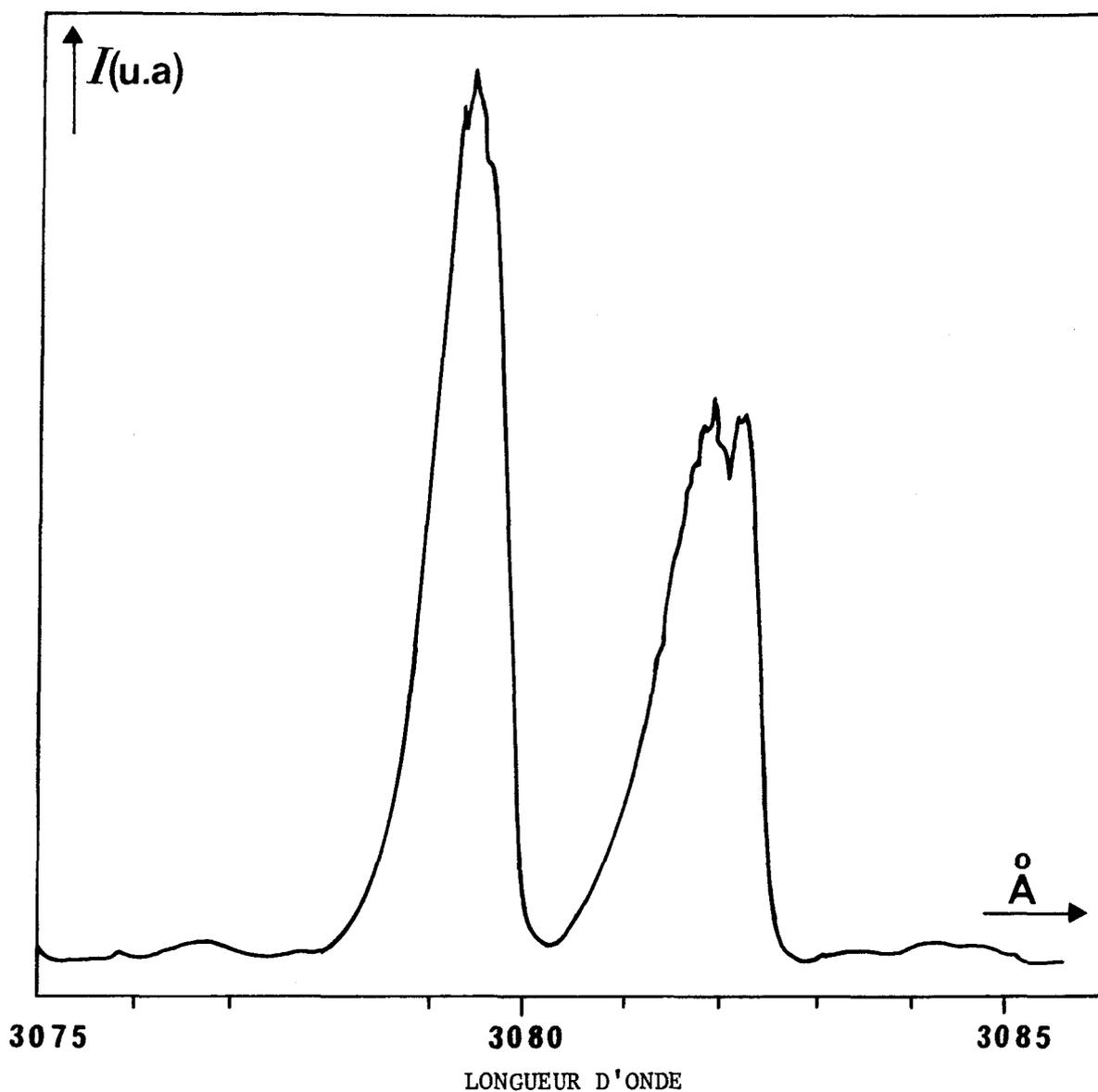


Figure I.18 - Distribution spectrale de l'énergie transportée par l'impulsion délivrée par le laser à excimère XeCl (résolution 0,05 nm).

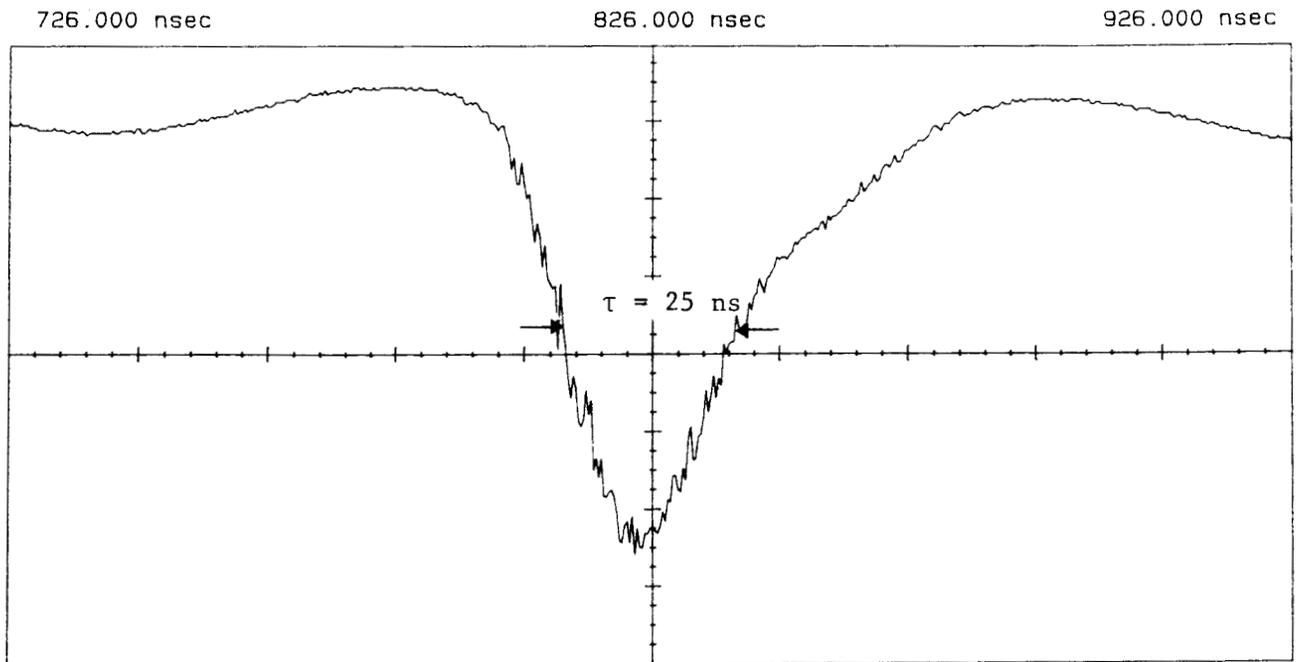


Figure I.19 - Distribution temporelle de l'énergie transportée par l'impulsion laser ultraviolette.

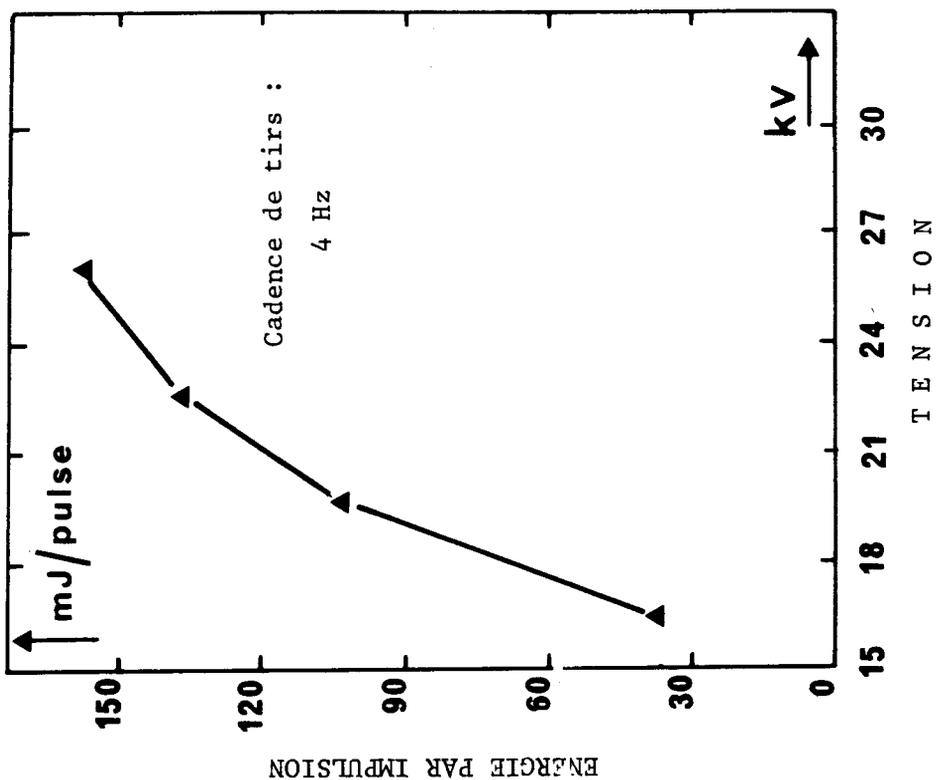


Figure I.20 - Evolution de l'énergie délivrée par impulsion en fonction de la haute tension appliquée aux bornes des électrodes de décharge.

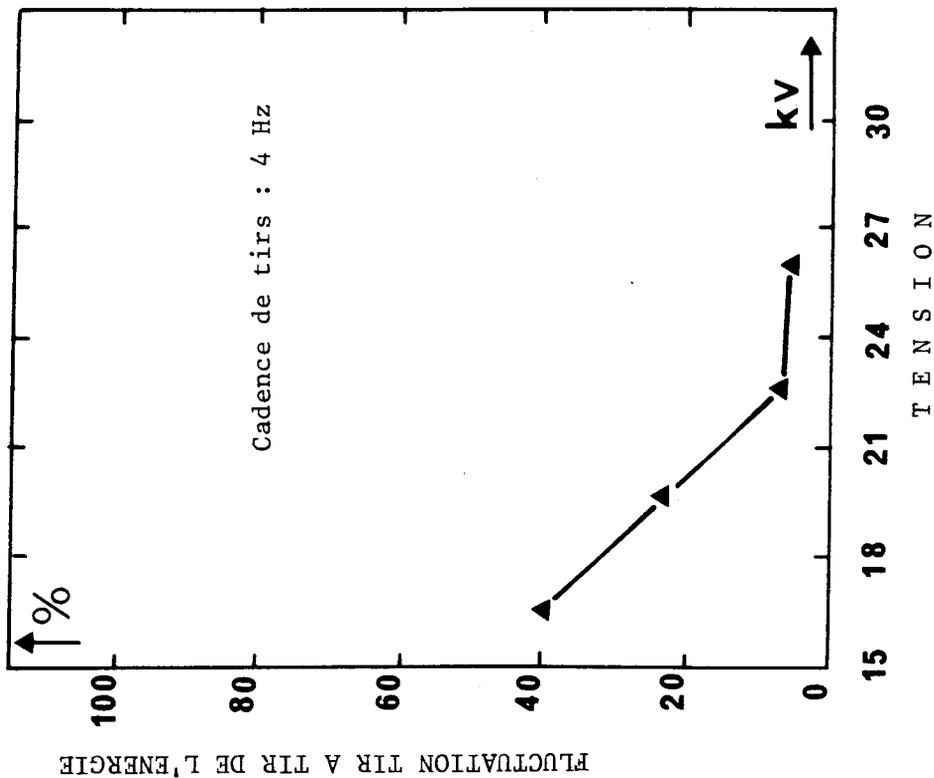


Figure I.21 - Variation de la fluctuation de l'énergie tir à tir en fonction de la haute tension appliquée aux bornes des électrodes de décharge.

R955, temps de montée 2,2 ns), et d'un oscilloscope (Hewlett-Packard 54100A, bande passante 1 GHz). La durée de l'impulsion  $\tau = 25$  ns correspond à la largeur totale de la courbe mesurée à mi-hauteur. L'énergie maximale par impulsion,  $E_{p_{max}}$ , que peut délivrer le laser est égale à 160 mJ. Nous définissons la puissance crête P de l'impulsion par la relation (I.43) :

$$(I.43) \quad P = \frac{E_p}{\tau}$$

Pour l'énergie maximale  $E_{p_{max}}$  délivrée par impulsion (160 mJ), la puissance crête est donc égale à 6,4 MW. Ces valeurs maximales sont obtenues lorsque la haute tension appliquée entre les électrodes de décharge est maximale (= 27 kV), et lorsque le mélange gazeux vient d'être réalisé. En effet, l'énergie contenue dans chaque impulsion décroît avec le nombre de tirs effectués. Après  $10^7$  tirs environ, l'énergie maximale par impulsion est de l'ordre de 20 mJ. Le mélange gazeux doit alors être renouvelé. Les impulsions laser sont générées à une cadence de tir ajustable entre 0 et 20 Hz. La valeur de l'énergie par impulsion  $E_p$  croît avec la haute tension appliquée aux bornes des électrodes selon la courbe représentée sur la figure (I.20). La fluctuation tir à tir de la valeur de l'énergie transportée par une impulsion est représentée en fonction de la haute tension appliquée entre les électrodes sur la figure (I.21). La fluctuation est estimée au moyen d'un paramètre R défini par la relation (I.44)

$$(I.44) \quad R = \frac{\hat{\sigma}}{\frac{1}{N} \sum_1^N V_n}$$



Figure I.22.a : Conditions expérimentales -  $E_p = 140$  mJ/impulsion  
cadence de tirs : 4 Hz



Figure I.22.b : Conditions expérimentales - nombre de tirs : 20  
cadence de tirs : 4 Hz

Figure I.22 - Impacts du faisceau laser photographiés en sortie de la cavité laser.

Pour mesurer  $R$ , nous avons éclairé un détecteur PIN par le flux laser considérablement atténué de façon à garantir la linéarité de la chaîne de mesure. La tension  $V_n$  délivrée par le détecteur était mesurée à chaque tir au moyen d'un oscilloscope. La moyenne des tensions  $\frac{1}{N} \sum_1^N V_n$  a été effectuée sur  $N = 50$  tirs, de façon à calculer l'écart-type  $\hat{\sigma}$  intervenant dans la relation (I.44). Il apparaît sur la figure (I.21) que la fluctuation des tirs est d'autant plus faible que la tension appliquée aux bornes des électrodes est plus importante (cadence des tirs 4 Hz).

En conséquence, lors de nos expériences, nous avons toujours appliqué une valeur de tension entre les électrodes voisines de 25 kV. Nous avons, lorsque cela s'est avéré nécessaire, atténué le faisceau au moyen d'atténuateurs optiques.

L'amplification optique se produit à l'intérieur de la cavité laser dans un volume gazeux présentant sensiblement la forme d'un parallélépipède rectangle. De ce fait, l'énergie lumineuse transportée par le faisceau ultraviolet est limitée en sortie de cavité à une pupille de forme rectangulaire, de dimension  $2,2 \times 1,1 \text{ cm}^2$ . La figure (I.22) représente les impacts du faisceau laser photographiés en sortie de cavité sur un papier photosensible au rayonnement ultraviolet. Sur la figure (I.22a), l'énergie par impulsion est fixée à 140 mJ et le nombre de tirs constitue le paramètre de l'expérience. Les photographies de la figure (I.22b) correspondent à une moyenne effectuée sur 20 tirs pour des valeurs croissantes de l'énergie par impulsion, contrôlées au moyen de la haute tension appliquée aux bornes des électrodes. Qualitativement, ces figures font apparaître le caractère inhomogène de la distribution spatiale d'intensité du faisceau.

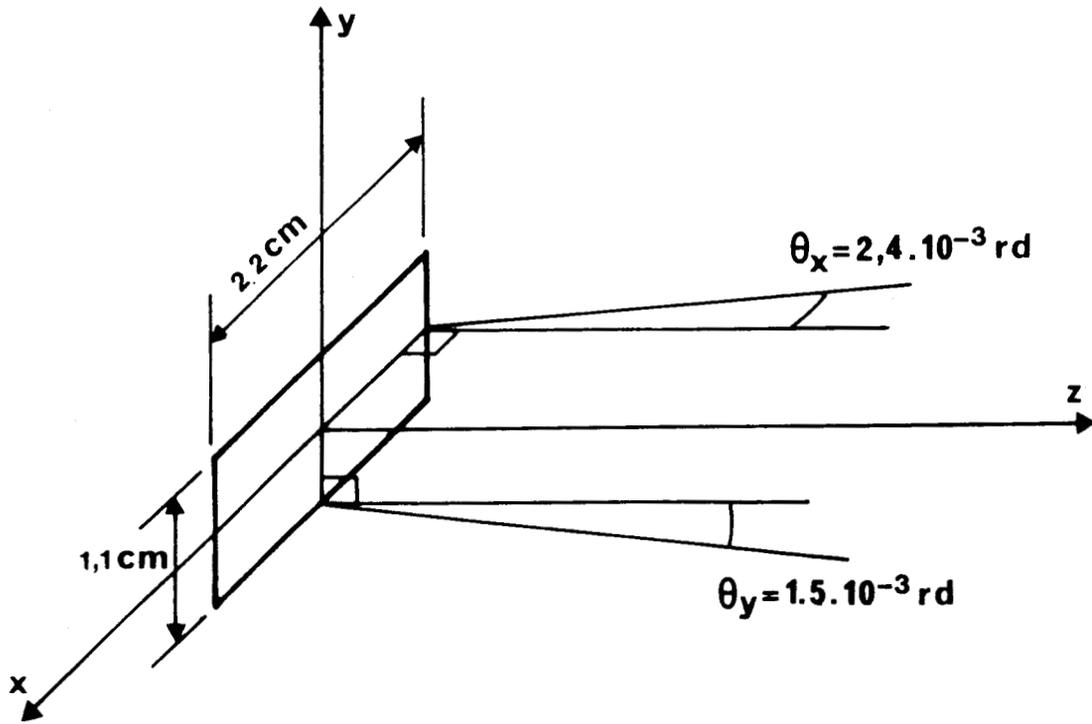


Figure I.23 - Caractéristiques spatiales du faisceau délivré par le laser excimère XeCl.

Comme l'indique la figure (I.23), le demi-angle de divergence\*  $\theta_x = 2,4 \cdot 10^{-3}$  rd, associé à la dimension horizontale ( $L_x = 2,2$  cm) du rectangle est plus grand que le demi-angle  $\theta_y = 1,5 \cdot 10^{-3}$  rd, associé à la dimension verticale ( $L_y = 1,1$  cm). Ce résultat s'explique par le caractère multimodal transverse de l'émission laser.

### I.B.1-2 - Les fibres

Pour les raisons présentées dans le paragraphe I.A, nous avons choisi d'utiliser exclusivement des fibres dont le coeur est constitué en silice fondue de grande pureté. Les fibres que nous avons retenues appartiennent à trois catégories, représentatives des fibres commercialement disponibles en 1987. Elles sont vendues sous les dénominations : PCS, HCS et ST-U. Ces catégories de fibres se différencient entre elles par la nature du matériau constituant la gaine optique : silicone pour les fibres PCS, polymère durci pour les fibres HCS, silice dopée au fluor pour les fibres ST-U. Ces dernières possèdent une gaine supplémentaire (buffer) en silicone entourant la gaine primaire en silice dopée. Les trois types de fibres sont pourvues d'un revêtement extérieur en plastique, assurant à la fibre une

---

\* Les valeurs de  $\theta_x$  et de  $\theta_y$  ont été mesurées en déterminant les dimensions  $L'_x$  et  $L'_y$  de la pupille limitant le faisceau à une distance  $d$  de la cavité ( $d = 5$  m). A cet effet un papier photographique était placé perpendiculairement à l'axe de propagation du faisceau. Les valeurs de  $\theta_x$  et  $\theta_y$  sont alors données par la formule (I.45) :

$$(I.45) \quad \begin{cases} \theta_x = \frac{L'_x - L_x}{2d} \\ \theta_y = \frac{L'_y - L_y}{2d} \end{cases}$$

Dénomination	Fabricant	Teneur en ions OH du coeur ppm	Coeur		Gaine		Buffer		Revêtement		O.N.	Rayon minimal de courbure mm	Atténuation à 308 nm dB/km		
			Matériau constitutif	Diamètre											
P.C.S.	Quartz et Silice	300	Silice	200	Silicone	380	NEANT		ETFE*	600	0.4	25	300		
				600		750					1060	0.4		90	
				1000		1260						1550		0.4	150
H.C.S.	Ensign Bickford	HCS : 30 HCSW : 600	Silice	200	Polymère dur	230	NEANT		Tefzel	500	0.37	10	250		
				400		430					730	0.37		40	
				600		630						1040		0.37	120
				1000		1035						1400		0.37	200
ST-U	Mitsubishi Cable Industries	400	Silice	200	Silice dopée (fluor)	250	Silicone	460		1000	0.2	75	110		
				400		500					1300	0.2		135	
				600		750						1700		0.2	300
				800		1000						2000		0.2	-

Tableau I.6 - Caractéristiques techniques des fibres utilisées dans l'étude expérimentale (d'après les fabricants).

★ Polytetrafluorethylène

protection contre les agressions chimiques et mécaniques. Le tableau I.6 réunit l'ensemble des caractéristiques techniques de ces fibres, fournies par les fabricants. Les fibres HCS et HCSW se distinguent l'une par rapport à l'autre par la concentration en ions  $\text{OH}^-$  contenus dans le coeur (30 ppm pour les fibres HCS, 600 ppm pour les fibres HCSW). L'atténuation des fibres varie du simple au triple en fonction de leur nature. L'atténuation la plus faible correspond aux fibres dont la gaine est réalisée en silice dopée. Les rayons de courbure minima constituent selon les constructeurs, une limite qu'il est nécessaire de ne pas franchir en cours d'utilisation ou lors du stockage de la fibre.

## **I.B.2 - COUPLAGE DU FAISCEAU LASER DANS LA FIBRE**

### **I.B.2-1 - Position du problème**

La maîtrise du couplage du faisceau lumineux délivré par le laser excimère à XeCl dans des fibres optiques pose différents problèmes d'ordre pratique.

Il est tout d'abord nécessaire de préparer correctement les faces d'entrée et de sortie des fibres. A cet effet nous avons mis au point un ensemble de techniques de préparation et de contrôle des extrémités de fibre que nous décrivons dans le paragraphe I.B.2.2.

La qualité optique médiocre du faisceau et les valeurs élevées des fluences mises en jeu (qui s'avèrent le plus souvent supérieures aux fluences seuil de fracture optique de la fibre) constituent la principale source de difficultés expérimentales. En effet, il peut paraître, a priori, possible d'injecter simplement le faisceau laser dans la fibre en plaçant le coeur de la fibre au foyer image d'une lentille plan-convexe dont la distance focale serait

choisie de façon à ce que les dimensions du spot de focalisation soient légèrement inférieures au diamètre du coeur de fibre. L'étendue optique d'acceptance des différentes fibres présentées dans le tableau I.6 est toujours supérieure à l'étendue optique du faisceau laser\*. La loi de conservation de l'étendue optique des faisceaux lumineux à la traversée de tout système optique [37] implique donc que la totalité des rayons lumineux contribuant à la formation du spot de focalisation tombent sur le coeur de la fibre sous une incidence inférieure à l'angle critique  $\theta_{0c}$  (relation (I.3)). Ces rayons se trouvent de ce fait guidés dans la fibre (relation (I.31)). Cependant, l'existence du phénomène de fracture optique implique que cette façon de procéder n'optimise pas l'efficacité du couplage. En effet, le faisceau U.V. est focalisé par la lentille plan-convexe selon un spot de forme sensiblement elliptique dont la distribution spatiale d'éclairement s'avère fortement inhomogène. Ces conditions de focalisation ne permettent donc pas d'obtenir une fluence minimale pour une énergie par impulsion donnée. Il faut donc former un spot de forme circulaire de dimensions sensiblement égales à celles du coeur de la fibre, et présentant une distribution spatiale d'énergie la plus homogène possible.

En partant de ces considérations, nous avons essayé deux montages optiques de conceptions très différentes que nous décrirons dans les paragraphes I.B.2-4 et I.B.2-5. Le premier montage utilise deux lentilles cylindriques qui per-

---

\* L'étendue optique d'acceptance de la fibre peut se définir [6] par la relation :

$$EO_{\text{fibre}} = \text{Aire du coeur} \times \Pi \times \sin^2 \theta_{0c}$$

L'étendue optique du faisceau laser est inférieure à  $3,6 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^2 \cdot \text{stéradian}$ .

mettent de réaliser l'anamorphose du faisceau. Dans le deuxième montage, une simple lentille sphérique fait l'image, sur le coeur de la fibre, d'un diaphragme circulaire disposé sur le faisceau laser. Nous avons comparé les performances des deux montages en mesurant les dimensions des spots formés, et en évaluant l'homogénéité spatiale de leur distribution d'éclairement. Nous avons pour cela procédé à des enregistrements photométriques de la répartition de l'intensité dans les spots en utilisant un montage décrit dans le paragraphe I.B.2-3.

### **I.B.2-2 - Préparation et contrôle des extrémités de fibre**

#### **I.B.2-2-1 - Préparation des extrémités de fibre**

Plusieurs précautions doivent être prises lors de la préparation des extrémités de fibre :

i) Les fibres doivent être préparées de façon à ce que l'interface air-coeur de fibre soit aussi proche que possible d'un dioptre plan parfait. La présence de défauts sur la face d'entrée de la fibre, (tels que par exemple, des inclusions, des microfractures ou des rayures), se traduit par une diminution du seuil de fracture optique de la fibre [17]. Une bonne planéité de la face d'entrée permet d'éviter l'apparition de phénomènes de focalisation susceptibles d'intervenir sur des dioptres courbes.

ii) La face d'entrée de la fibre ne doit pas diffuser la lumière laser incidente afin de limiter les pertes à l'injection.

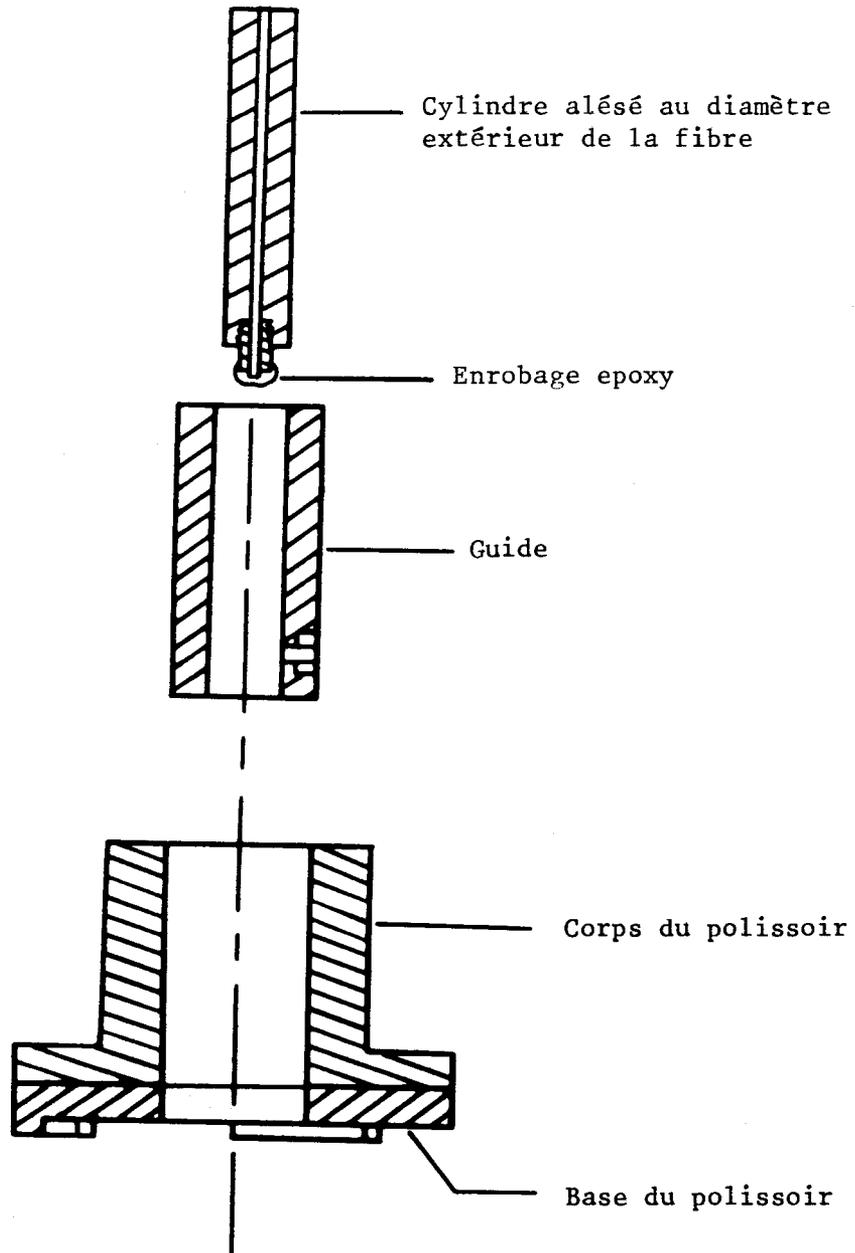


Figure I.24 - Vue en coupe, simplifiée, du dispositif de polissage des faces de fibre.

iii) la face d'entrée doit également être perpendiculaire à l'axe de la fibre. Cette dernière précaution permet d'améliorer la maîtrise des paramètres du couplage.

Deux techniques sont couramment utilisées dans les laboratoires pour la préparation des extrémités de fibre :

a) le clivage de la fibre. Le revêtement protecteur de la fibre est enlevé, puis l'amorce d'une fracture est réalisée en marquant délicatement la gaine de la fibre au moyen d'un outil (lame en carbure de tungstène ou en alumine). L'action d'une traction sur la fibre légèrement courbée provoque la propagation d'une fracture perpendiculairement à l'axe de la fibre depuis le point d'amorce [38]. Cette méthode présente l'avantage de produire rapidement des surfaces exemptes de souillures.

Elle s'avère bien adaptée\* pour des fibres de diamètre de coeur inférieur à 400  $\mu\text{m}$  [38]. Au-delà de 400  $\mu\text{m}$ , le clivage s'avère plus délicat : la surface clivée n'est plus parfaitement plane et présente parfois des défauts (sur-épaisseur ou crevasse), qui peuvent être toutefois rectifiées par l'opération de polissage.

b) le polissage de la fibre. Nous avons choisi d'utiliser systématiquement cette méthode afin d'uniformiser le mode de préparation des différentes fibres. Les erreurs

---

\* L'extrémité des fibres PCS ne peut pas être préparée de façon satisfaisante à partir d'une simple opération de clivage. En effet, pour ces fibres, l'amorce de rupture doit se faire directement sur le coeur de la fibre et non pas sur la gaine optique, comme c'est le cas pour les autres types de fibre.

systematiques provenant de la préparation de la fibre sont ainsi réduites au minimum et n'interviennent alors pas dans l'analyse des résultats concernant la détermination des seuils de fracture.

Dans tous les cas (à l'exception cependant des fibres à gaine en silice), le revêtement protecteur en plastique, puis la gaine optique sont tout d'abord enlevés sur une longueur d'environ 2 cm. Le coeur de la fibre ainsi dénudée est clivée à 5 mm du bord du revêtement. La fibre est alors introduite dans l'alésage d'un support constituant la pièce mobile d'un polissoir réalisé selon le schéma représenté sur la figure (I.24). Le diamètre de l'alésage est adapté au diamètre extérieur de la fibre. La tolérance sur la perpendicularité de la fibre avec le plan de polissage est estimée à 1' d'arc. Une longueur de fibre d'environ 6 mm dépasse du support. Elle est enduite d'un enrobage (de 4 mm de diamètre), constitué d'une résine-époxy chargée en silice.

Le support est placé dans le polissoir. Un premier polissage, réalisé avec un émeri à gros grain (toile émeri n°3/0), permet de réduire l'épaisseur de l'enrobage résine-fibre d'environ 4,5 mm. Le polissage est ensuite effectué avec des papiers abrasifs à grain d'alumine de plus en plus fins (diamètre de grains 9  $\mu\text{m}$ , 3  $\mu\text{m}$ , 0.3  $\mu\text{m}$ ) lubrifiés avec de l'alcool. Le polissoir est nettoyé à l'alcool à chaque changement de papier abrasif. Après le polissage, la fibre reste collée au support par une épaisseur de 1mm qui s'applique sur son revêtement protecteur. L'adhérence de la fibre à la résine est faible, si bien que l'on peut la séparer de son support sans endommager le coeur optique.

**I.B.2-2-2 - Contrôle des extrémités de fibre.**

Deux contrôles optiques du coeur de la fibre permettent d'estimer la qualité de l'état de surface. Un examen visuel est tout d'abord effectué à l'aide d'un microscope x200 (ON = 0,4). Lorsque le protocole de polissage est correctement réalisé, la face d'entrée de la fibre ne présente pas de défauts apparents. Si nous admettons que le pouvoir de résolution du microscope fixe l'ordre de grandeur du diamètre minimal  $\Delta x_{min}$  d'objets contrastés qu'il est possible de discerner avec le microscope, l'application numérique effectuée à partir de la relation approchée (I.46) [39] montre que les défauts résiduels présentent des dimensions typiquement inférieures à 0,8  $\mu\text{m}$ .

$$(I.46) \quad \Delta x_{min} \simeq \frac{0,6 \cdot \lambda}{ON} \quad (\lambda = 0,55 \mu\text{m})$$

La qualité de la planéité de la surface optique est ensuite contrôlée au moyen d'un interféromètre de Michelson modifié, commercialisé par la Société Ealing [40]. Dans le montage représenté sur la figure (I.25), la face d'entrée de la fibre remplace l'un des miroirs de l'interféromètre de Michelson. L'interféromètre, réglé en coin d'air au voisinage de la différence de marche nulle, est éclairé par une source monochromatique étendue (lampe spectrale au sodium). Les franges sont localisées près de la face de la fibre, et sont observées au moyen d'un microscope (x 200). Tout défaut de planéité (bosse ou creux), se traduit par un défaut de la rectitude des franges. Dans la plupart des cas, les franges, d'interfranges  $i$ , apparaissent rectilignes, ce qui indique que la planéité est meilleure que  $\lambda/4$  (ce chiffre est calculé en supposant que nous pouvons estimer à l'oeil des écarts à la rectitude de l'ordre de 0,5  $i$  sur le diamètre du champ de visée).

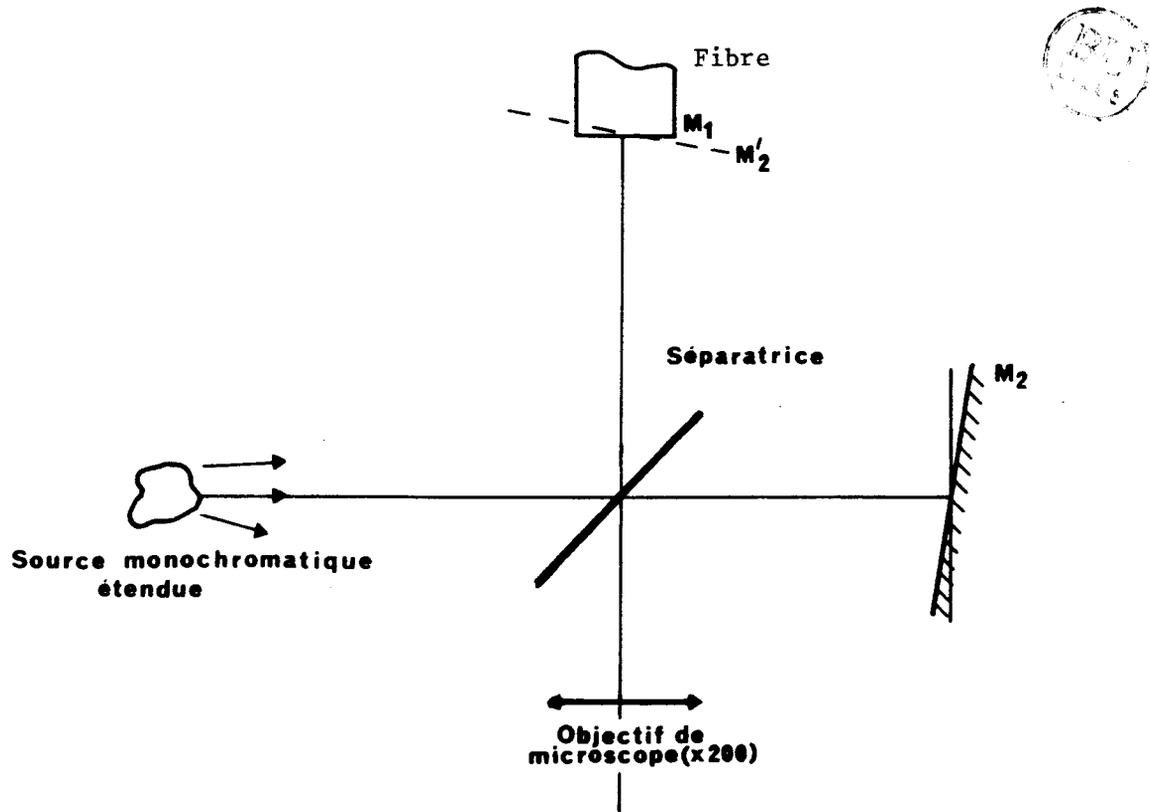


Figure I.25 - Dispositif de contrôle de la planéité des faces des fibres.



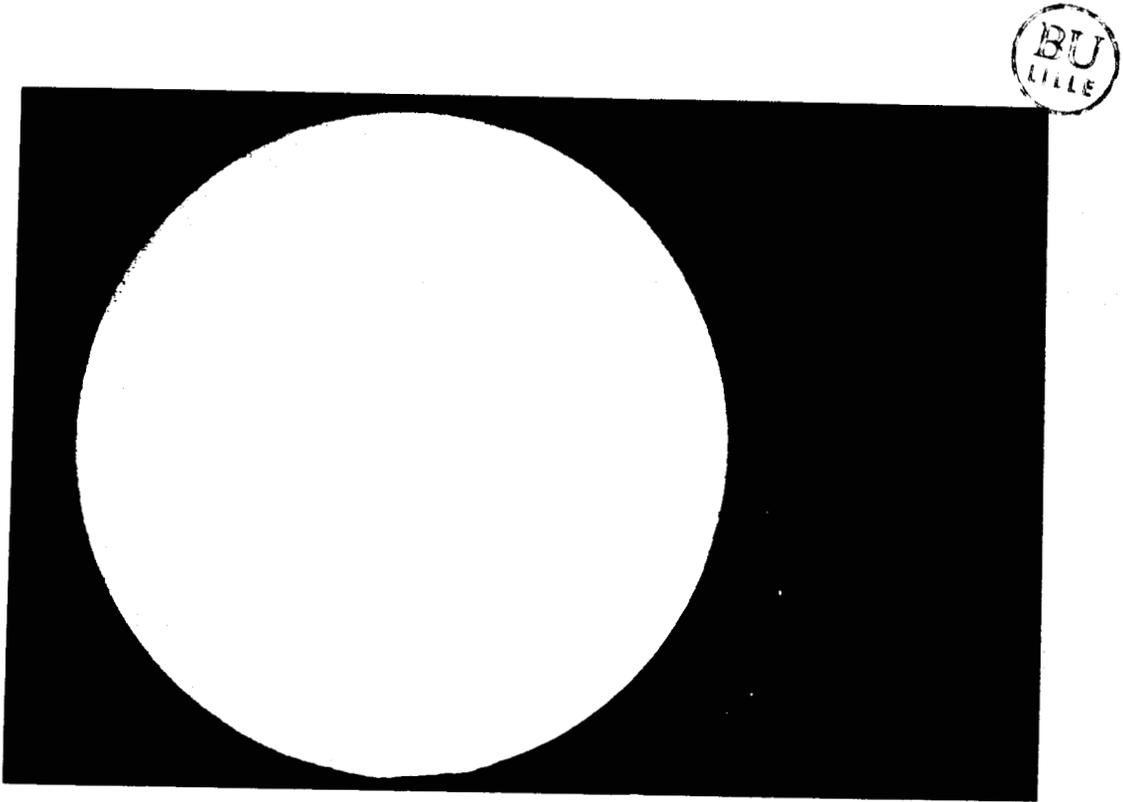


Figure I.26 - Exemple d'une face de fibre obtenue après polissage (STU-200) (X 450)

Après ces contrôles, le revêtement protecteur des fibres, la gaine optique (fibres PCS et HCS) ou le cas échéant le buffer (fibres STU), sont délicatement enlevés sur une longueur de 30 mm. Un dernier examen au microscope permet de vérifier que cette dernière manipulation n'a pas détérioré la qualité de surface du coeur de la fibre et qu'aucune particule solide ne s'y est déposée (figure (I.26)).

### **I.B.2-3 - Dispositif d'enregistrement des distributions spatiales d'énergie dans les spots**

Les distributions spatiales d'énergie dans les spots ont été enregistrées en déplaçant dans le plan du spot selon  $x$  et  $y$ , un diaphragme circulaire de petites dimensions ( $\varnothing = 35 \mu\text{m}$ ) solidaire d'un photomultiplicateur. Le schéma de l'expérience est représenté sur la figure (I.27). Pour éviter de saturer la réponse du photomultiplicateur, deux miroirs  $M_1$  et  $M'_1$  sont placés en sortie de cavité à  $45^\circ$  de l'axe de propagation du faisceau. Chaque miroir réfléchit plus de 99,9% de l'intensité incidente vers des obstacles absorbants. On admet que leur qualité optique est suffisante pour ne pas dégrader les propriétés de cohérence spatiale du faisceau. L'impulsion électrique délivrée par le photomultiplicateur est amplifiée avant d'être envoyée dans un circuit intégrateur à porte. L'intégrateur délivre ainsi une tension proportionnelle à la valeur moyenne du flux lumineux incident sur le diaphragme  $\varnothing$ . La moyenne est effectuée sur un temps de 1s, c'est-à-dire sur 20 tirs laser si la cadence de tirs est fixée à 20 Hz\*.

---

\* La prise de moyenne ne permet bien sûr pas de mettre en évidence d'éventuelles fluctuations temporelles rapides de l'intensité du faisceau.

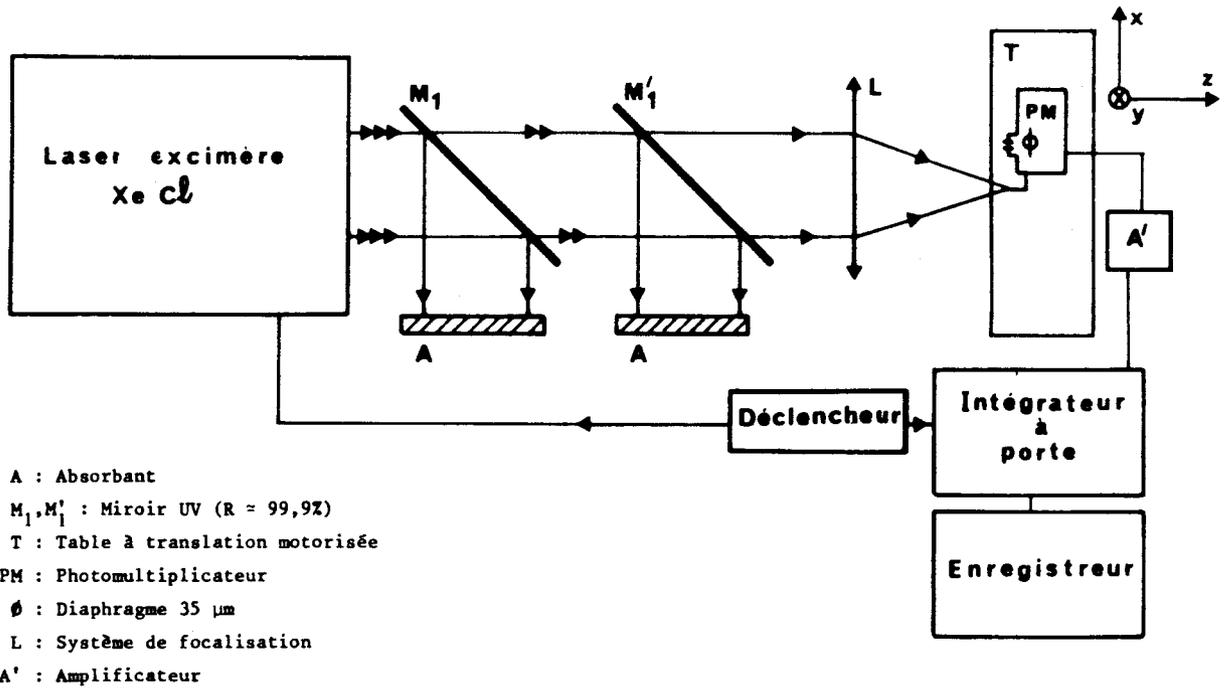


Figure I.27 - Dispositif expérimental utilisé pour relever les distributions spatiales d'énergie des spots formés par les systèmes de focalisation testés.

L'homogénéité spatiale de la distribution d'énergie lumineuse du spot peut s'estimer par une approche statistique. On peut, par exemple, réaliser un pavage régulier du spot selon N points M de coordonnées  $(x_i, y_j)$ . On mesure ensuite l'éclairement  $I(x_i, y_j)$  pour les différents points M du pavage. On définit l'intensité moyenne  $\bar{I}$  du faisceau sur les N points par :

$$(I.47) \quad \bar{I} = \frac{1}{N} \sum_i \sum_j I(x_i, y_j)$$

La variance  $\hat{\sigma}^2$  de la distribution d'éclairement sur le spot est donnée par la relation (I.48).

$$(I.48) \quad \hat{\sigma}^2 = \frac{1}{N} \sum_i \sum_j (I(x_i, y_j) - \bar{I})^2$$

L'intensité  $I(x_i, y_j)$  est mesurée à un facteur de proportionnalité près, si l'on suppose que la réponse de la chaîne de mesure est linéaire. Il est donc commode d'introduire une variance normalisée  $\hat{\sigma}'^2$  définie par :

$$(I.49) \quad \hat{\sigma}'^2 = \frac{\hat{\sigma}^2}{I_{\max}^2}$$

Le calcul de la variance normalisée a été réalisée par voie informatique à partir des données numérisées. Une première estimation de l'homogénéité de la distribution spatiale de l'intensité du spot se déduit de la valeur de  $\hat{\sigma}'^2$  : le faisceau est d'autant plus homogène que la variance  $\hat{\sigma}'^2$  est faible. La portée de ce test reste cependant assez limitée, dans la mesure où il ne prend pas en compte l'existence éventuelle de pics de surintensité pouvant survenir localement en un point du spot. Notons que la corrélation entre différents enregistrements effectués dans des conditions

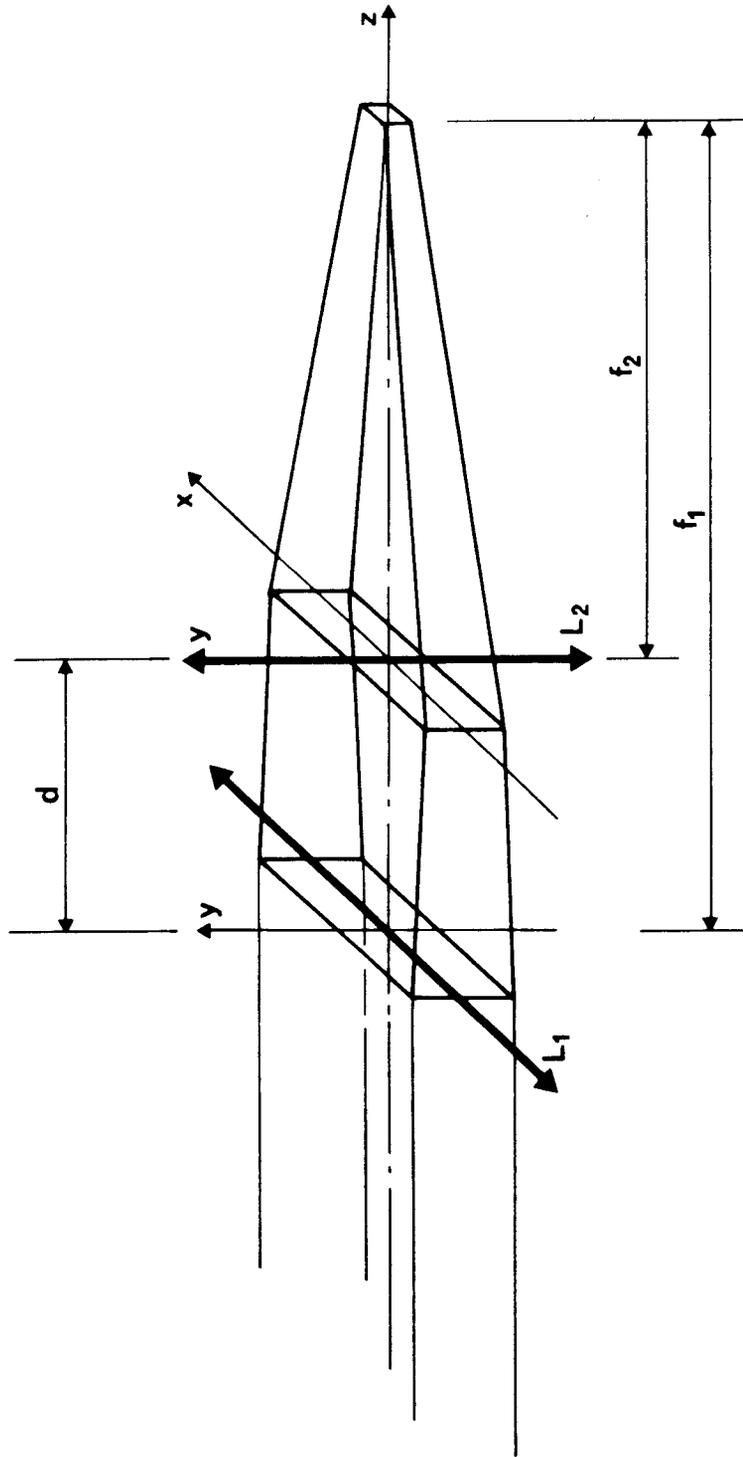


Figure I.28 - Représentation schématique d'un système d'anamorphose par deux lentilles cylindriques.

expérimentales similaires est bonne et conduit à des mesures des dimensions des spots reproductibles à 10% près.

**I.B.2-4 - Anamorphose du faisceau ultraviolet par deux lentilles cylindriques.**

Le faisceau laser représenté sur la figure (I.23) peut être focalisé en un spot de forme carrée de côté  $h$ , par l'association de deux lentilles cylindriques  $L_1$  et  $L_2$ , de distances focales respectives  $f_1$  et  $f_2$ . Les lentilles, assimilées à des lentilles minces, doivent être disposées comme l'indique le schéma de la figure (I.28). Les axes des lentilles sont croisés. Les distances focales vérifient la relation (I.50) :

$$(I.50) \quad \left\{ \begin{array}{l} \frac{h}{2} = f_2 \cdot \theta_x = f_1 \cdot \theta_y \\ \frac{f_1}{f_2} = \frac{\theta_x}{\theta_y} = 1.6 \end{array} \right.$$

Les lentilles cylindriques sont séparées d'une distance  $d = f_1 - f_2$ , si bien que leurs plans focaux images sont confondus.

Pour réaliser l'essai de ce montage nous n'avions pas à notre disposition de lentilles cylindriques dont les distances focales vérifiaient rigoureusement la relation (I.50). A défaut, nous avons utilisé deux lentilles cylindriques de distances focales respectives 15 cm et 10 cm. Nous avons ajusté la distance  $d$  de façon à obtenir un spot sensiblement carré au voisinage du plan focal de  $L_2$ .

En procédant comme indiqué au paragraphe I.B.2-3, nous avons enregistré la distribution spatiale d'éclairement du spot



(figure (I.29a)). Les dimensions du spot sont égales à  $240 \mu\text{m} \times 260 \mu\text{m}$ . La variance  $\hat{\sigma}'^2$ , définie par la relation (I.48) est égale à  $1.9.10^{-2}$ .

Ce système d'anamorphose semble donc convenir pour obtenir un spot de forme sensiblement carré.

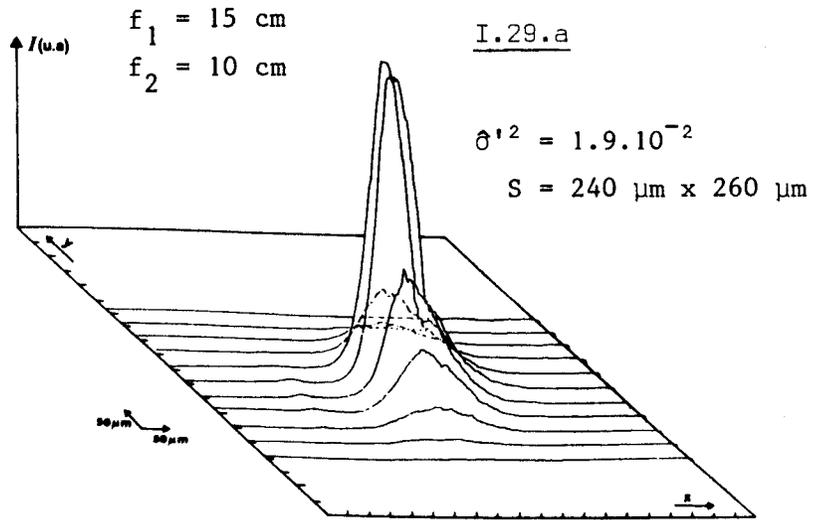
Ce système présente cependant un inconvénient. Les dimensions du spot sont fixées par le choix des distances focales  $f_1$  et  $f_2$ . Il est donc nécessaire de disposer de plusieurs associations de lentilles cylindriques, coûteuses, pour obtenir des spots de dimensions adaptées à celles du coeur des fibres données dans le tableau I.6.

### **I.B.2-5 - Couplage au moyen d'une lentille sphérique**

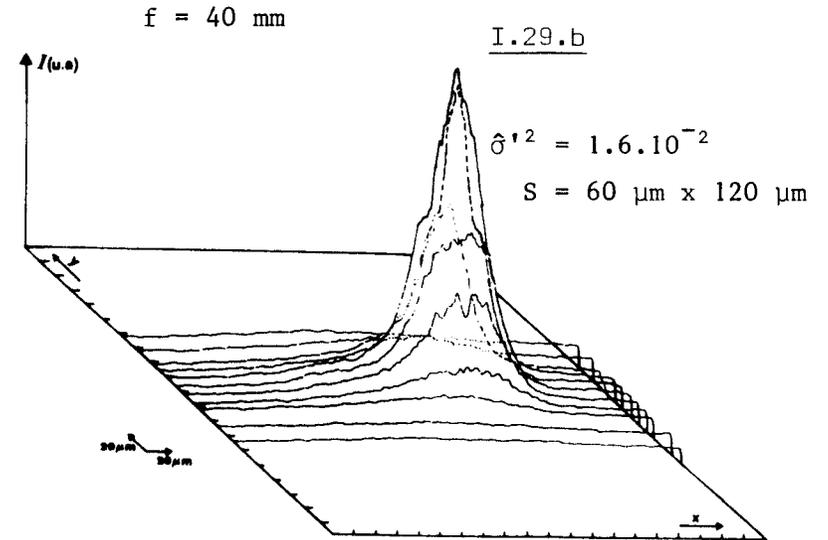
#### **I.B.2.5.1 - Principe du montage**

Le schéma de principe a été présenté précédemment dans le paragraphe I.A.1.3.4 (figure (I.7)). Une lentille convexe L de distance focale  $f$ , que l'on assimile à une lentille mince, forme l'image de dimension  $\varnothing'_2$  d'un diaphragme à ouverture circulaire de diamètre variable  $\varnothing_2$ , placé à la distance  $p$  de la lentille. Le diaphragme est disposé sur la partie du faisceau pour laquelle la distribution d'énergie présente la meilleure homogénéité (carré d'environ 11 mm de côté correspondant à la partie droite des impacts représentés sur la figure (I.22)). Sur cette portion de la section transverse du faisceau, la décroissance du flux selon l'axe  $\vec{Ox}$  (flux enregistré en déplaçant un diaphragme de 0,5 mm selon  $\vec{Ox}$ ) est monotone et reste inférieure à 20%. Nous pouvons estimer que 65% de l'énergie totale transportée par impulsion (soit environ 100 mJ) sont contenus dans ce carré. La fibre est placée dans le plan image de  $\varnothing_2$  par la

### Lentilles cylindriques



### Lentille sphérique



### Lentille sphérique

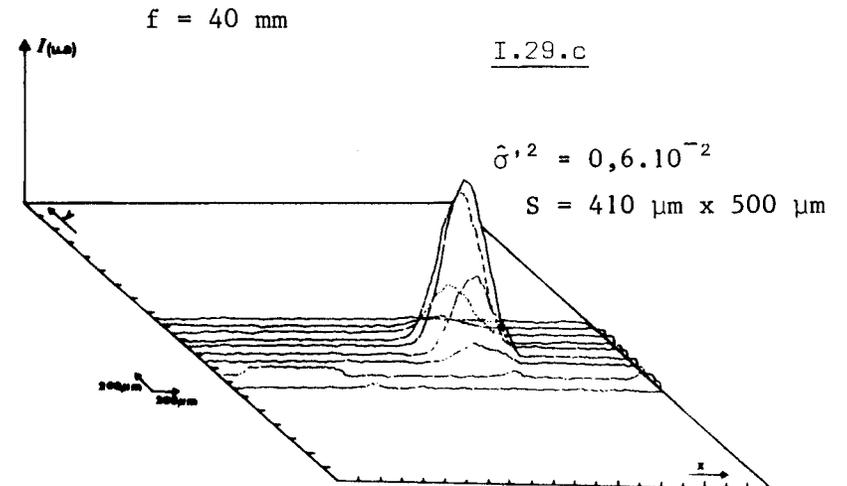


Figure I.29 - Distributions spatiales d'intensité du faisceau laser relevées respectivement.

I.29.a - sur le spot de focalisation obtenu avec le système d'anamorphose par lentilles cylindriques

I.29.b - sur le spot de focalisation obtenu dans le plan focal d'une lentille sphérique de distance focale  $f = 4 \text{ cm}$

I.29.c - sur le spot constituant l'image par la lentille sphérique ( $f = 4 \text{ cm}$ ) d'un diaphragme placé sur la trajectoire du faisceau laser.

lentille, situé à la distance  $\Delta z$  du plan focal de la lentille. Le grandissement du montage est alors égal à :

$$(I.51) \quad \gamma = \frac{\Delta z}{f}$$

Les valeurs de  $p$ ,  $\Delta z$  et  $\varnothing_2$  sont calculées de façon à ce que la valeur  $\varnothing'_2$  vérifie la relation (I.52) :

$$(I.52) \quad \varnothing'_2 = 1,6.a$$

La valeur de  $\varnothing'_2$  est choisie arbitrairement légèrement inférieure au diamètre  $2a$  de façon à éviter l'irradiation directe de la gaine optique par le faisceau U.V. Cette précaution permet d'éviter que la gaine optique, en général fortement absorbante dans l'ultraviolet, soit détruite par l'impact laser\*.

La figure (I.29c) représente une distribution spatiale d'intensité selon les axes  $x$  et  $y$  du spot obtenu à l'aide de ce montage, dans le cas d'une lentille de distance focale  $f$  égale à 40 mm. La variance  $\hat{\sigma}'^2$  est dans ce cas égale à  $0,6.10^{-2}$ . A titre comparatif nous avons reporté sur la figure (I.29b) la distribution relevée dans le plan focal de la lentille, pour laquelle la variance  $\hat{\sigma}^2$  est égale à  $1,6.10^{-2}$ . Le montage utilisant un diaphragme circulaire et une lentille sphérique présente donc deux avantages sur un système d'anamorphose par lentilles cylindriques ou sur un montage dans lequel la fibre est placée dans le plan focal de la lentille sphérique. D'une part il est possible de con-

---

\* Pour éviter tout risque d'irradiation de la gaine, nous prenons la précaution supplémentaire d'ôter la gaine sur une longueur de 3 cm (cf § I.B.2.2.1).

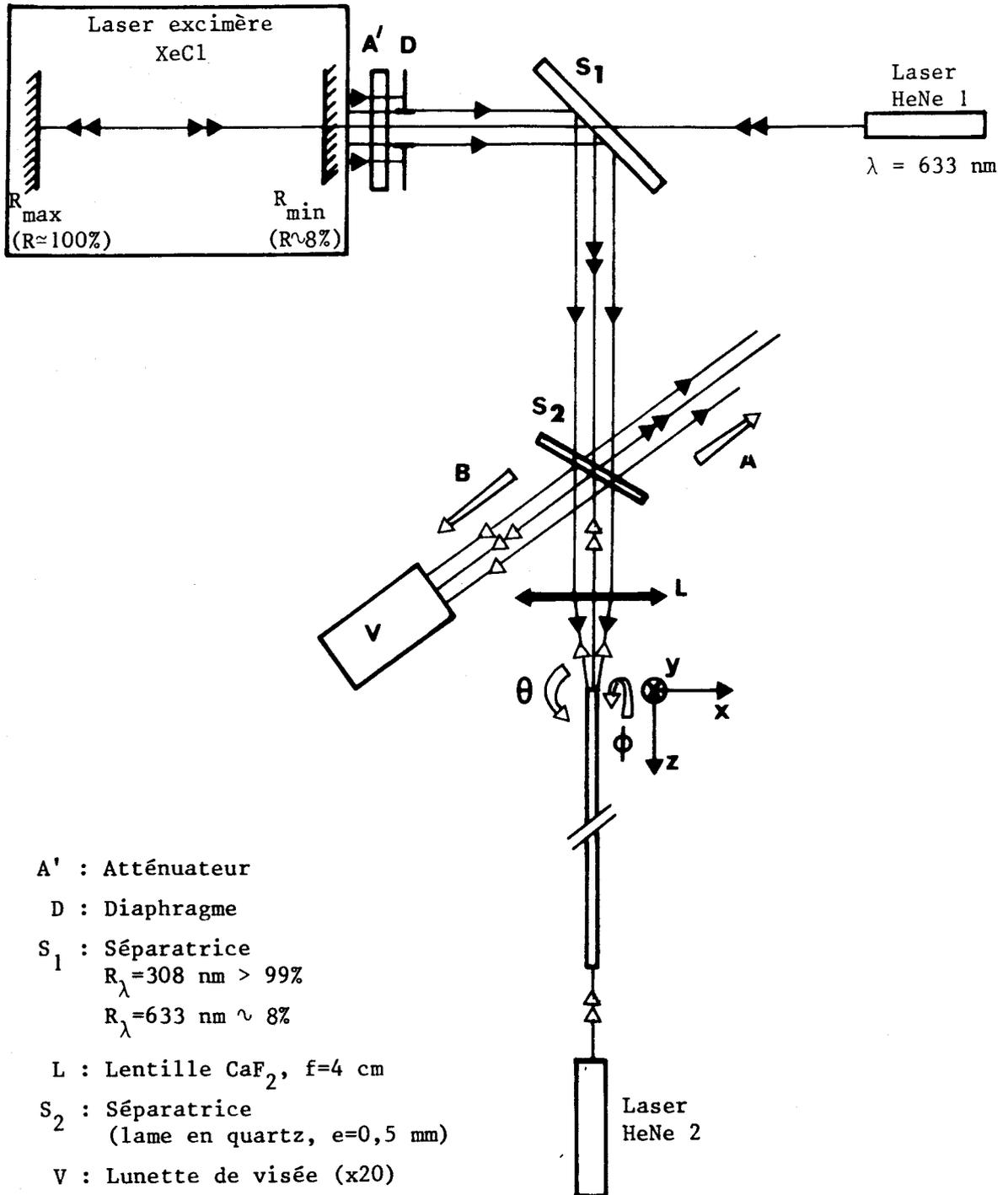


Figure I.30 - Dispositif expérimental utilisé pour contrôler la mise en place de l'extrémité de la fibre, et l'alignement de l'axe de la fibre avec celui du faisceau laser incident.

trôler la taille du spot, et d'autre part la variance,  $\hat{\sigma}'^2$ , est dans ce cas de figure minimale. L'homogénéité de la distribution spatiale d'intensité est donc la meilleure dans cette configuration. Nous avons donc retenu ce montage pour réaliser nos expériences.

### I.B.2-5-2 - Protocole de mise en place de la fibre

Le schéma du dispositif permettant la mise en place de la fibre est représenté sur la figure (I.30). La lentille L biconvexe, en fluorure de calcium ( $\text{CaF}_2$ ), possède une distance focale  $f$  égale à 40 mm à la longueur d'onde ultraviolette  $\lambda = 308 \text{ nm}$ .

Le faisceau délivré par le laser HeNe n° 1 (figure (I.30)) est aligné avec l'axe de la cavité du laser à XeCl par autocollimation sur les lames constituant les miroirs de la cavité. Le faisceau HeNe 1 passe par le centre du diaphragme D. Une lame séparatrice  $S_1$  réfléchit la majeure partie de l'énergie ultraviolette et 4% de celle du faisceau HeNe émergent de la cavité du laser XeCl ( $R_{\lambda=308 \text{ nm}} > 99\%$ ,  $R_{\lambda=633 \text{ nm}} \simeq 8\%$ ). La lame séparatrice  $S_2$  (lame en quartz, d'épaisseur 0,5 mm) remplit deux fonctions. Par la voie d'accès A, elle permet de vérifier que l'alignement des faisceaux rouge (HeNe 1) et ultraviolet (XeCl), est correctement réalisé, en vérifiant la colinéarité des axes de propagation de ces faisceaux sur une distance de 5 m. Par la voie d'accès B, elle permet de contrôler la mise au point de la focalisation du faisceau HeNe 1 au centre de la fibre par l'intermédiaire d'une lunette de visée réglée à l'infini (grandissement  $\times 20$ ). La fibre, placée dans une ferrule que

l'on peut orienter et translater à l'aide d'un système de positionnement micrométrique à 5 degrés de liberté XYZ $\theta$  $\varnothing$ , est initialement mis en place dans le plan focal de la lentille L (plan focal correspondant à la longueur d'onde\*  $\lambda = 633$  nm) . La taille du spot de focalisation, observé en réflexion sur la face de la fibre à travers le système {S<sub>2</sub> - lunette de visée} est alors minimale. La fibre est ensuite translaturée vers la lentille L parallèlement à l'axe de propagation des faisceaux sur une distance calculée en fonction du grandissement  $\gamma$  que l'on cherche à réaliser. A cette nouvelle position, la mise au point de la lunette est légèrement modifiée de façon à ce que l'image de la face d'entrée de la fibre soit nette. Si nécessaire, le centre du coeur de la fibre est placé à nouveau en coïncidence avec le faisceau HeNe 1.

L'alignement de l'axe de la fibre avec l'axe de propagation du faisceau U.V. est contrôlé à l'aide d'un second laser HeNe (HeNe 2) couplé à l'autre extrémité de la fibre. Le faisceau HeNe 2 émergent de la fibre est transformé par la lentille L en un faisceau faiblement divergent (ou convergent, selon la valeur de  $\Delta z$ ) de diamètre environ 1 cm. La superposition des deux faisceaux rouges est effectuée par rotation de la ferrule maintenant la fibre (rotation effectuée autour des axes  $\theta$  et  $\varnothing$ ). Un déplacement éventuel du centre de la fibre par rapport au spot du laser HeNe 1 peut être provoqué par ces manipulations. Il est alors corrigé au moyen des translations X et Y. Notons que le contrôle de la

---

\* La lentille L n'est pas corrigée des aberrations chromatiques, le plan focal correspondant à la longueur d'onde  $\lambda = 633$  nm n'est donc pas confondu avec le plan focal à  $\lambda = 308$  nm. Les deux plans sont sensiblement séparés par une distance de 1,82 mm.

position de la fibre peut être effectué à chaque instant en cours d'expérience.

**I.B.3 - DETERMINATION EXPERIMENTALE DU SEUIL DE FRACTURE  
OPTIQUE DES FIBRES EN FONCTION DU DIAMETRE DE COEUR  
ET DE LA NATURE DES FIBRES.**

**I.B.3-1 - Introduction**

Nous avons signalé dans le paragraphe I.A.3.1 que l'apparition d'une fracture optique se déroule en deux étapes. Nous avons arbitrairement défini la fluence critique seuil  $F_c$  comme égale à la fluence moyenne au-delà de laquelle la fibre est marquée de façon ponctuelle sous l'effet des tirs lasers :

$$(I.54) \quad F_c = \frac{E_p}{\pi a^2}$$

Au-delà de cette valeur, l'entrée de la fibre est détruite en totalité.

Nous présentons les valeurs expérimentales des fluences critiques que nous avons obtenues pour différentes conditions d'expérience (fibres de nature et de diamètre variés).

**I.B.3-2 - Méthode de mesure**

Pour chaque type de fibre, nous avons préparé trois échantillons, en respectant le protocole décrit dans le paragraphe I.B.2.2. Nous avons fixé, de façon arbitraire, la longueur des fibres à 1 m. La fibre retenue pour l'expérience est mise en place selon la procédure d'autocollimation

présentée dans le paragraphe I.B.2.5. La cadence des tirs est fixée à 4 Hz. L'énergie délivrée par le laser est augmentée progressivement par pas. L'énergie transmise par la fibre est mesurée au moyen d'un calorimètre (Scientech, modèle 360001). Au cours de l'expérience, la face d'entrée de la fibre est observée à l'aide de la lunette de visée. Dès l'apparition des premiers signes de fracture, l'énergie  $E_s$  en sortie de fibre est relevée. L'énergie incidente  $E_p$  sur le coeur de la fibre peut être estimée à partir de la valeur  $E_s$  et de la valeur du coefficient\* de transmission de la fibre. La valeur du seuil de fracture  $F_c$  est alors donnée par la relation (I.54).

La durée totale de chaque expérience est limitée à dix minutes de façon à ce que la transmission de la fibre ne puisse se dégrader de façon significative sous l'effet du rayonnement ultraviolet.

### **I.B.3-3 - Observations et résultats expérimentaux**

Les premiers signes de fracture se manifestent sous forme d'éclairs blancs-bleutés localisés au voisinage de la face d'entrée de la fibre, et plus intenses que la fluorescence de la fibre. A ce stade, la transmission globale de la fibre reste sensiblement constante (on enregistre une chute de quelques pour cent), à moins que les tirs lasers ne se prolongent trop longtemps (10 à 20 mn). Dans le cas de tirs répétés à ce niveau d'énergie, ou si l'énergie par impulsion est augmentée (d'environ 15%), la seconde étape du processus

---

\* Nous tenons compte des pertes par réflexion de Fresnel et de l'atténuation donnée par les constructeurs. Le coefficient de correction à appliquer pour ces fibres de courtes longueurs est de l'ordre de 1.12.

de fracture se produit. Dès l'apparition d'un phénomène d'arc audible, la face d'entrée de la fibre est détruite, et la transmission chute vers une valeur voisine de zéro. La figure (I.31) représente des photographies de face d'entrée de fibre prises sous les conditions suivantes : figure (I.31a) - fibre photographiée en début d'expérience ; figure (I.31b) - premier stade du processus de fracture ; figure (I.31c) - après la fracture définitive.

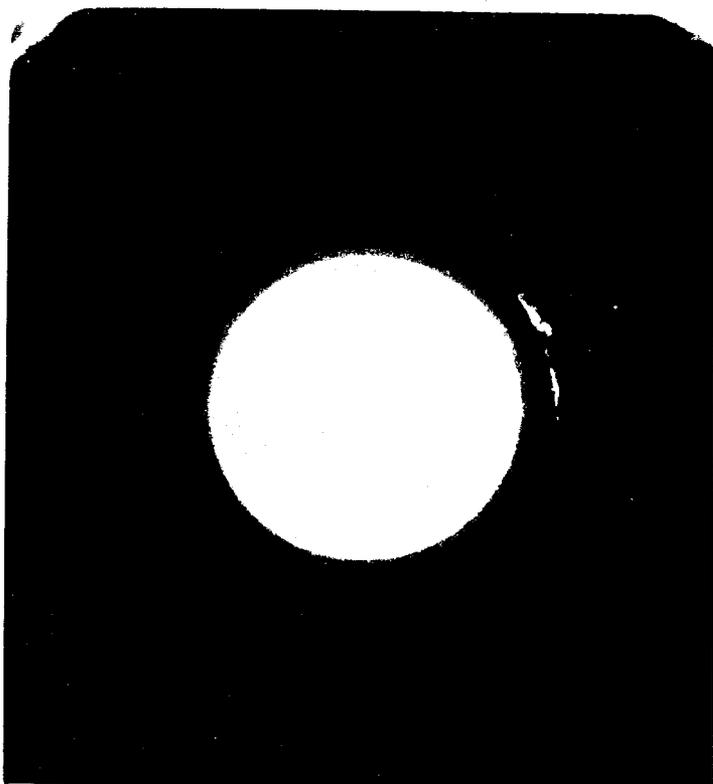
Nous avons rassemblé dans le tableau (I.7) les valeurs des fluences critiques des différents types de fibre, calculées à partir de la relation (I.54). Les énergies transmises par impulsion, lorsque la fluence incidente est égale à la fluence critique, y figurent également. Chaque résultat correspond à la moyenne de trois mesures, effectuées chacune sur un échantillon différent de fibre. Pour un même type de fibre (nature et diamètre de coeur identiques), l'écart maximum entre les mesures reste inférieur à 30%.

#### **I.B.3-4 - Discussion**

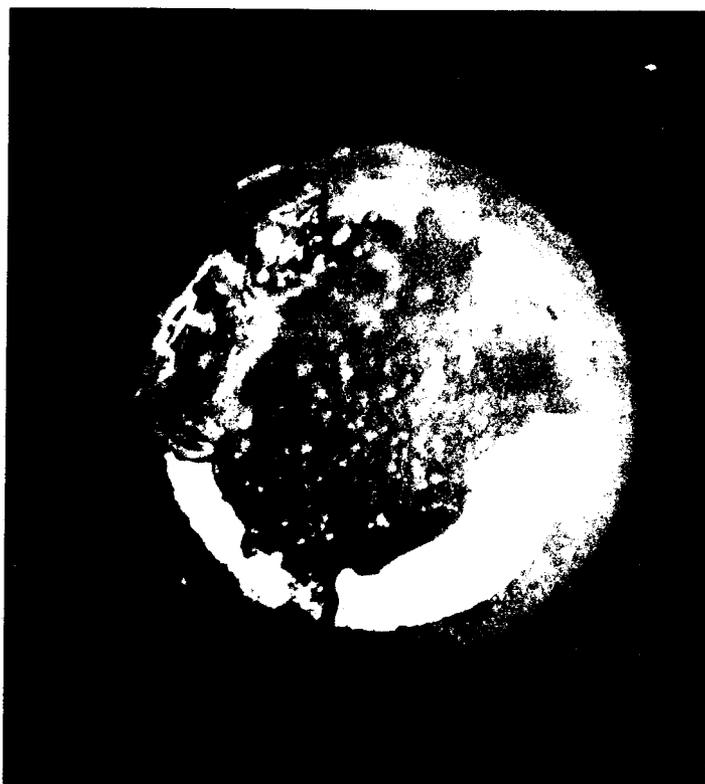
A titre comparatif, nous avons reporté sur la figure (I.32) les valeurs des seuils de fracture optique relevés à la longueur d'onde  $\lambda = 308$  nm par différents auteurs et par nous-mêmes, en fonction du diamètre de coeur de fibre. Les données figurant dans la littérature correspondent le plus souvent à des conditions expérimentales et à des définitions de la fluence seuil différentes des nôtres. Afin de pouvoir comparer simplement les différents résultats, nous avons normalisé ces différentes données de façon à ce qu'elles correspondent à des conditions expérimentales semblable aux nôtres.

Type de fibre	Diamètre de coeur de fibre ( $\mu\text{m}$ )	Fluence seuil ( $\text{J}/\text{cm}^2$ )	Densité de puissance ( $\text{MW}/\text{cm}^2$ )	Energie maximale transmise par impulsion (mJ)
PCS	200	13,4	536	3,6
	600	9,7	388	23,3
	1000	5,6	224	37,3
HCSW	200	15,9	636	4,20
	400	14,2	568	15,3
	600	11,8	472	28,9
	1000	6,0	240	39,9
ST-U	200	18,3	732	5,3
	400	17,7	708	19,5
	600	14,5	580	35,7
	800	8,4	336	37,1

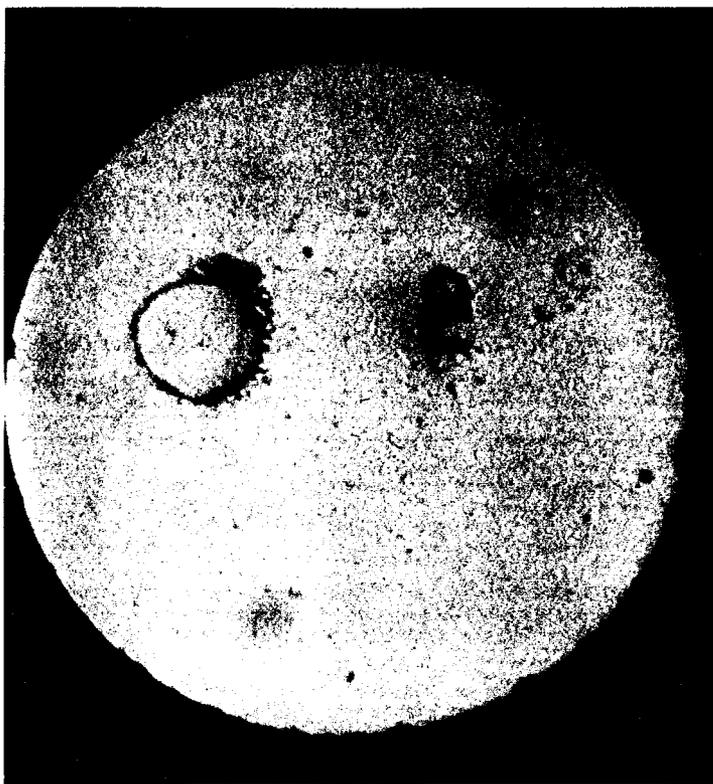
Tableau I.7 - Seuils de fracture optique en fonction du type de fibre et du diamètre de coeur. Les énergies correspondent aux valeurs maximales transmises par la fibre. Les valeurs des fluences seuil et des densités de puissance correspondantes sont calculées à l'entrée de la fibre.



I.31.a



I.31.c



I.31.b

Figure I.31 - Photographies de faces de fibre prises

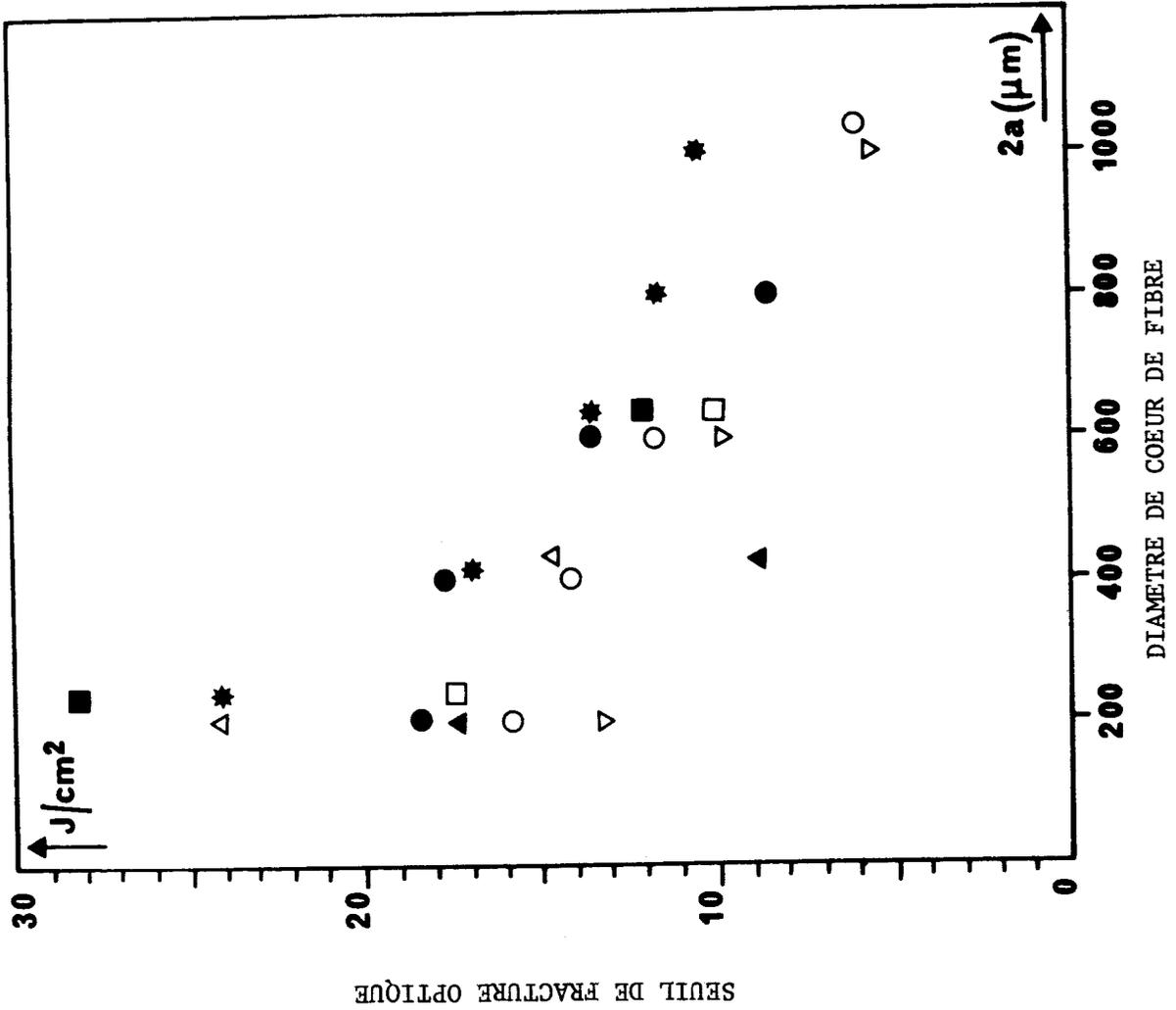
I.31.a - en début d'expérience (fibre STU-400, x 100)

I.31.b - au premier stade de fracture (fibre HCSW-600, x 150)

I.31.c - après fracture définitive (fibre STU-400, x 150)



Figure I.32 - Valeurs des seuils de fracture optique en fonction du diamètre du coeur de fibre.



Légende :

- $\Delta$  : Fibre A.S.\* dans l'air
  - $\blacktriangle$  : Fibre A.S.\* dans l'eau
  - $\square$  : Fibre PCS dans l'air
  - $\blacksquare$  : Fibre PCS dans l'eau
- d'après  
R. Pini et al.  
[42]

- $\nabla$  : Fibre PCS
  - $\circ$  : Fibre HCS
  - $\bullet$  : Fibre STU
- ce travail

$\star$  : Fibre A.S.\* seuils calculés d'après des expériences réalisées par [19,20] avec des impulsions de 300 ns (voir texte)

$\star$  A.S. : fibre toute silice (coeur et gaine)



Ainsi, R. Pini et al [42] définissent la fluence seuil  $F_s$  de fracture optique par la relation (I.55) :

$$(I.55) \quad F_s = \frac{E_{p_{max}}}{\pi a^2}$$

Dans l'expression (I.55)  $E_{p_{max}}$  désigne l'énergie maximale mesurée en sortie de fibre (de longueur  $l = 50$  cm) au moment où la face d'entrée de la fibre est totalement détruite. En tenant compte des pertes de Fresnel et de l'atténuation des fibres, nous avons donc corrigé leurs résultats de façon à ce qu'ils correspondent à des valeurs mesurées à l'entrée de la fibre. Cependant, la fluence ainsi obtenue ne correspond pas encore à notre définition, puisque R. Pini et al. assimile la fracture optique à la destruction totale de la face d'entrée de fibre. Nous avons signalé précédemment que les fluences auxquelles apparaissent ces deux phénomènes différent d'environ 15%. En absence d'indication supplémentaire nous avons représenté sur la figure (I.32) les valeurs qui correspondent aux seuils de fracture définis par les auteurs de la référence [42] (données toutefois rapportées à l'entrée de la fibre).

R.S. Taylor et al. adoptent une définition encore différente de la fluence seuil [19,20]. Ils relèvent la distribution spatiale d'énergie du spot de focalisation en fonction des coordonnées  $x$  et  $y$ . Ils estiment ensuite l'aire  $A$  du spot en la limitant aux points d'intensité  $I_{max}/e$ . La fluence est alors égale à  $E_p/A$ , expression dans laquelle  $E_p$  représente l'énergie par impulsion obtenue comme moyenne entre l'énergie maximale par impulsion ne produisant pas de fracture et l'énergie minimale par impulsion pour laquelle la probabilité de fracture est égale à 1. Il est difficile d'établir une comparaison exacte entre leurs résultats et les nôtres. Par ailleurs leurs conditions d'excitation de fibre étaient différentes des nôtres (temps d'impulsion par

exemple). Nous avons donc corrigé leurs résultats en appliquant les lois de variation empiriques du seuil de fracture énoncées aux paragraphes I.A.2.1.2. Ainsi, par exemple, leur valeur de seuil de fracture a été ramenée à une durée d'impulsion  $\tau = 25$  ns.

Bien que le manque d'homogénéité dans les définitions des seuils de fracture optique rende délicates les comparaisons des divers résultats issus de laboratoires différents, l'examen du tableau I.7 et de la figure (I.32) fait ressortir deux caractéristiques. Il apparaît d'une part que les seuils de fracture relevés pour les fibres en silice (coeur en silice et gaine optique en silice dopée), dans des conditions expérimentales fixées, s'avèrent supérieurs aux seuils de fracture des autres types de fibre (PCS, HCS). Nous pouvons d'autre part noter la diminution du seuil de fracture à mesure que la surface du coeur de fibre augmente. Cependant, la dispersion des différents résultats reste trop importante pour que la loi de décroissance du seuil en  $A^{-1/4}$  puisse être vérifiée rigoureusement.

Afin d'augmenter les valeurs des seuils de fracture, diverses solutions ont été proposées.

- Il a par exemple été préconisé d'employer des fibres à extrémité conique, fonctionnant à la manière d'un entonnoir de lumière [43], [44]. Le principe de la méthode repose sur le fait que le seuil de fracture des matériaux est en général plus élevé dans la masse qu'en surface (d'un facteur 2 à 5) [17]. Par exemple, une fibre de diamètre de coeur  $200 \mu\text{m}$  pourvue d'une extrémité conique de diamètre  $600 \mu\text{m}$  devrait permettre, selon le tableau I.7, de gagner environ un facteur 5. A notre connaissance, de tels composants ne sont pas encore disponibles commercialement.

- Certains auteurs ont proposé de réaliser le couplage en plongeant l'extrémité de la fibre dans un milieu différent de l'air. Ainsi, R. Pini et al. [42] ont immergé l'extrémité

de la fibre dans quelques millimètres d'eau distillée. Cette méthode s'est avérée fructueuse dans le cas de fibre de type P.C.S., mais a conduit au contraire à une diminution du seuil de fracture dans le cas de fibre en silice (coeur et gaine) (figure (I.32)).

••• Il a également été suggéré de soumettre l'entrée de la fibre à l'action d'acide fluorhydrique [43] ou au rayonnement d'un laser à  $\text{CO}_2$  [45]. Ces opérations doivent être réalisées avant l'exposition de la fibre au flux laser et ont pour objet l'élimination des défauts submicroniques à partir desquels la fracture optique pourrait s'amorcer. Nous n'avons procédé pour notre part à aucune expérience de ce type.

•••• Les différentes solutions citées précédemment reposent sur des transformations de l'extrémité de la fibre. Il apparaît que des modifications de la source laser pourraient également s'avérer positives. De par sa conception technologique actuelle, le laser excimère à  $\text{XeCl}$  délivre un faisceau de forme rectangulaire avec des angles de divergence horizontale et verticale différents. Une configuration délivrant un faisceau homogène de forme carrée contribuerait à augmenter le seuil de fracture. Dans le cas où la densité d'énergie (et non pas la densité de puissance) constitue le paramètre primordial de l'application, il peut être avantageux de disposer de laser émettant des impulsions plus longues. Par exemple, l'utilisation d'un laser délivrant des impulsions de 250 ns (soit un gain de 10 sur la durée d'impulsion) laisse espérer un gain de facteur 2,5 sur le seuil de fracture (variation en  $\tau^{-0,4}$ ). Des lasers excimères à  $\text{XeCl}$ , présentant certaines de ces caractéristiques, sont maintenant disponibles commercialement [41].

Au terme de cette discussion, il convient d'insister sur le fait que les résultats présentés dans cette section



correspondent à des valeurs d'énergie obtenues au cours de séquences de tirs de durée limitée. Dans le contexte d'une application nécessitant une durée d'utilisation plus longue ( $> 10$  mn), il est nécessaire d'adopter une marge de sécurité. Etant donné la dispersion des mesures reportées dans le tableau I.7 et sur la figure (I.32), il semble raisonnable de n'utiliser la fibre qu'à 50% de ses possibilités maximales.

#### I.B.4 - ETUDE DES PARAMETRES DU FAISCEAU TRANSMIS PAR LA FIBRE

##### I.B.4.1 - Caractéristiques spectrale et temporelle des signaux transmis par la fibre

###### I.B.4-1-1 - Etude spectrale

La figure (I.33) représente la distribution spectrale d'énergie de l'impulsion ultraviolette relevée entre 307,5 nm et 308,5 nm en sortie d'une fibre PCS-600 (diamètre de coeur  $2a = 600 \mu\text{m}$ , longueur  $L = 6$  m,  $E_t = 13,5$  mJ/impulsion). Ce spectre peut être comparé avec celui de la figure (I.18), représentant le spectre d'émission du laser excimère à XeCl. La similitude entre ces deux spectres, relevés dans des conditions expérimentales analogues, montre que les caractéristiques spectrales de l'impulsion sont conservées après propagation dans la fibre.

Cependant, il faut signaler que l'impulsion ultraviolette excite une fluorescence prenant naissance dans le coeur de fibre. Cette émission est visible par diffusion dans la gaine et le revêtement protecteur. Un exemple de spectre de fluorescence, enregistré à basse résolution (10 nm), est représenté sur la figure (I.46). Nous avons analysé ce spectre à plus haute résolution (0.05 nm), sur le



domaine spectral s'étendant depuis  $\lambda = 308$  nm jusqu'à  $\lambda = 330$  nm . Nous n'avons pas décelé de raies caractéristiques d'une diffusion Raman stimulée\* .

Pour les valeurs de densités de puissance ( $\sim 350$  MW/cm<sup>2</sup>) et de longueurs de fibre ( $\sim 6$  m) considérées, ces observations sont en accord avec les calculs de seuil Raman présentés dans le paragraphe I.A.2.2.1.

#### **I.B.4-1-2 - Etude temporelle**

Nous avons relevé la forme temporelle de l'impulsion laser transmise par la fibre (figure (I.34)). La comparaison des figures (I.34) et (I.19) montre que, dans nos conditions d'expérience ( $L = 6$  m), la distribution temporelle d'énergie de l'impulsion lumineuse n'est pas affectée de façon significative par la dispersion chromatique et intermodale de la fibre. Ce résultat est conforme aux calculs présentés dans le paragraphe I.A.1-3-2.

D'autre part, le signal de fluorescence s'avère sensiblement synchrone de l'impulsion pompe (résolution temporelle de la mesure 2,2 ns).

#### **I.B.4.2 - Distribution spatiale d'énergie de l'impulsion lumineuse transmise par la fibre**

La figure (I.35) représente la distribution spatiale d'énergie relevée à l'aide du dispositif de la figure (I.27) en sortie d'une fibre PCS-600. Dans cette expérience la

---

\* la longueur d'onde de la première raie Stokes est égale à  $\lambda_s \simeq 312$  nm [33].

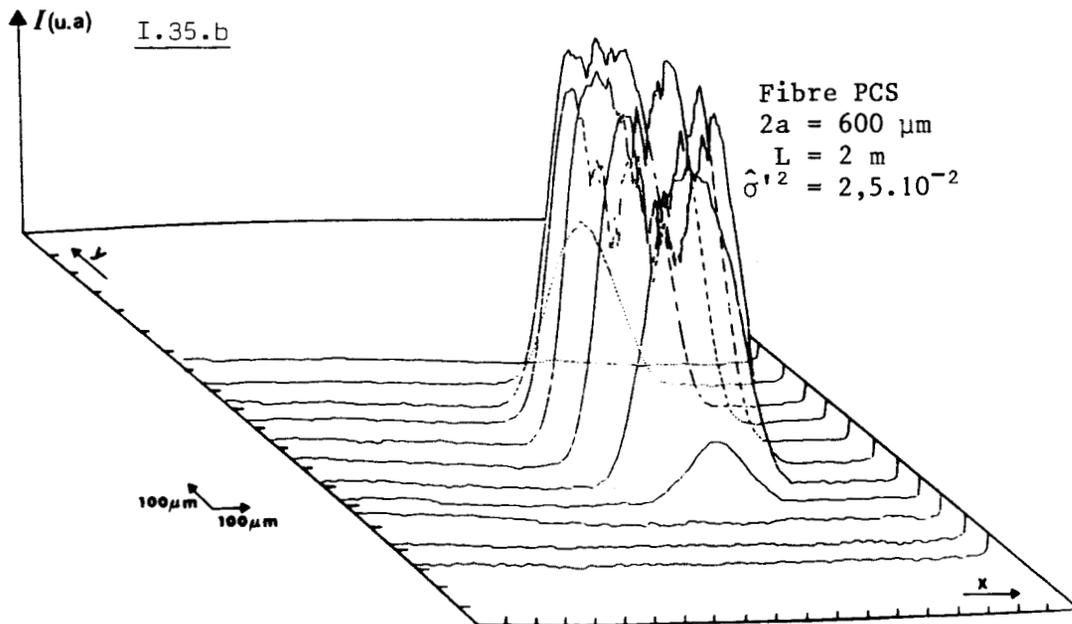
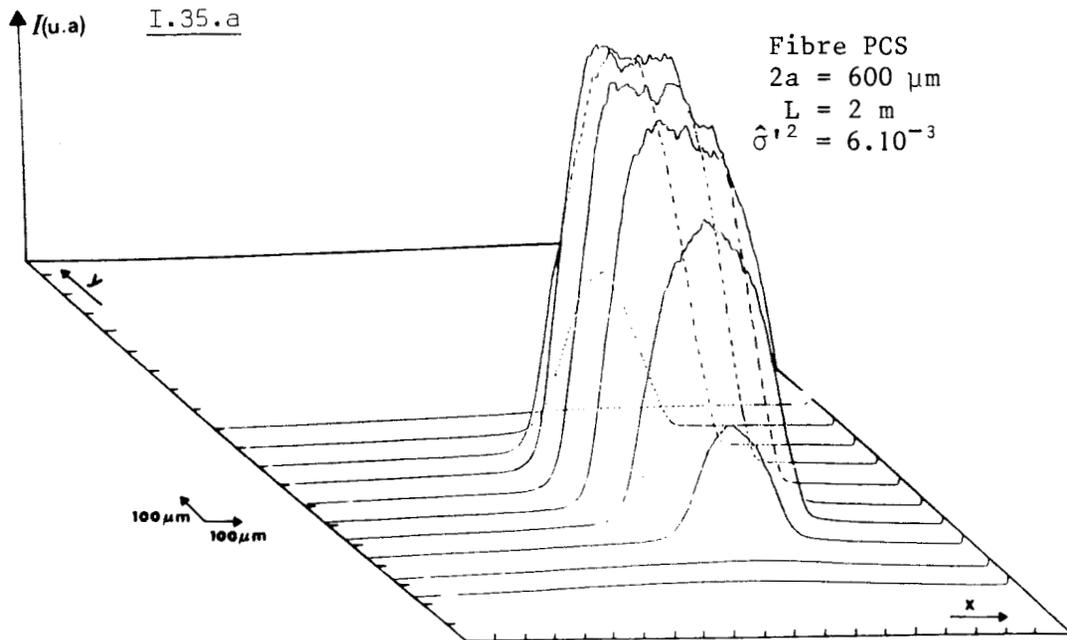


Figure I.35 - Distribution spatiale d'énergie relevée en sortie de fibre (PCS 600,  $L = 2 \text{ m}$ ).  
La figure I.35.b représente la distribution obtenue dans le cas où l'injection est effectuée avec un défaut d'alignement.

fibre, de longueur  $L = 2$  m, est maintenue faiblement courbée (rayon de courbure  $R \simeq 2$  m). Le diaphragme de diamètre  $35 \mu\text{m}$ , fixé devant le détecteur, est placé à approximativement  $800 \mu\text{m}$  de l'extrémité de fibre. Le diamètre du faisceau, relevé à  $1/e^2$  est égal à  $600 \mu\text{m}$ . La variance  $\hat{\sigma}'^2$ , définie par la relation (I.48) est égale à  $6.10^{-3}$ . Nous avons également représenté sur la figure (I.35b) la distribution spatiale d'énergie du faisceau dans le cas où le faisceau laser présente un léger défaut d'alignement ( $\theta \simeq 1$  à  $2^\circ$ ) avec l'axe de la fibre. La distribution spatiale d'énergie n'est alors plus maximale sur l'axe du faisceau. Cette observation s'interprète qualitativement par la loi d'invariance de l'angle  $\theta$  que fait le rayon lumineux avec l'axe de la fibre (I.A.1-3-1).

#### **I.B.4.3 - Etude de l'énergie disponible en sortie de fibre en fonction de l'énergie incidente**

Pour procéder à cette étude, nous avons mesuré l'énergie  $E_t$  transmise par une fibre HCS-600 ( $L = 6$  m), en fonction de l'énergie  $E_i$  incidente sur le coeur de fibre. Les valeurs de  $E_i$  sont calculées\* à partir des mesures des énergies  $E_r$  partiellement réfléchies par la lame  $S_2$  (voie A de la figure (I.30)). Les résultats sont présentés sur la figure I.36.

La forme analytique de la loi  $E_t = f(E_i)$  peut être déterminée par une méthode d'ajustement par moindres carrés appliquée à une expression polynômiale du 2nd degré en  $E_i$ .

---

\* Nous admettons que les coefficients de transmission de la lame séparatrice ( $S_2$ ) et de la lentille (L) sont linéaires avec la puissance.

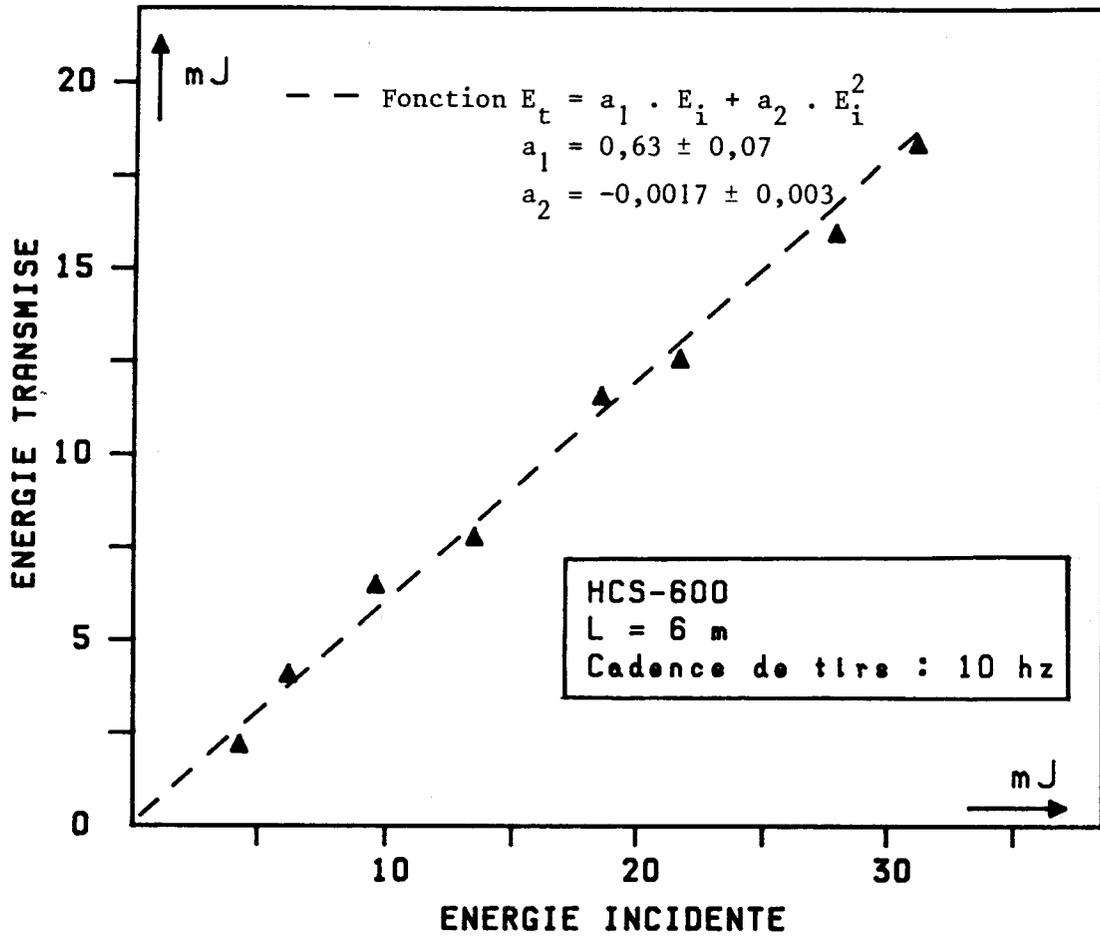


Figure I.36 - Evolution de l'énergie transmise en fonction de l'énergie incidente (cas d'une fibre HCS-600 de longueur 6 m).

Le calcul montre que le coefficient du terme quadratique n'est statistiquement pas significatif, si bien que les variations de  $E_t$  peuvent être représentées par une fonction linéaire en  $E_i$ . Compte-tenu de la précision de nos mesures, cette expérience ne permet pas de mesurer le coefficient d'absorption non-linéaire. D'après la figure (I.16), il semble donc que le terme  $\alpha_{NL}$  est inférieur à  $10^{-6}$  cm/MW.

#### **I.B.4.4 - Etude de l'énergie disponible en sortie de fibre en fonction du rayon de courbure**

Une courbure imposée à une fibre modifie les distributions spatiales d'énergie observées en champ proche et lointain [6]. Elle se traduit également par une diminution notable dans la transmission de la fibre si le rayon de courbure devient trop petit.

Pour évaluer l'importance de ces pertes, nous avons étudié la transmission d'une fibre de type HCS-400\* soumise à différents rayons de courbure.

Dans ces expériences, l'énergie incidente était maintenue constante. La fibre, de longueur 2 m, était enroulée sur un tour, autour de différents cylindres de rayon  $r$  successivement décroissant. Pour chaque valeur de  $r$ , nous avons mesuré l'énergie transmise. La même opération a ensuite été réalisée en choisissant des valeurs de  $r$  croissantes. La transmission relative de la fibre courbée a été calculée en référence à l'énergie transmise par la fibre initialement maintenue rectiligne ( $E_t = 2,5$  mJ/impulsion). Dans cette expérience, la cadence de tirs était égale à 4 Hz. Les résultats de ces mesures sont reportés sur la

---

\* Nous avons choisi ce type de fibre, de préférence aux fibres de même diamètre de coeur figurant dans le tableau I.6, en raison de leur tolérance plus grande à la courbure.

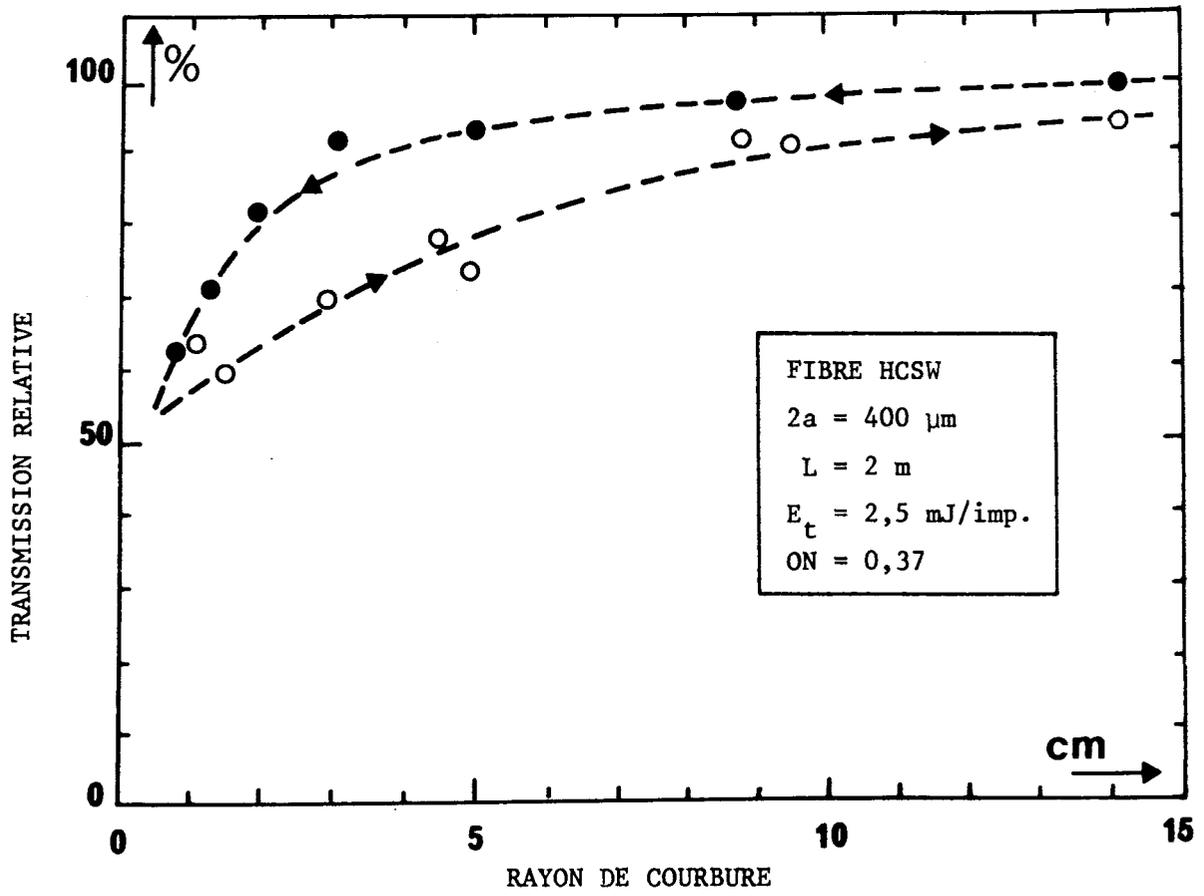


Figure I.37 - Evolution de la transmission relative en fonction du rayon de courbure.

figure (I.37). Cette figure met en évidence un effet d'hystérésis. L'atténuation due aux pertes par courbure est peu importante pour des rayons de courbure supérieurs à  $r = 5$  cm. L'atténuation résultant de la courbure est alors de l'ordre de 10% à  $r = 5$  cm. En dessous de la valeur  $r = 5$  cm, la courbure provoque des atténuations importantes : la transmission chute de la valeur 90% à la valeur 65% lorsque le rayon de courbure passe de  $r = 5$  cm à  $r = 1$  cm. En dessous de la valeur  $r = 1$  cm, la fibre se fracture (rappelons que le rayon de courbure minimal (tableau I.6) de cette fibre est égal à 4 cm).

Si, après avoir courbé la fibre à  $r = 1$  cm, on impose à nouveau une courbure de rayon  $r = 5$  cm à la fibre, on observe que la transmission n'est plus que de 75%. Un tel effet d'hystérésis peut être attribué à des microfractures générées lors de la courbure de la fibre, et(ou) à une dégradation du matériau constituant la gaine optique sous l'effet de l'irradiation de celles-ci par les rayons guidés à fuite et les rayons réfractés engendrés par la courbure (cf § I.A.I.5, I.B.5.6).

## **I.B.5 - ETUDE DE L'EVOLUTION DE LA TRANSMISSION DES FIBRES EN FONCTION DU NOMBRE DE TIRS**

### **I.B.5.1 - Introduction**

Les résultats présentés dans les paragraphes précédents ont été acquis en injectant un nombre limité d'impulsions ultraviolettes dans les fibres. Il semble cependant important d'évaluer la stabilité de la transmission des fibres lors de tirs répétés. En effet, au cours de nos expériences, nous avons constaté que la transmission de certaines fibres se dégradait en cours d'utilisation.

Dans ce paragraphe, nous nous proposons donc de présenter les résultats des expériences que nous avons menées afin d'étudier ce phénomène de photochromisme.

### I.B.5.2 - Etude de la transmission à 308 nm de fibres rectilignes en fonction de différents paramètres expérimentaux

#### I.B.5.2.1. - Etude en fonction de la fluence incidente

Pour réaliser cette expérience, nous avons prélevé une série d'échantillons dans chacune des catégories de fibre retenues dans notre étude (PCS, HCSW, STU). Le diamètre de coeur des fibres est égal à 200  $\mu\text{m}$ , et la longueur des échantillons est fixée à 0,50 m.

Chaque échantillon est préparé et mis en place selon les protocoles présentés dans les paragraphes I.B.2.2 et I.B.2.5. Chaque fibre est maintenue rigoureusement rectiligne. Avant chaque série de tirs, l'énergie incidente sur le coeur de fibre est ajustée de façon à ce que la densité d'énergie mesurée en sortie de la fibre soit égale à une valeur choisie dans la gamme  $\{2 - 12 \text{ J/cm}^2\}$ . La fibre est ensuite soumise à 50 000 tirs délivrés à la cadence de 20 Hz (chaque expérience dure environ 40 mn). En cours d'expérience, la position du spot laser sur la face d'entrée de la fibre peut être à tout moment contrôlée au moyen du système de visée décrit dans la paragraphe I.B.2.5.

Nous avons représenté sur les figures (I.38) une série de courbes décrivant l'évolution de la densité d'énergie mesurée en sortie des fibres, en fonction du nombre de tirs. La densité d'énergie mesurée à l'instant initial constitue le paramètre de chaque graphe. Les courbes de la figure (I.38) montrent que le comportement des fibres sous

tirs laser répétés dépend beaucoup de la nature des fibres et de la densité d'énergie qui s'y trouve initialement couplée. Les fibres STU (fibres à coeur et à gaine en silice) (figure (I.38c)) présentent une transmission constante, à la précision des mesures près (10%), tant que la densité d'énergie initiale est inférieure à  $8 \text{ J/cm}^2$ . Au delà de  $8 \text{ J/cm}^2$ , la transmission de la fibre STU diminue lentement avec le nombre de tirs. Les comportements des fibres PCS et HCSW (figures (I.38a,b)) diffèrent sensiblement de celui des fibres STU. En effet, la chute de transmission dans ces fibres se produit à des densités d'énergie initiales plus faibles que dans le cas des fibres STU. Pour des valeurs initiales comparables, la chute de transmission est plus marquée pour les fibres de type HCSW que pour les fibres de type PCS.

Les courbes de la figure (I.38) mettent par ailleurs en évidence le fait que, dans les conditions de l'expérience, l'évolution de la transmission des fibres ne dépend pas uniquement de l'énergie totale des photons qui se sont propagés dans la fibre. L'énergie par impulsion intervient nécessairement dans l'analyse des phénomènes observés (effet de puissance).

Nous avons étudié l'influence sur la variation de transmission de différents paramètres intervenant dans l'expérience :

#### I.B.5-2-2 Etude en fonction de la cadence de tirs

Nous avons soumis quatre échantillons de fibre HCSW-200 à 50 000 tirs laser, délivrés à des cadences de 5 Hz, 10 Hz, 15 Hz, et 20 Hz. La densité d'énergie initiale mesurée en sortie de fibre était égale à environ  $6 \text{ J/cm}^2$  dans les quatre cas. Nous n'avons pas observé de variation significative de l'aspect des courbes de transmission.

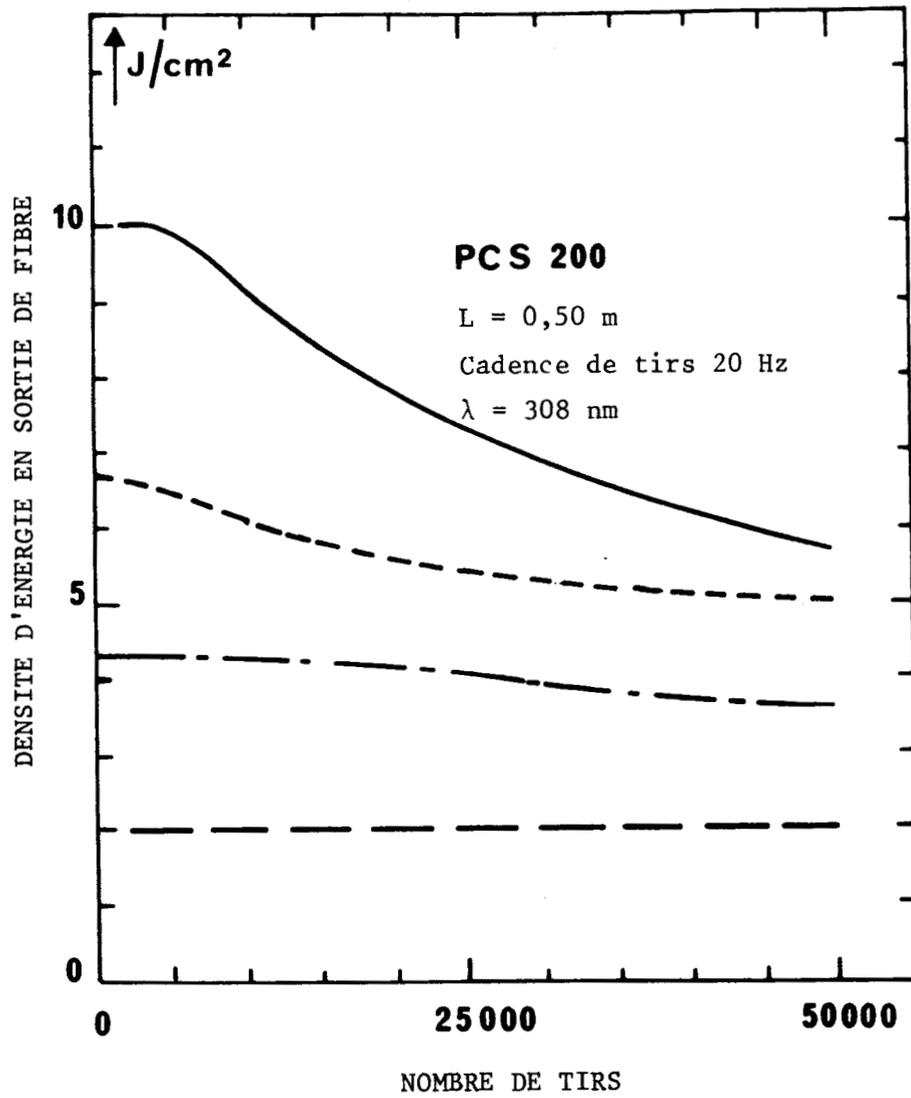


Figure I.38.a - Evolution de la densité d'énergie mesurée en sortie de fibre ( $F = E_t / \pi a^2$ ) en fonction du nombre de tirs.  
Fibre PCS-200

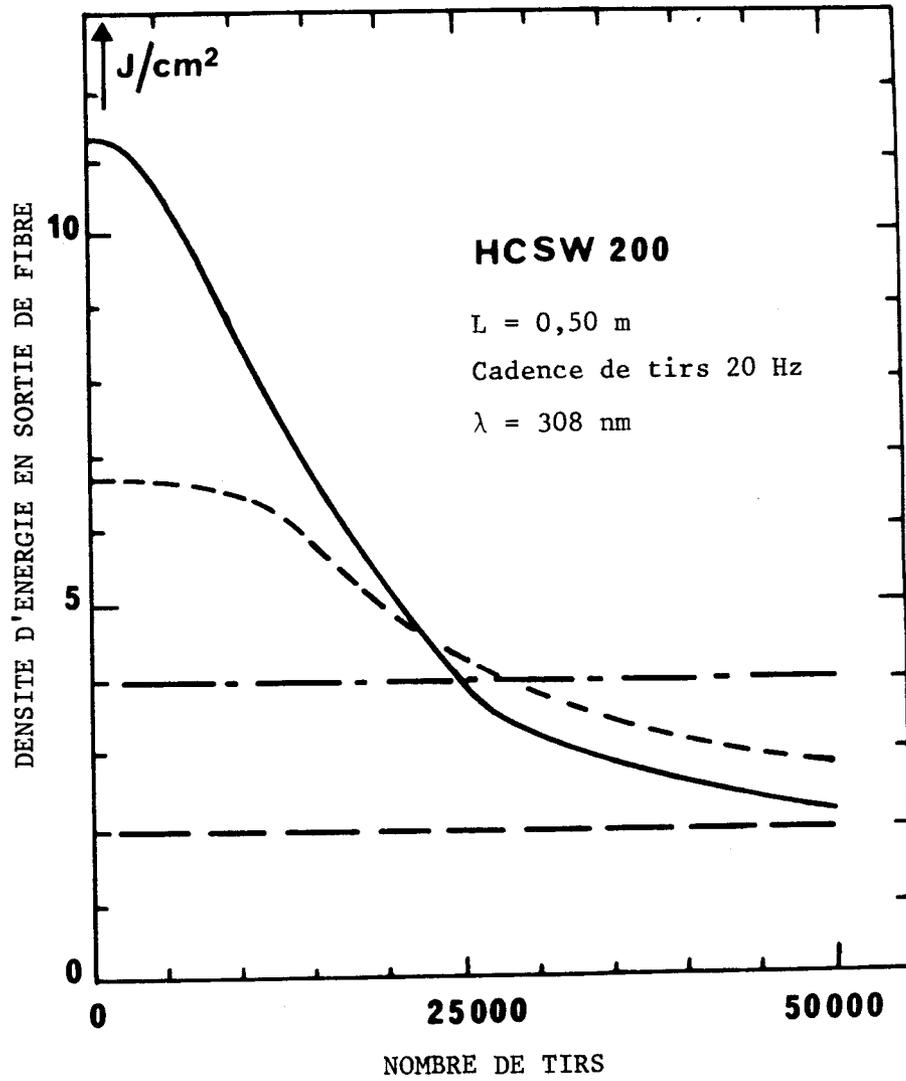


Figure I.38.b - Evolution de la densité d'énergie mesurée en sortie de fibre ( $F = E_t / \pi a^2$ ) en fonction du nombre de tirs. Fibre HCSW-200

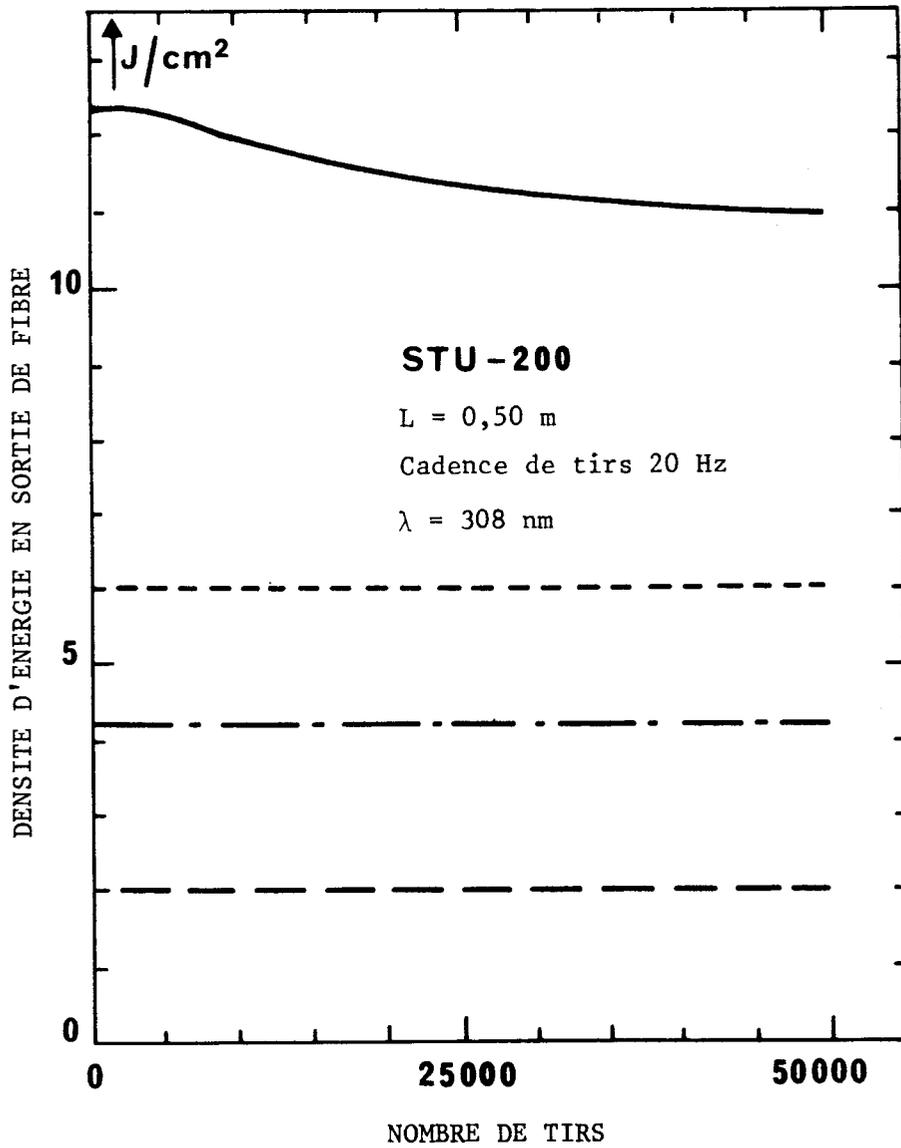


Figure I.38.c - Evolution de la densité d'énergie mesurée en sortie de fibre ( $F = E_t / \pi a^2$ ) en fonction du nombre de tirs. Fibre STU-200

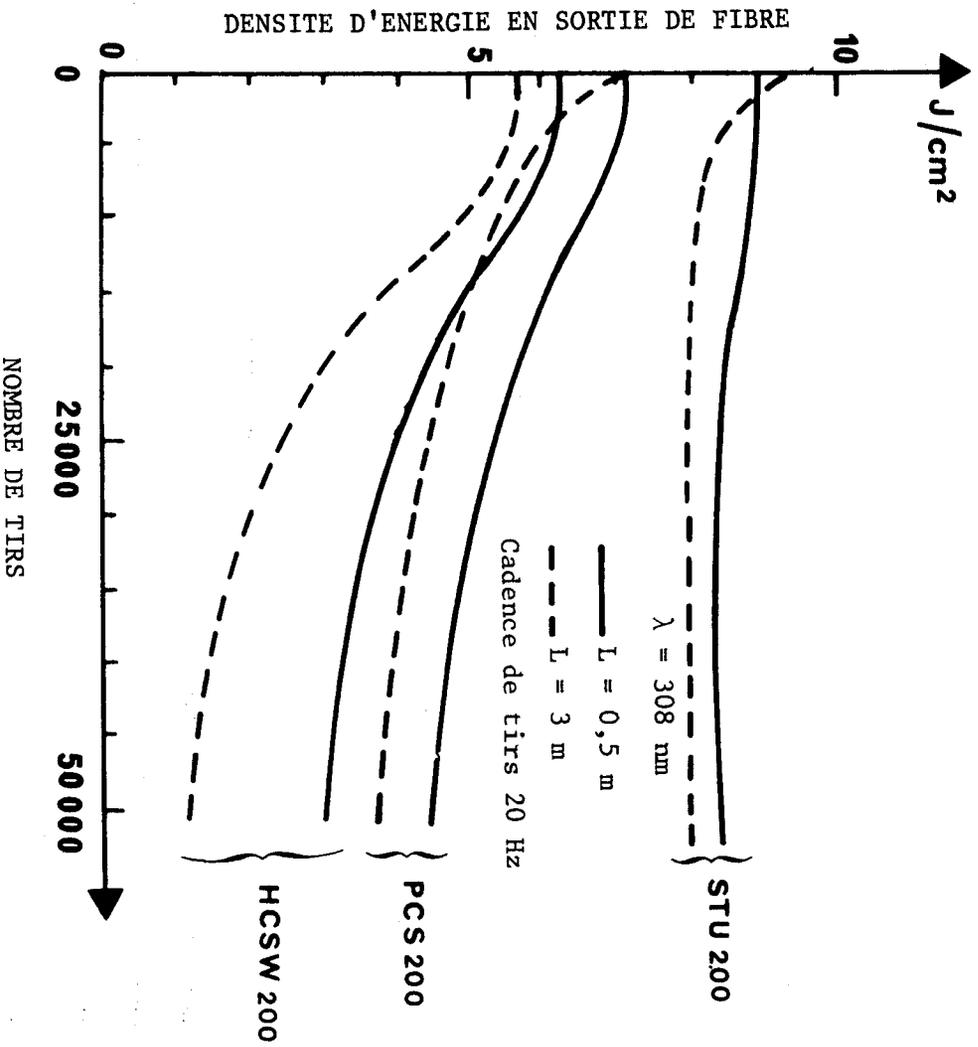


Figure I.39 - Evolution de la densité d'énergie mesurée en sortie de fibre, en fonction du nombre des tirs, pour deux longueurs de fibre.

### I.B.5-2-3 Etude en fonction de la longueur d'échantillon

La longueur des échantillons retenus dans les expériences précédentes apparaît trop faible pour que l'on puisse les utiliser dans une intervention médicale. Nous avons donc repris l'étude de transmission des fibres en fonction du nombre de tirs en soumettant des échantillons de fibre de longueur 3 m\*. Des résultats caractéristiques sont reportés sur la figure (I.39). Les résultats relatifs à des fibres de longueur 0.5 m sont également représentés sur cette figure à titre comparatif. Pour chaque type de fibre, il apparaît que, après environ 25 000 tirs, la baisse de transmission est plus importante pour des fibres de longueur 3 m que pour les échantillons de 0.5 m. Cependant, la pente des courbes représentant la loi de variation de la transmission présente le même ordre de grandeur pour chaque type de fibre. Pour des durées d'exposition plus courtes (soit un nombre de tirs inférieur à 25 000), la loi de décroissance de la transmission varie fortement d'une fibre à l'autre.

Au terme de chaque mesure, nous nous sommes assurés que les variations de transmission des fibres ne provenaient pas d'une dégradation de la face d'entrée des fibres sous l'effet du rayonnement ultraviolet. Pour effectuer cette vérification nous clivons, à la fin de chaque expérience, l'entrée de la fibre et la préparons à nouveau par polissage. La fibre est ensuite remise en place. Dans tous les cas la transmission de la fibre ne se trouve que faiblement

---

\* Il faut noter que, dans cette expérience, les fibres n'étaient pas parfaitement rectilignes. Le rayon minimum de courbure de chaque fibre était toutefois supérieur à 1 m.

améliorée : tout au plus de 15% par rapport à la valeur mesurée après 50 000 tirs laser. Nous avons également constaté qu'en laissant s'écouler un délai entre la fin de la séquence de 50 000 tirs et le début d'une rafale de tirs supplémentaires, la transmission pouvait présenter une légère augmentation. Le gain de transmission ne dépassait cependant pas 20%. Nous n'avons pas établi de corrélation claire entre l'augmentation de la transmission de la fibre, le délai écoulé (de quelques minutes à quelques semaines), et la valeur de la densité d'énergie initiale, les nombreux paramètres intervenant dans ces expériences étant difficilement maîtrisables simultanément\*.

---

\* Nous ne pouvons en effet garantir la constance de l'énergie par impulsion délivrée par le laser et l'alignement des faisceaux sur des périodes dépassant quelques heures. Toutes procédures de réajustement se traduisent par des tirs lasers qui participent au vieillissement de la fibre, même s'ils sont effectués à faible niveau d'énergie.

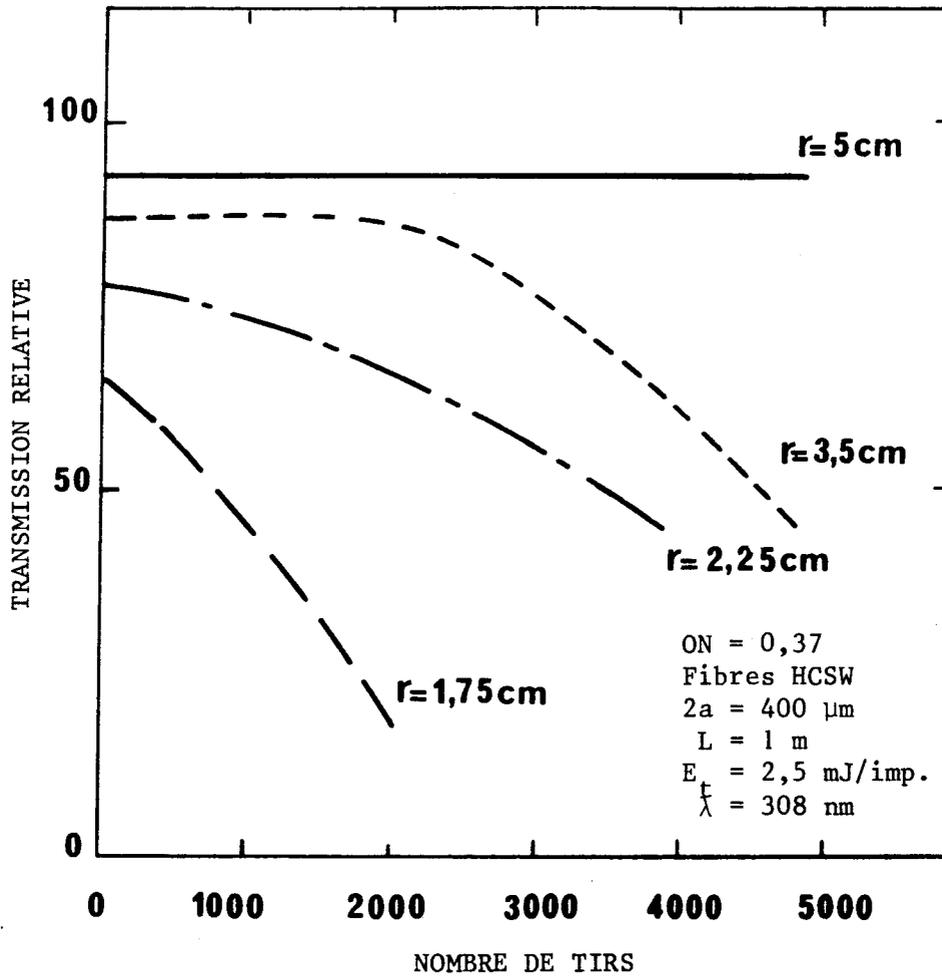


Figure I.40 - Evolution de la transmission de fibres HCSW-400 courbées en fonction du nombre de tirs.

**I.B.5.3 - Etude de la transmission à 308 nm de fibres courbées en fonction du rayon de courbure et du nombre de tirs**

Dans le paragraphe I.B.5.2 nous avons rendu compte des mesures de transmission que nous avons effectuées sur une fibre soumise successivement à différents rayons de courbure. Au cours de ces expériences, nous avons mis en évidence un effet d'hystérésis. Nous nous proposons dans ce paragraphe d'étudier l'effet de tirs répétés sur des fibres courbées. Les fibres retenues pour cette étude sont du même type que celles utilisées dans le paragraphe I.B.4.4 (HCSW-400). Chaque échantillon choisi parmi quatre tronçons de fibre de longueur  $L = 1$  m est enroulé sur un tour autour d'un cylindre de rayon  $r$ , puis est soumis aux tirs laser. La densité d'énergie initiale, mesurée en sortie de fibre, est égale à  $2 \text{ J/cm}^2$ . Rappelons que, pour cette valeur, la transmission de la fibre maintenue rectiligne et soumise à 50 000 tirs lasers reste sensiblement constante. Les transmissions relatives des fibres courbées, normalisées en référence à la transmission de la fibre rectiligne, sont représentées sur la figure (I.40). En début d'expérience, l'effet de courbure se manifeste tout d'abord par une atténuation importante, conformément aux résultats présentés dans le paragraphe I.B.4.4. Il apparaît ensuite que, si  $r$  est inférieur à 5 cm, la transmission de la fibre courbée chute d'autant plus vite que la courbure est plus importante. Si le rayon de courbure est inférieur à 1 cm, quelques tirs suffisent à provoquer une fracture dans la partie courbée de la fibre. La fracture rend la fibre impropre à toute transmission. Pour la valeur  $r = 5$  cm, une légère atténuation (6%) s'est produite au bout de 15 000 tirs. En fin d'expérience, les transmissions relatives des fibres placées à nouveau en position rectiligne sont égales à environ 75% des valeurs initiales.

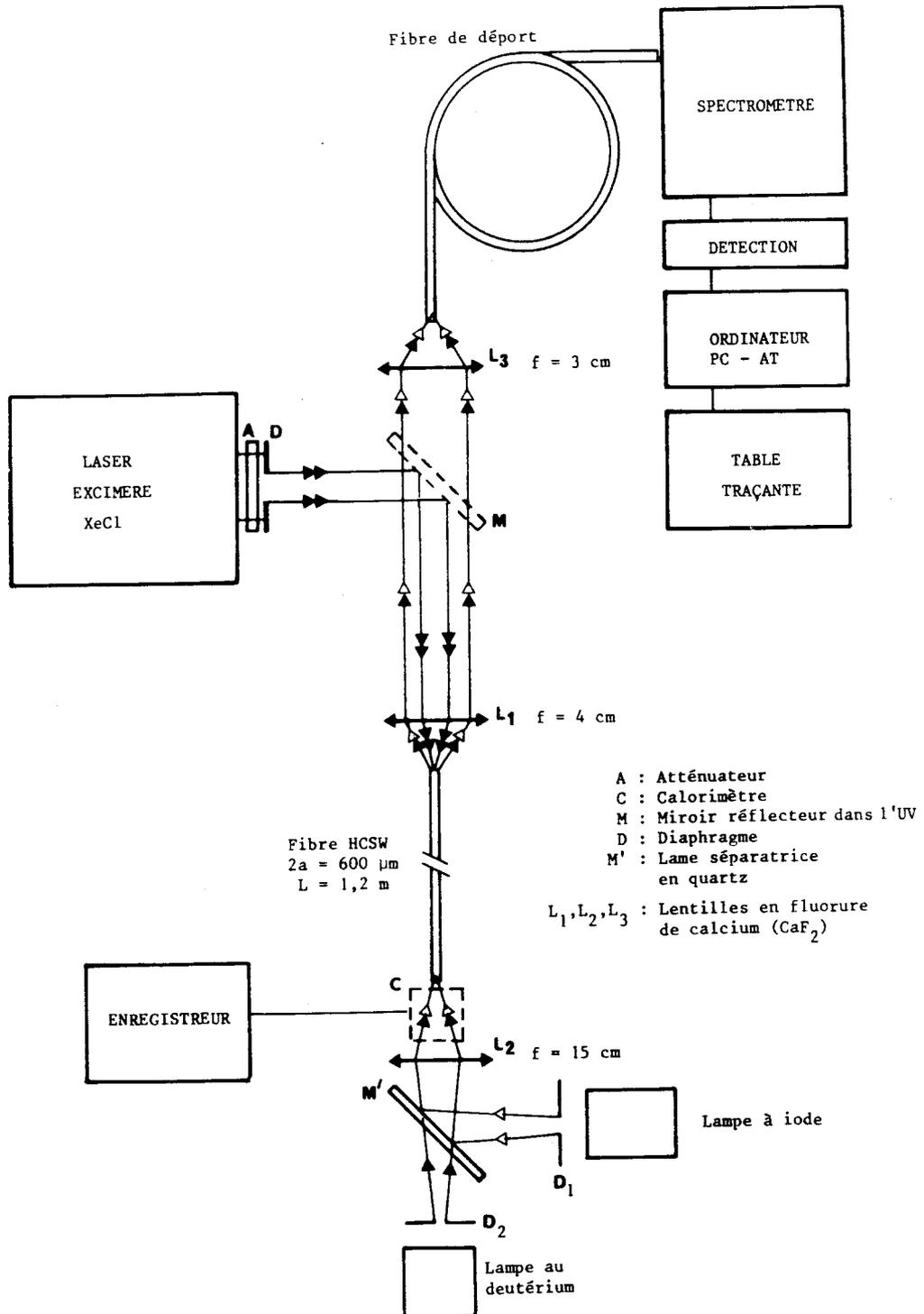


Figure I.41 - Dispositif expérimental utilisé pour l'analyse spectrale d'une fibre en cours d'irradiation.

**I.B.5.4 - Etude de la transmission spectrale (entre 300 nm et 650 nm) d'une fibre rectiligne en cours d'irradiation**

Nous avons montré qu'après irradiation d'une fibre optique rectiligne par des tirs laser répétés à forte fluence, la transmission de la fibre diminue de façon significative à 308 nm. Si l'on couple dans cette fibre le flux lumineux issu d'une source blanche, on constate que la lumière transmise par la fibre est colorée et semble rouge. Cette propriété est particulièrement apparente pour les fibres de type HCS. Pour approfondir cette observation, nous avons analysé la transmission spectrale d'une fibre en cours d'irradiation. Le domaine spectral analysé est compris entre 300 nm et 650 nm. La fibre choisie pour cette expérience est une fibre HCSW-600, de longueur  $L = 1,20$  m. La fibre est maintenue sensiblement rectiligne. La densité d'énergie initiale (mesurée en sortie de fibre) est égale à  $2,8$  J/cm<sup>2</sup>. Le dispositif expérimental permettant l'enregistrement de la transmission spectrale de la fibre irradiée est représenté sur la figure (I.41). Pour procéder à un enregistrement, nous déplaçons tout d'abord le miroir M réflecteur dans l'ultraviolet et le calorimètre C. Le rayonnement issu d'une lampe à deutérium est mélangé par la lame séparatrice M' au flux lumineux provenant d'une lampe blanche à filament de tungstène de type "lampe à iode". Les deux rayonnements sont couplés simultanément dans la fibre HCSW-600. Après traversée de la fibre, les signaux sont dispersés par un spectromètre (Jobin-Yvon QFS-200, résolution 5 nm). La distribution spectrale d'intensité du signal dispersé est détectée par une barette de détecteurs (EGG, modèle 1420). Les intensités relatives des deux signaux sont ajustées au moyen des deux

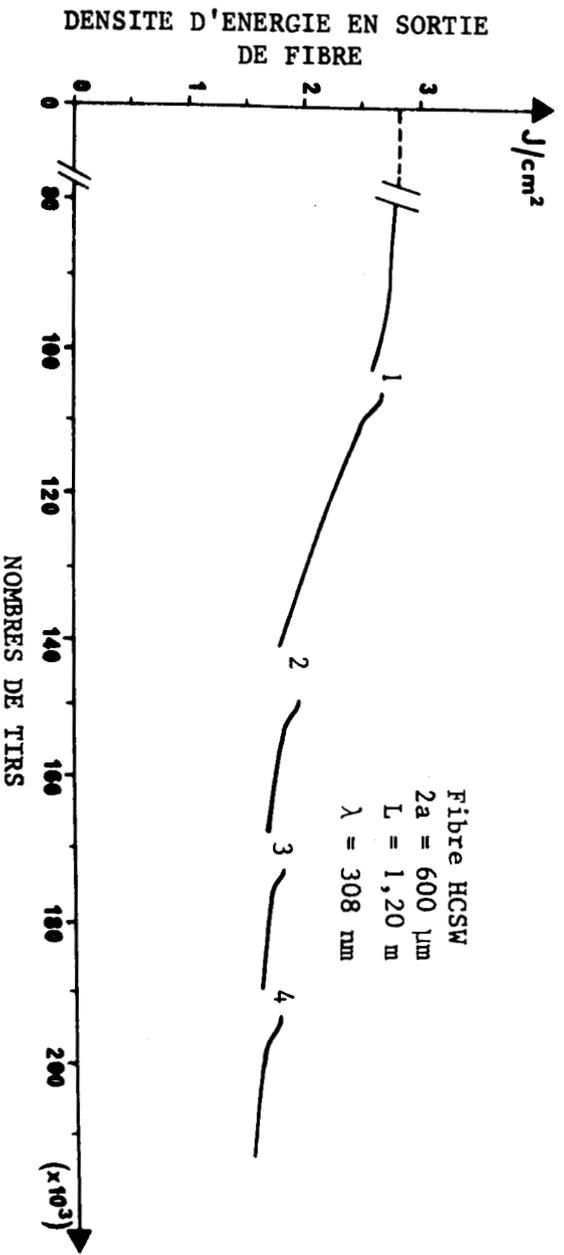


Figure I.42 - Evolution de la densité d'énergie mesurée en sortie d'une fibre HCSW-600 en fonction du nombre de tirs.

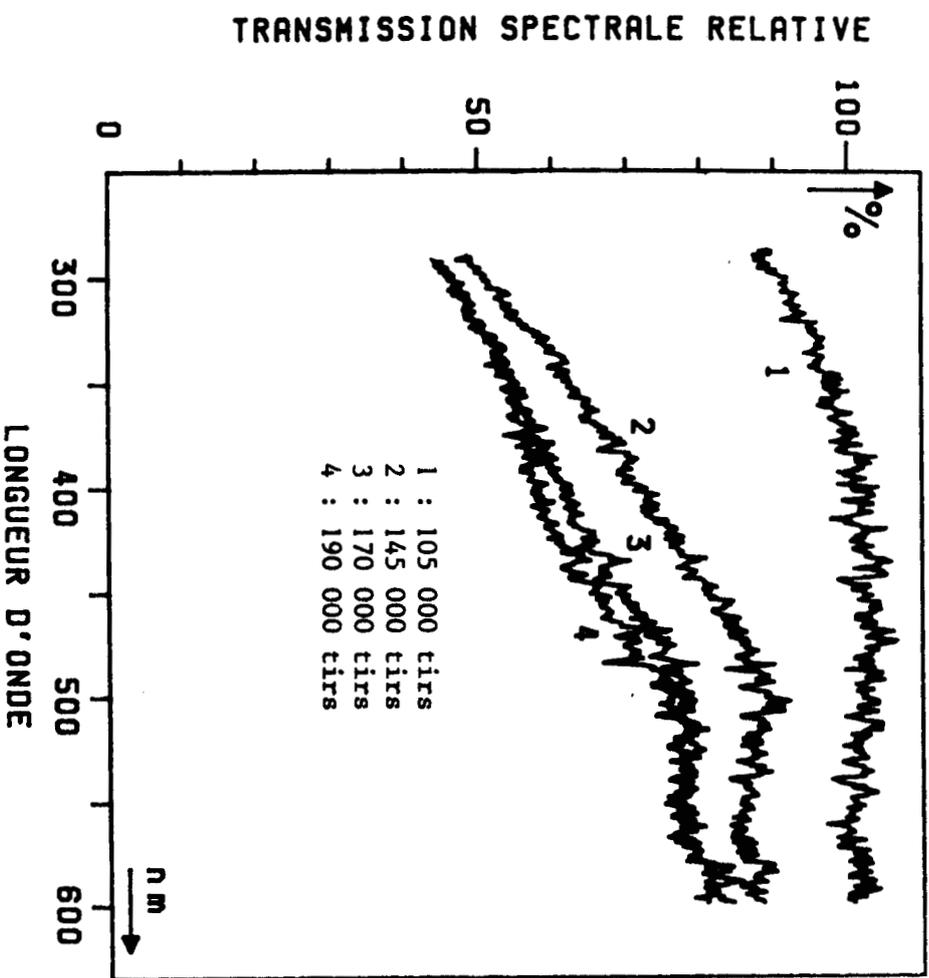


Figure I.43 - Transmission spectrale relative de la fibre HCSW-600 en cours d'irradiation.

diaphragmes  $D_1$  et  $D_2$  de façon à ce que l'intensité du spectre détecté soit sensiblement uniforme sur l'étendue spectrale analysée. Le spectre est numérisé et mémorisé dans un microordinateur de type PC-AT. Le miroir M et le calorimètre C sont alors mis en place et les impulsions délivrées par le laser excimère à XeCl sont injectées dans la fibre à la cadence de 10 Hz. L'énergie transmise, mesurée au moyen du calorimètre C, est enregistrée en fonction du temps.

Une diminution faible de la transmission apparaît au bout de  $10^5$  tirs. L'émission du laser est alors occultée, le miroir et le calorimètre sont déplacés. Le spectre des rayonnements issus de la lampe à deutérium et de la lampe à iode, transmis par la fibre, est à nouveau enregistré. La transmission spectrale relative de la fibre peut alors être calculée comme le simple quotient de l'intensité mesurée pour chaque longueur d'onde après irradiation par celle mesurée avant l'irradiation. Après l'enregistrement le miroir M et le calorimètre sont remis en place. Il est alors nécessaire de procéder au contrôle du centrage de la face d'entrée de la fibre sur l'axe du faisceau laser ultraviolet au moyen du dispositif associant la lunette de visée au laser HeNe. La fibre est ensuite à nouveau soumise au flux laser. Nous avons ainsi enregistré les spectres des signaux transmis par la fibre après différentes séries de tirs.

Des résultats caractéristiques sont présentés sur les figures (I.42) et (I.43). La figure (I.42) montre l'évolution de la transmission de la fibre à la longueur d'onde laser  $\lambda_p = 308$  nm. Les discontinuités de la courbe de transmission correspondent aux intervalles de temps nécessaires à l'enregistrement des spectres des lampes. L'énergie transmise par la fibre au début de chaque nouvelle séquence de tirs est supérieure de quelques pour cent à celle mesurée avant chaque interruption. On peut par ailleurs remarquer que l'on n'observe pas de baisse significative de la trans-

mission après irradiation de la fibre par 50 000 tirs laser. Compte-tenu de la densité d'énergie initiale ( $2,8 \text{ J/cm}^2$ ), ce résultat est en bon accord avec celui obtenu sur une fibre de même type, de diamètre de coeur  $200 \mu\text{m}$  et de longueur  $0,5 \text{ m}$  (figure (I.38b)). Les courbes de transmission spectrale normalisée représentées sur la figure (I.43) montrent que l'atténuation induite par l'irradiation est beaucoup plus importante dans l'ultraviolet ( $\lambda < 400 \text{ nm}$ ) et le bleu ( $400 \mu\text{m} < \lambda < 450 \text{ nm}$ ) que dans le rouge ( $\lambda > 600 \text{ nm}$ ). Ce résultat explique que la lumière transmise par la fibre apparaisse colorée en rouge. Après irradiation par 200 000 tirs, la fibre transmet une densité d'énergie de l'ordre de  $1,54 \text{ J/cm}^2$ , ce qui correspond à une chute de transmission de l'énergie lumineuse en provenance du laser d'environ 45% (figure (I.42)). A faible niveau optique, la chute de transmission à  $308 \text{ nm}$  est d'environ 54% (figure (I.43)). Compte-tenu de la précision des expériences, cette différence entre les transmissions ne peut être considérée comme étant significative avec certitude. Il apparaît donc nécessaire de procéder à des expériences complémentaires (à plus forte fluence par exemple), afin d'établir si une saturation de l'atténuation se produit sous l'effet de la puissance optique.

#### **I.B.5.5 - Mise en évidence du rôle de la gaine optique de fibres PCS et HCS dans l'évolution de la transmission**

Au cours des expériences d'irradiation de fibres PCS et HCS, nous avons effectué les observations qualitatives suivantes :

- la chute de transmission de la fibre est corrélée à un changement de couleur de la fluorescence observée à travers la gaine optique et le revêtement protecteur. Au début des tirs, la fluorescence paraît en effet bleue sur toute la longueur de fibre. Elle devient bleu-vert à mesure que la transmission de la fibre chute sous l'effet des tirs lasers. L'effet est surtout notable pour les trente centimètres de fibre voisins de la face d'entrée. La couleur de la fluorescence n'est alors plus uniforme sur toute la longueur de la fibre ;

- lorsqu'une fibre est soumise à une courbure, il est également possible d'observer ce changement de couleur au cours de l'irradiation, au voisinage de la partie courbée de la fibre ;

La figure (I.44) représente l'évolution, en fonction du nombre de tirs, des densités d'énergie mesurées en sortie de deux fibres HCSW-400 soumises à un flux laser d'énergie maintenue constante. La longueur des fibres est égale à 3 m. L'enregistrement a) correspond à une fibre maintenue rectiligne, et l'enregistrement b) à une fibre soumise à une courbure de rayon 50 cm sous l'effet de son propre poids. La fluence initiale est égale à  $7,3 \text{ J/cm}^2$  pour la fibre rectiligne, et à  $5,4 \text{ J/cm}^2$  pour la fibre courbée.

Au terme de 50 000 tirs, la fibre rectiligne ne transmet plus que  $1,8 \text{ J/cm}^2$ , alors que la transmission de la fibre courbée est voisine de zéro au bout de 15 000 tirs.

Après ces séquences de tirs, nous avons procédé aux trois expériences suivantes :

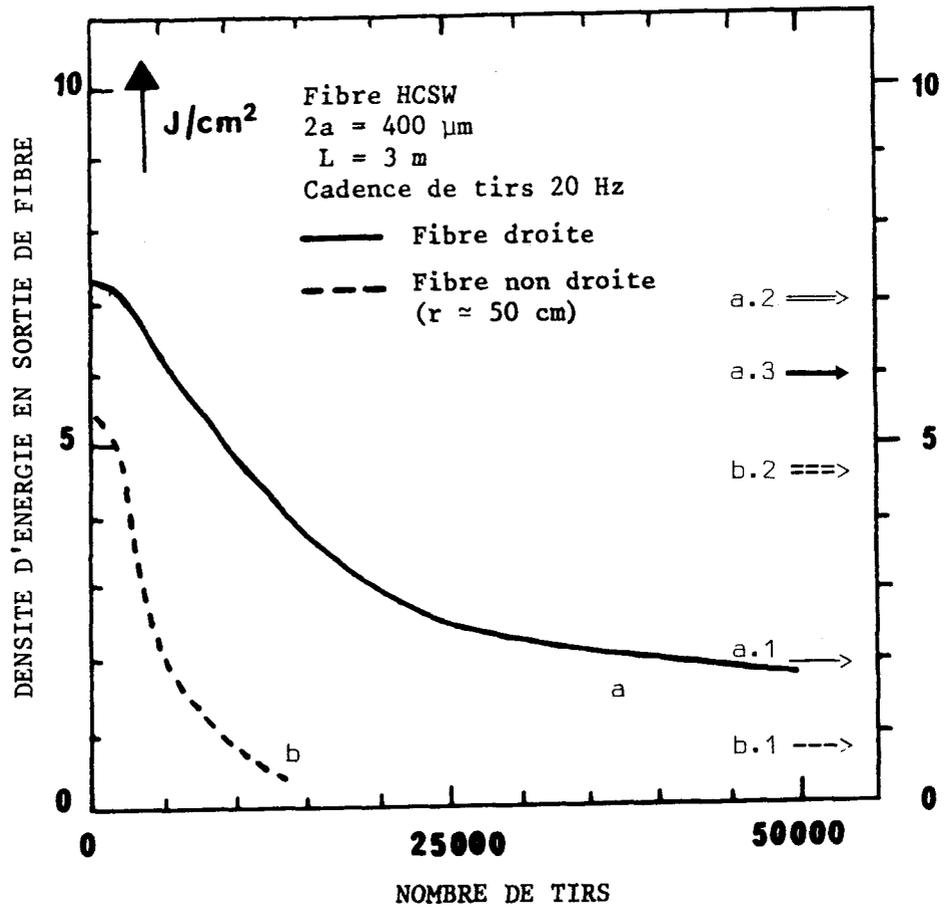


Figure I.44 - Evolution de la fluence mesurée en sortie d'une fibre HCSW-400 :

- a - la fibre est maintenue rectiligne :
  - a.1  $\rightarrow$  indique la fluence obtenue après la séquence de 50 000 tirs et après avoir coupé les trois premiers centimètres de fibre.
  - a.2  $\Rightarrow$  indique la fluence obtenue après avoir coupé les vingt cinq premiers centimètres de fibre.
  - a.3  $\rightarrow$  indique la fluence obtenue après avoir ôté le revêtement protecteur et la gaine optique sur les vingt cinq premiers centimètres de fibre.
- b - la fibre est soumise à une légère contrainte
  - b.1  $\dashrightarrow$  indique la fluence obtenue après avoir coupé les trois premiers centimètres de fibre.
  - b.2  $\Rightarrow$  indique la fluence obtenue après avoir coupé les vingt cinq premiers centimètres de fibre.

1) les trois premiers centimètres des fibres sont coupés, et les faces d'entrée sont à nouveau préparées. Dans les mêmes conditions d'irradiation que précédemment, la fibre rectiligne transmet alors  $2 \text{ J/cm}^2$  et la fibre courbée  $0,7 \text{ J/cm}^2$ .

2) les vingt cinq premiers centimètres de fibre suivants sont ensuite coupés et les faces d'entrée à nouveau préparées. La fibre rectiligne transmet alors maintenant  $7 \text{ J/cm}^2$ , et la fibre courbée  $4,5 \text{ J/cm}^2$ .

3) la fibre rectiligne est soumise à une séquence de 50 000 tirs supplémentaires. La chute de sa transmission présente un aspect analogue à celui de la figure (I.44a). Le revêtement protecteur et la gaine optique de la fibre sont alors délicatement enlevés sur une longueur d'environ 25 cm. Après cette opération, la fibre transmet  $6 \text{ J/cm}^2$ .

Des expériences similaires ont été réalisées sur une fibre PCS-600 de longueur 3 m. Elles ont conduit à des résultats analogues. Aucune expérience de ce type n'a été effectuée sur des fibres STU.

Afin de mettre en évidence une éventuelle dégradation de la nature chimique du matériau constituant la gaine optique, nous avons enregistré le spectre d'absorption infrarouge de fragments de gaine optique prélevés sur les vingt premiers centimètres d'une fibre HCSW ayant subi une séquence de 30 000 tirs réalisés à une fluence de  $7 \text{ J/cm}^2$ . Pour procéder à cet enregistrement, des fragments de gaine sont broyés puis mélangés à de la poudre de KBr. Une pastille de 1 mm d'épaisseur est ensuite réalisée par compression du mélange. Une pastille témoin est fabriquée de façon analogue avec des fragments de gaine prélevés sur une fibre neuve. Deux spectres d'absorption, correspondant chacun à

l'une des deux pastilles, sont alors enregistrés par spectrométrie de Fourier, dans des conditions identiques de résolution.

Des différences qualitatives faibles apparaissent entre des raies des deux spectres, situées vers  $2900 \text{ cm}^{-1}$ . Ces raies n'ont pas été identifiées, mais la différence a pu être observée sur deux spectres obtenus à partir des échantillons de gaine prélevés sur deux fibres irradiées distinctes. Nous pouvons donc supposer que l'irradiation de la gaine par le rayonnement U.V. conduit à des modifications des liaisons chimiques de son matériau constitutif. Cette hypothèse doit toutefois être encore étayée par des expériences complémentaires.

#### **I.B.5.6 - Discussion**

Nos expériences établissent que la transmission des fibres PCS et HCS diminue fortement dans l'ultraviolet, le violet et le bleu, sous l'effet d'une irradiation prolongée à 308 nm.

Etant donné que la transmission d'une fibre irradiée se trouve en grande partie récupérée lorsque les trente premiers centimètres de gaine sont enlevés, nous pouvons supposer qu'une dégradation de la nature chimique est photo-induite dans le matériau constituant la gaine, augmentant ainsi son coefficient d'absorption (et/ou son indice). Cette hypothèse se trouve étayée par le changement de couleur de la fluorescence, observé au travers de la gaine et du revêtement protecteur au cours des tirs. Une augmentation du coefficient d'absorption de la gaine entraîne une diminution de la transmission de la gaine (relation I.23). Une augmentation locale de l'indice de fibre se traduit par une diminution de l'ouverture numérique de la fibre, et donc par des

fuites d'énergie localisées au voisinage de la gaine d'indice modifié. Le fait que l'altération de la gaine ne se produise qu'en proximité de la face d'entrée de la fibre rectiligne n'est pas encore clairement expliqué. Nous pouvons toutefois émettre l'hypothèse selon laquelle la face d'entrée de la fibre diffuse une partie non négligeable du flux incident. Rappelons tout d'abord que les fibres sont préparées de sorte que la gaine optique est enlevée sur une longueur de trois centimètres à partir de la face d'entrée. L'énergie diffusée par la face d'entrée localisée dans un cône d'angle au sommet  $\theta \simeq 42^\circ$  est guidée par le guide constitué par le coeur et l'air ambiant. Après propagation sur trois centimètres les rayons correspondants pénètrent dans la partie gainée de la fibre pour laquelle l'ouverture numérique est plus faible ( $ON = 0,37$  pour la fibre avec gaine optique, soit un angle maximal avec l'axe de la fibre d'environ  $11^\circ$ ). Les rayons faisant un angle  $\theta$  avec l'axe de la fibre, compris entre  $\theta_1 = 11^\circ$  et  $\theta_2 = 42^\circ$ , sont alors réfractés ou guidés à fuite. Nous supposons que ces rayons sont fortement atténués au bout d'une trentaine de centimètres.

Dans ce modèle, le début de la gaine se trouve ainsi soumis à un rayonnement U.V. provenant de la diffusion par la face de la fibre. Ce rayonnement s'ajoute également à celui provenant de la diffusion Rayleigh, maximal en début de fibre puisque le faisceau ultraviolet s'atténue progressivement au cours de sa propagation dans la fibre.

D'un point de vue dynamique, la gaine de l'extrémité de fibre soumise à l'irradiation U.V. commence par se dégrader au début de la séquence de tirs. L'irradiation de la gaine, et de ce fait sa dégradation, augmentent alors ensuite, bien que l'énergie incidente soit maintenue constante. Le reste de la fibre est soumis à un flux ultraviolet dont l'intensité décroît avec la transmission de la fibre.

De ce fait, l'irradiation par diffusion Rayleigh de la gaine diminue dans cette partie de fibre qui se trouve ainsi protégée.

Lorsque la fibre est courbée, il n'existe plus de rayons guidés au sens strict du terme (cf § I.A.1.5). Les rayons se propageant dans la fibre sont alors des rayons réfractés ou guidés à fuite, et il est alors possible d'invoquer les mêmes arguments pour expliquer la chute de transmission de la fibre. La gaine subit ainsi une dégradation locale dans la partie courbée beaucoup plus importante que celle survenant dans le cas d'une fibre rectiligne.

Le modèle simplifié que nous venons de présenter ne permet cependant pas d'interpréter toutes nos observations. En particulier, l'amélioration occasionnelle de la transmission de la fibre après arrêt de l'irradiation (gain d'environ 15%), ou encore l'amélioration observée lorsque la fibre est replacée rectiligne après avoir été irradiée en position courbée (gain d'environ 75%), ne s'interprète pas aisément. Il reste donc à procéder à des expériences complémentaires pour mieux appréhender les mécanismes de la photodégradation de la gaine.

## **I.B.6 - ETUDE DE LA LUMINESCENCE OBSERVEE LORS DE L'IRRADIATION DES FIBRES PAR LES IMPULSIONS ULTRAVIOLETES**

### **I.B.6.1 - Introduction**

Nous avons signalé dans le paragraphe I.B.4.1. que l'irradiation de la fibre par le laser à XeCl se traduit par l'excitation d'un signal de fluorescence, synchrone de l'impulsion pompe. Sous l'effet des tirs lasers, une émission de couleur rouge prend également naissance dans le coeur de la fibre et apparaît visible aux deux extrémités de fibre. Une simple observation montre que l'intensité de cette nouvelle émission, très faible par rapport à l'intensité du laser, dépend de la nature de la fibre, de la quantité d'énergie couplée dans la fibre et du nombre de tirs effectués. Nous présentons dans ce paragraphe les expériences réalisées afin de caractériser la nature et l'origine de cette émission.

### **I.B.6.2 - Etude spectrale**

Nous avons enregistré le spectre de l'émission rétrodiffusée en provenance de l'entrée d'une fibre en cours d'irradiation en utilisant le dispositif représenté sur la figure I.45. L'émission issue de l'extrémité de fibre est recueillie et transformée en faisceau quasi-parallèle par la lentille  $L_1$  de distance focale 4 cm. Après traversée du miroir M, réflecteur dans l'U.V., et du filtre F coupant l'U.V., l'émission est injectée dans un monochromateur (Jobin-Yvon, HR-20, résolution 5 nm). La détection est réalisée à l'aide d'un photomultiplicateur (Hamamatsu, R955, temps de montée 2,2 ns) relié à un intégrateur à porte.

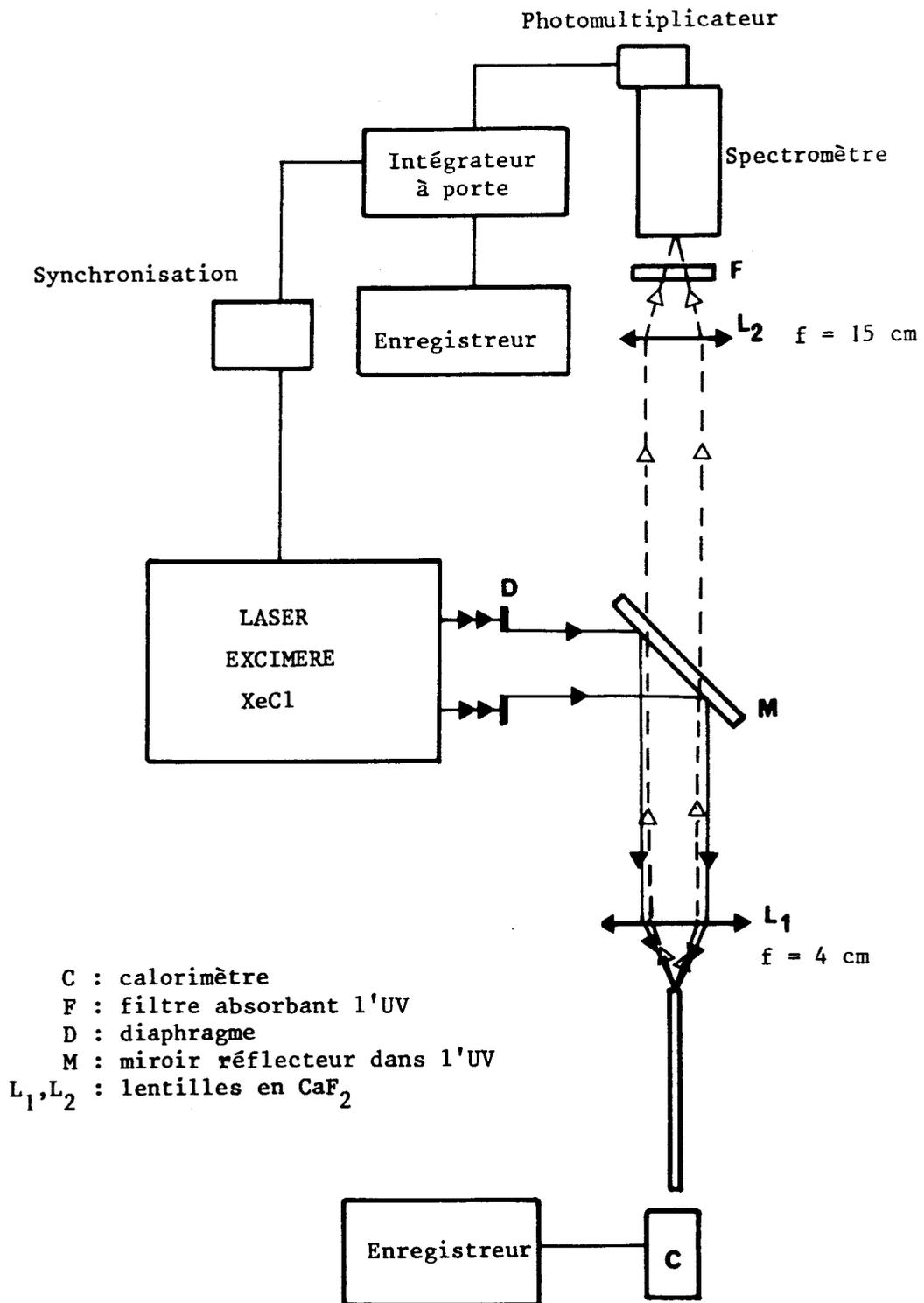


Figure I.45 - Dispositif de détection de l'émission rétrodiffusée en provenance du coeur de fibre.

L'ouverture de la porte de largeur temporelle  $1 \mu\text{s}$  est déclenchée en synchronisme avec l'impulsion de pompe. Nous avons représenté sur la figure (I.46) les spectres rétrodiffusés par une fibre PCS-600. Le premier spectre est relevé à 15 000 tirs lasers (figure (I.46a)) et le second est enregistré dans les mêmes conditions à 30 000 tirs lasers (figure (I.46b)). Les signaux se situant aux longueurs d'onde inférieures à 600 nm correspondent à la fluorescence de la fibre et des optiques et à la raie excitatrice  $\lambda = 308 \text{ nm}$ . La luminescence rouge se présente sous la forme d'une bande large centrée sur la longueur d'onde 640 nm. Comme le montre la figure (I.46b), son intensité relative par rapport au pic de fluorescence augmente avec le nombre de tirs. Un calcul approché du facteur de transmission de la chaîne de mesure à  $\lambda = 308 \text{ nm}$  et à  $\lambda = 640 \text{ nm}$  permet d'estimer à partir de l'enregistrement de la figure (I.46) que l'intensité de la luminescence est environ  $10^6$  fois plus faible que celle du laser de pompe.

### **I.B.6.3 - Etude temporelle**

Nous avons enregistré (figure (I.47)) l'évolution temporelle du signal de luminescence en remplaçant l'intégrateur à porte, utilisé dans le montage de la figure (I.45), par un oscilloscope digital de bande passante 1 GHz (Hewlett-Packard, 54100 A). L'enregistrement a été effectué à la longueur d'onde 640 nm, sélectionnée par le monochromateur. Le signal de luminescence présente une évolution temporelle complexe. Après un temps de montée de l'ordre de  $1 \mu\text{s}$ , l'intensité de la luminescence décroît rapidement pendant quelques microsecondes, puis présente une décroissance beaucoup plus lente s'étalant sur une échelle de temps de plusieurs dizaines de microsecondes.

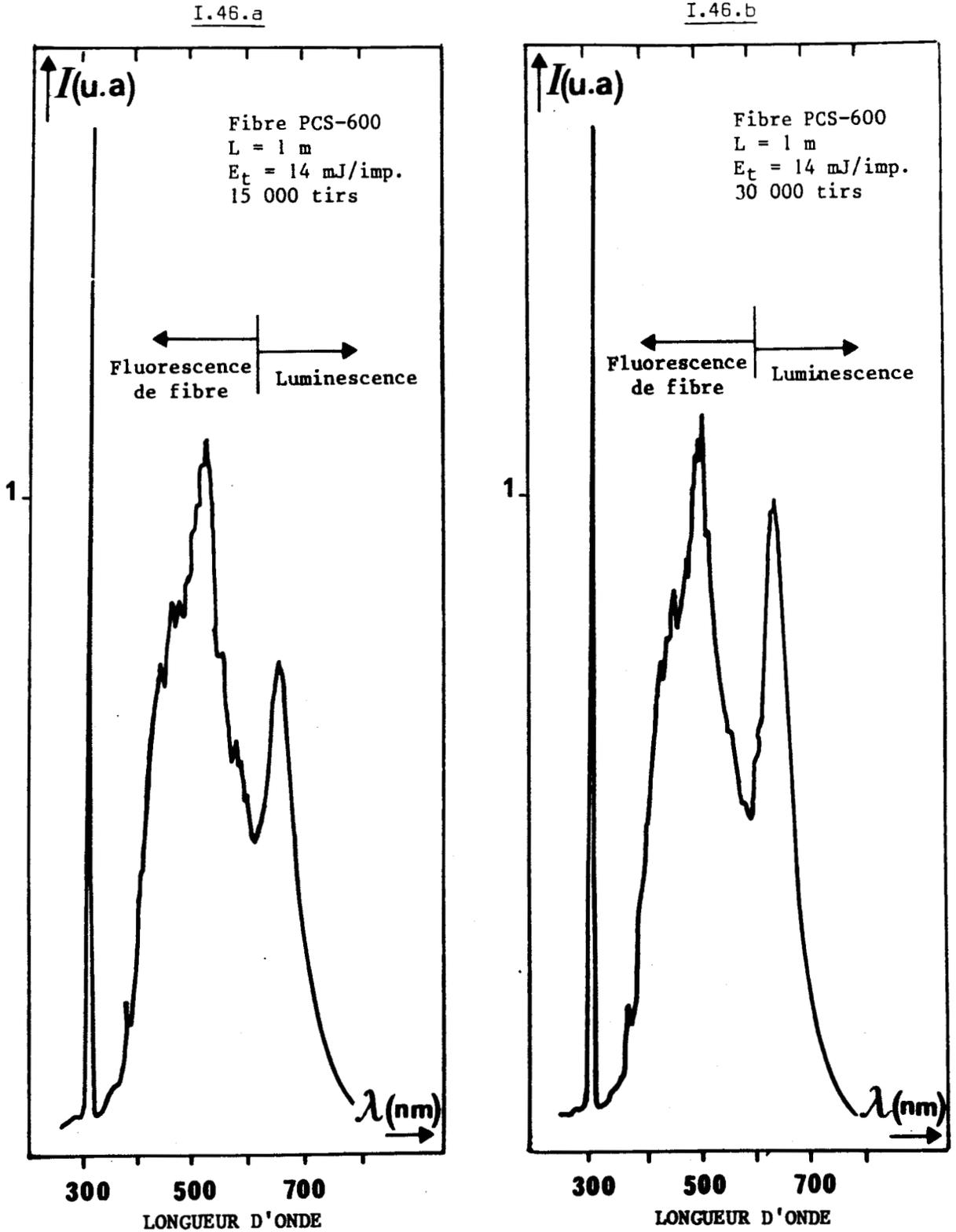


Figure I.46 - Distributions spectrales d'intensité du signal émis par une fibre (PCS-600) soumise à l'irradiation laser relevées :  
I.46.a : aux environs de 15 000 tirs  
I.46.b : aux environs de 30 000 tirs.

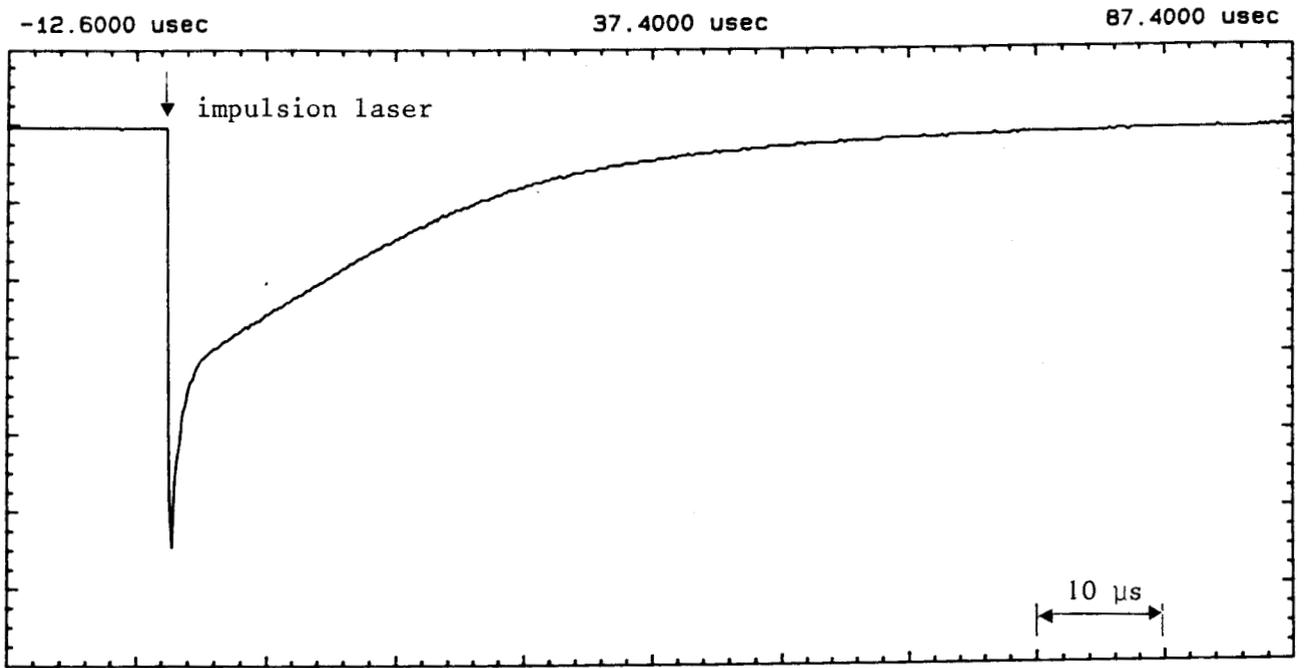


Figure I.47 - Distribution temporelle d'énergie du signal de luminescence rouge.

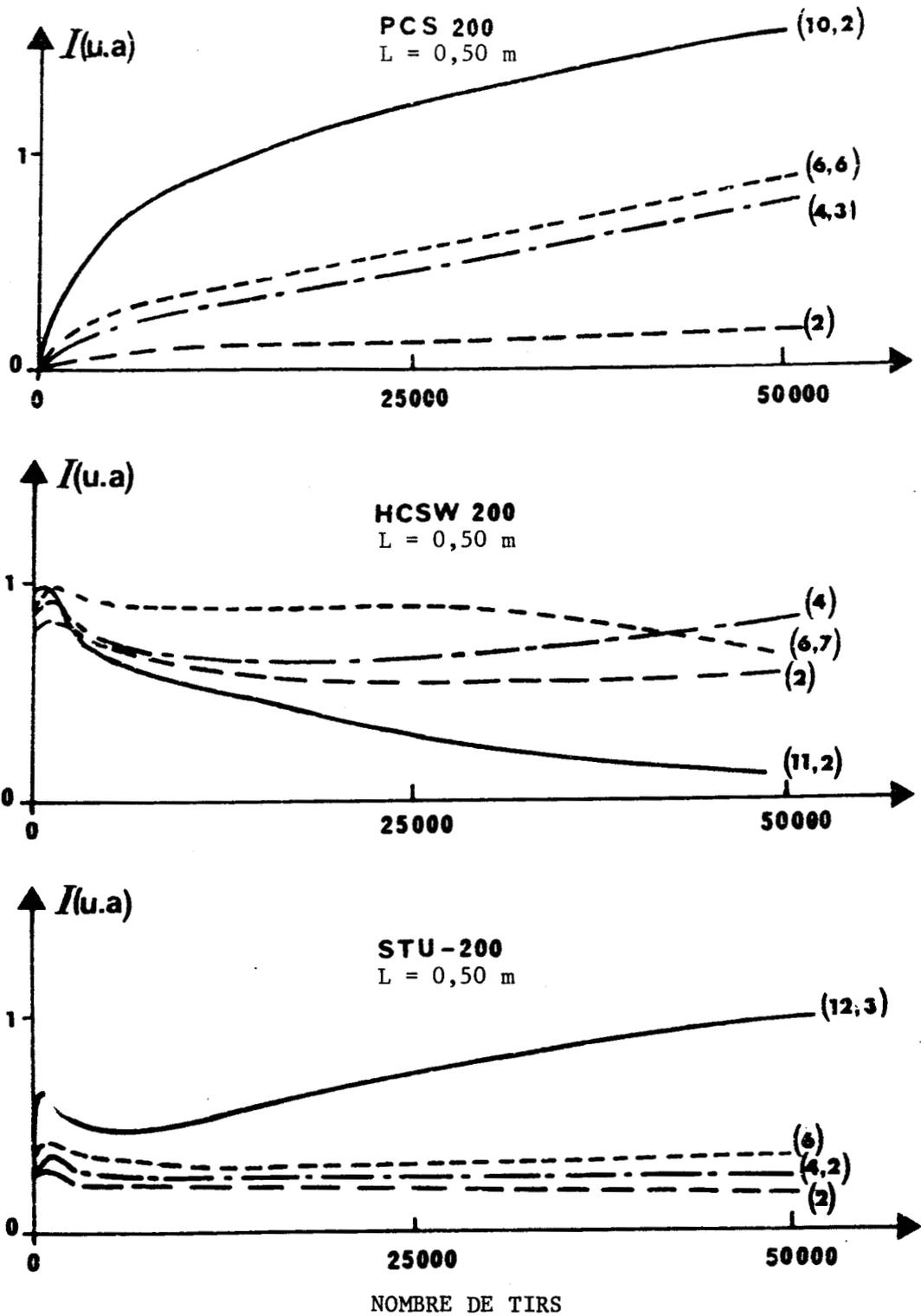


Figure I.48 - Evolution de l'intensité de la luminescence rouge ( $\lambda = 640$  nm) en fonction du nombre de tirs. Les chiffres entre parenthèses correspondent aux valeurs de la densité d'énergie à  $\lambda = 308$  nm, relevées en sortie des fibres (figures I.38).

**I.B.6.4 - Etude de l'évolution de l'intensité de la luminescence rouge ( $\lambda = 640$  nm), en fonction du nombre de tirs**

Cette étude a été réalisée simultanément à l'étude de la transmission des fibres en fonction du nombre de tirs. Les conditions d'excitation des fibres sont donc identiques à celles décrites dans le paragraphe I.B.5-2-1. Nous avons enregistré la variation de l'intensité de la luminescence rouge ( $\lambda = 640$  nm), au moyen du dispositif représenté sur la figure (I.45). Les résultats sont présentés sur la figure (I.48). Les valeurs notées entre parenthèses correspondent aux densités d'énergie initiales mesurées en sortie des fibres ( $\lambda = 308$  nm). Comme il apparaît sur la figure (I.48), l'intensité de la luminescence rouge issue des fibres PCS augmente avec le nombre de tirs depuis la valeur zéro selon une loi monotone. Au début des tirs, l'intensité de la luminescence est noyée dans le bruit de détection et atteint après 50 000 tirs une valeur d'autant plus importante que la fluence initiale est élevée. Dans le cas des fibres HCSW et STU, l'intensité de la luminescence, différente de zéro dès les premiers tirs, atteint un maximum en mille tirs environ. Le signal diminue ensuite pendant 5 000 à 10 000 tirs puis augmente de façon monotone.

Nous pouvons cependant remarquer que deux cas particuliers se présentent dans le cas des fibres HCSW. En effet, tant que la densité d'énergie initiale est inférieure à  $4 \text{ J/cm}^2$ , le comportement des fibres HCSW est semblable à celui décrit ci-dessus. Lorsque la fluence initiale est égale à  $11,2 \text{ J/cm}^2$ , l'intensité de la luminescence décroît de façon monotone après le premier maximum. Pour une fluence de  $6,7 \text{ J/cm}^2$ , le comportement de la fibre s'avère encore plus complexe. Après le premier maximum, l'intensité du signal de luminescence reste sensiblement constant jusqu'à 30 000 tirs, puis décroît de façon monotone.

### **I.B.6.5 - Discussion**

Le fait que la luminescence rouge apparaisse dans les fibres HCSW-200 et STU-200 dès les premiers tirs, sans que son intensité augmente ensuite significativement au cours de l'irradiation, montre que ce phénomène n'est pas corrélé à la dégradation de la gaine à l'origine de la chute de transmission observée dans ces fibres. Un autre argument peut par ailleurs être avancé en faveur de cette affirmation. En effet, le signal de luminescence peut toujours être observé en extrémité de fibre, après que la gaine optique ait été enlevée sur les trente premiers centimètres d'une fibre HCS irradiée, afin d'améliorer le facteur de transmission de la fibre (§ I.B.5.5).

Dans l'état actuel de nos expériences, nous ne pouvons pas expliquer les mécanismes responsables de cette émission. Signalons cependant qu'une émission semblable a déjà été observée dans d'autres laboratoires [20,43,46], par exemple lors de l'irradiation de silice par des impulsions simultanées issues de laser à  $F_2$  ( $\lambda_p = 157$  nm) et de laser à azote ( $\lambda_p = 337$  nm) [46]. Les auteurs de la référence [46] attribuent la luminescence rouge à la formation de centres colorés dont l'origine n'est pas clairement établie à ce jour.

Nous pouvons cependant supposer dans nos expériences que la luminescence rouge est excitée par le rayonnement à 308 nm à partir de centres colorés préexistants dans la fibre (cas des fibres STU et HCSW) et (ou) induits dans la fibre par les impulsions ultraviolettes (fibres HCSW, STU et PCS). Dans le cas des fibres HCS irradiées à forte fluence, la luminescence rouge décroît avec le nombre de tirs. Cette

évolution s'interprète par la chute de transmission de la fibre dans les trente premiers centimètres. Les centres colorés situés en aval sont de moins en moins excités à mesure que la transmission de la fibre diminue. Dans le cas d'une fibre STU irradiée à  $12,3 \text{ J/cm}^2$ , la luminescence rouge augmente en fonction du nombre de tirs alors que la transmission de la fibre diminue ((figure I.38c, où la transmission de la fibre chute de 10% pour 50 000 tirs). Le mécanisme à l'origine des chutes de transmission des fibres STU n'a pas été étudié. Il n'est donc pas certain que cette chute de transmission s'explique par une dégradation de la gaine voisine de la face d'entrée de la fibre.

#### I.B.7 - CONCLUSION

Nous avons traité de façon expérimentale différents aspects du problème posé par la transmission d'impulsions ultraviolettes délivrées par un laser excimère à XeCl ( $\lambda = 308 \text{ nm}$ ) dans des fibres optiques destinées à un usage médical.

Nous avons tout d'abord déterminé les seuils de fracture optique de différents types de fibre. Ces mesures montrent que les fibres à coeur en silice et à gaine en silice (dopée au fluor) présentent des valeurs de seuil de fracture supérieures aux autres types de fibre (typiquement  $18 \text{ J/cm}^2$  pour une fibre STU-200, dans nos conditions d'expérience).

Nous avons mis ensuite en évidence le fait que la transmission des fibres diminuait au cours de leur irradiation. Une étude systématique réalisée pour les trois types de fibre sur 50 000 tirs montre que seules les fibres à coeur en silice et à gaine en silice dopée sont capables de

transmettre de l'énergie de façon stable à forte fluence ( $> 6 \text{ J/cm}^2$ ) . Nous avons établi que la chute de transmission des fibres PCS et HCS était liée à une dégradation de la gaine survenant dans les trente premiers centimètres de fibre. Nous avons également déterminé les caractéristiques de la luminescence de couleur rouge émise par le coeur de fibre lors de l'exposition de la fibre au flux laser ultraviolet. Cette luminescence résulte de l'excitation de centres colorés non identifiés. Il apparaît que ces derniers ne participent pas de façon significative à la chute de transmission des fibres HCS et PCS.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES DU CHAPITRE I

- [1] J. YUEN  
Ultraviolet absorption studies of germanium silicate glasses  
Applied Optics, vol. 21, n° 1, pp. 136-140, 1982.
- [2] A.W. SNYDER, J.D. LOVE  
Optical waveguide theory  
Chapman et Hall, New-York, London, 1983.
- [3] J.L. BOULNOIS  
Photophysical processes in recent medical laser developments : A review  
Lasers Med. Sci., vol. 1, pp. 47-66, 1986.
- [4] D. GLOGE  
Weakly guiding fibers  
Applied Optics, vol. 10, n° 10, pp. 2252-2258, 1971.
- [5] A.W. SNYDER, C. PASK, D.J. MITCHELL  
Light acceptance of an optical fiber  
Journal of the Optical Society of America, vol. 63, n° 1, pp. 59-64, 1973.
- [6] P. NIAY, P. BERNAGE  
Principes de transmission optique dans "Lasers en médecine et en chirurgie"  
Ed. S.F.L.M. (Société Française des Lasers Médicaux), à paraître.

- [7] J.P. POCHOLLE, L. D'AURIA, B. MULLER, Y. COMBEMALE  
Caractérisation des fibres optiques multimodes fondée sur  
l'excitation ou l'analyse sélective des modes  
Revue Technique Thomson-CSF, vol. 13, n° 4, pp. 915-942,  
1981.
- [8] I.H. MALITSON  
Interspecimen comparison of the refractive index of  
fused silica  
Journal of the Optical Society of America, vol. 55,  
n° 10, pp. 1205-1209, 1965.
- [9] J.E. MIDWINTER  
Optical fibers for transmission  
Wiley-Interscience, New-York, 1979.
- [10] R. OLSHANSKY  
Propagation in glass optical waveguides  
Reviews of Modern Physics, vol. 51, n° 2, pp. 341-367,  
1979.
- [11] B.G. BAGLEY, C.R. KURKIJAN, J.W. MITCHELL, G.E. PETERSON,  
A.R. TYNES  
Materials, properties and choices  
Optical fiber telecommunication, Academic Press,  
New-York, 1979.
- [12] Y. HIBINO, H. HANAFUSA  
Consolidation-atmosphere influence on drawing-induced  
defects in pure silica optical fibers  
Journal of Lightwave Technology, vol. 6, n° 2,  
pp. 172-178, 1988.

- [13] A. DEMANGE  
Mecanismes des pertes de puissance en fonction de  
l'incidence dans les fibres optiques à saut d'indice  
Thèse - Toulouse, 1983.
- [14] C. WINKLER, J.D. LOVE, A.G. HATAK  
Loss calculations in bent multimode optical waveguides  
Optical and Quantum Electronics, vol.11, pp. 173-183,  
1979.
- [15] D. GLOGE  
Bending loss in multimode fibers with graded and ungraded  
core index  
Applied Optics, vol. 11, n° 11, pp. 2506-2513, 1972.
- [16] S.W. ALLISON, G.T. GILLIES, D.W. MAGNUSON, T.S. PAGANO  
Pulsed laser damage to optical fibers  
Applied Optics, vol. 24, n° 19, pp. 3140-3144, 1985.
- [17] N. BLOEMBERGEN  
Role of cracks, pores and absorbing inclusions on laser  
induced damage threshold at surfaces of transparent  
dielectrics  
Applied Optics, vol. 12, n° 4, pp. 661-664, 1973.
- [18] B.G. GORSHKOV, A.S. EPIFANOV, A.A. MANENKOV, A.A. PANOV  
Studies of laser produced damage to transparent optical  
material in the UV region and in crossed UV-IR beams  
Natl. Bur. Stand. US. Spec. Publ., vol. 638, pp. 76-85,  
1981.
- [19] R.S. TAYLOR, K.E. LEOPOLD, S. MIHAILOV  
Damage measurements of fused silica fibers using long  
optical pulse XeCl lasers  
Optics Communication, vol. 63, n° 1, pp. 26-31, 1987.

- [20] R.S. TAYLOR, K.E. LEOPOLD, A.K. BRIMACOMBE, S. MIHAILOV  
Dependance of the damage and transmission properties of  
fused silica fibers on the excimer laser wavelengths  
Applied Optics, vol. 27, n° 15, pp. 3124-3134, 1988.
- [21] R.H. STOLEN  
Non linear properties of optical fibers  
Optical fiber telecommunication, Academic Press,  
New-York, 1979.
- [22] Sedi-Fibres Optiques : documentation commerciale  
Z.I. St Guénault, 91031 EVRY Cedex
- [23] T. MIZUNAMI, K. TAKAGI  
Two-photon absorption in silica optical fibers measured  
with a XeBr excimer laser  
Optics Communication, vol. 63, n° 3, pp. 223-227, 1988.
- [24] P. LIU, W.L. SMITH, H. LOTEM, J.H. BECHTED,  
N. BLOEMBERGEN, R.S. ADHAV  
Absolute two-photon absorption coefficients at 355 and  
266 nm  
Physical Review B, vol. 17, n° 12, pp. 4620-4632, 1978.
- [25] R.H. STOLEN, C. LEE, R.K. JAIN  
Development of the stimulated Raman spectrum in  
single-mode silica fibers  
J. Opt. Soc. Am. B., vol. 1, n° 4, pp. 652-657, 1984.
- [26] R.G. SMITH  
Optical power handling capacity of low loss optical fiber  
as determined by stimulated Raman and Brillouin scattering  
Applied Optics, vol. 11, n° 11, pp. 2489-2494, 1972.

- [27] J. AUYEUNG, A. YARIV  
Spontaneous and stimulated Raman scattering in long  
low-loss fibers  
IEEE J. of Quantum Electronics, vol. QE 14, pp. 347-352,  
1978.
- [28] K. MOCHIZUKI  
Optical fiber transmission systems using stimulated  
Raman scattering : theory  
Journal of Lightwave Technology, vol. LT3, pp. 688-694,  
1985.
- [29] M.L. DAKSS, P. MELMAN  
Amplified spontaneous Raman scattering and gain in fiber  
Raman amplifier  
Journal of Lightwave Technology, vol. LT3, pp. 806-813,  
1985.
- [30] C. YIJIANG, A. SNYDER  
Saturation and depletion effect of Raman scattering in  
optical fibers  
Journal of Lightwave Technology, n° 7, pp. 1109-1117,  
1989.
- [31] L. JEUNHOMME  
Single-mode fiber optics  
M. Dekker éditeur, New-York, 1983.
- [32] K.J. BLOW, N.J. DORAN  
IEEE Proceedings, vol. 134, Pt J, n° 3, 1987.
- [33] T. MIZUNAMI, T. MIYAZAKI, K. TAKAGI  
Short-pulse ultraviolet fiber Raman laser pumped by a  
XeCl excimer laser  
J. Opt. Soc. Am. B, vol. 4, n° 4, pp. 498-504, 1987.

- [34] M. ROTSCCHILD, H. ABAD  
Stimulated Raman scattering in fibers in the ultraviolet  
Optics Letters, vol. 8, n° 12, pp. 653-655, 1983.
- [35] A.J. TAYLOR, R.B. GIBSON, J.P. ROBERTS  
Two-photon absorption at 248 nm in ultraviolet window  
materials  
Optics Letters, vol. 13, n° 10, pp. 814-816, 1988.
- [36] P. BERNAGE, P. NIAY, H. BOCQUET  
Optically pumped lasers from  $\text{Na}_2$   $D^1\Pi_u$  state  
Optics Communication, vol. 70, n° 4, pp. 319-324, 1989.
- [37] M. BERTIN, J.P. FAROUX, J. RENULR  
Optique géométrique  
Dunod Université, 1978.
- [38] D. GLOGE, P.W. SMITH, D.L. BISBEE, E.L. CHINNOCK  
Optical fiber and preparation for low-loss splices  
The Bell System Technical Journal, vol. 52, n° 9,  
pp. 1579-1588, 1973.
- [39] M. FRANÇON  
Diffraction, cohérence en optique  
Gauthier-Villars éditeur, 1964.
- [40] Ealing  
Z.I. Courtaboeuf, 91943 Les Ulis.
- [41] SOPRA  
92270 Bois Colombes.

- [42] R. PINI, R. SALIMBENI, M. VANNINI  
Optical fiber transmission of high power excimer laser radiation  
Applied Optics, vol. 26, n° 19, pp. 4185-4189, 1987.
- [43] C. WHITEHURST, M.R. DICKINSON, T.A. KING  
Ultraviolet pulse transmission in optical fibres  
J. of Modern Optics, vol. 35, n° 3, pp. 371-385, 1988;
- [44] M.T. VELLUET, L.B. JEUNHOMME  
Tenue des fibres optiques aux flux laser argon et yag  
Actes de Conférence, OPTO 87, pp. 121-124.
- [45] Y. ITOH, K. KUNITOMO, M. OBARA, T. FUJIOKA  
High power KrF laser transmission through optical fibers  
and its application to the triggering of gas switches  
J. Appl. Phys., vol. 54, n° 6, pp. 2956-2961, 1983.
- [46] J.H. STATHIS, M.A. KASTNER  
Vacuum-ultraviolet generation of luminescence and  
absorption centres in a SiO<sub>2</sub>  
Philosophical Magazine B, vol. 49, n° 4, pp. 357-362,  
1984.
- [47] M. BORN, E. WOLF  
Principles of Optics  
Pergamon Press, New-York, 1959.

LISTE DES FIGURES ET TABLEAUX DU CHAPITRE I

Figure I.1 - Trajet de rayons méridiens et non méridiens dans une fibre à saut d'indice parfaitement cylindrique

Figure I.2 - Couplage d'un rayon méridien dans une fibre à saut

Figure I.3 - Propagation de rayons non-méridiens à fuite dans le coeur, la gaine et le revêtement de fibre  
( $n_{\text{revêtement}} < n_g$ )

Figure I.4 - Vue de face des cônes d'acceptance des rayons guidés et des rayons guidés à fuite

Figure I.5 - Mise en évidence de la conservation de l'angle  $\theta$

Figure I.6 - Evolution du facteur de transmission d'un pinceau de rayons parallèles méridiens en fonction de l'angle d'incidence sur le coeur de fibre

Figure I.7 - Schéma du montage optique utilisé pour coupler le faisceau laser à la fibre

Figure I.8 - Variation du coefficient de réflexion  $\rho$  en fonction de l'angle d'incidence  $\theta_0$

Figure I.9 - Trajet de rayons se propageant dans le plan méridien contenant le centre de courbure

Figure I.10 - Variation du rayon de courbure de fibre minimal  $R_c$  en fonction du diamètre de coeur de fibre, pour différentes ouvertures numériques ( $\lambda = 308 \text{ nm}$ )

Figure I.11 - Evolution du seuil de fracture optique normalisé en fonction du diamètre de coeur de fibre, pour des durées d'impulsion  $\tau = 20$  ns et  $\tau = 300$  ns

Figure I.12 - Evolution de la puissance pompe et de la puissance Stokes mesurée en sortie de fibre en fonction de la puissance pompe injectée, pour différentes longueurs de fibre

Figure I.13 - Variation de la densité d'énergie critique, correspondant au seuil d'apparition de l'effet Raman, en fonction de la longueur de fibre

Figure I.14 - Evolution de la densité d'énergie critique d'effet Raman en fonction de la durée d'impulsion

Figure I.15 - Valeurs expérimentales du coefficient d'absorption à deux photons  $\alpha_{NL}$  en fonction de la longueur d'onde

Figure I.16 - Evolution de la transmission en fonction de la densité de puissance incidente en présence d'absorption à deux photons

Figure I.17 - Schéma de la configuration de la cavité laser

Figure I.18 - Distribution spectrale de l'énergie transportée par l'impulsion délivrée par le laser à excimère XeCl

Figure I.19 - Distribution temporelle de l'énergie transportée par l'impulsion laser ultraviolette

Figure I.20 - Evolution de l'énergie délivrée par impulsion en fonction de la haute tension appliquée aux bornes des électrodes de décharge

Figure I.21 - Variation de la fluctuation de l'énergie tir à tir en fonction de la haute tension appliquée aux bornes des électrodes de décharge

Figure I.22 - Impacts du faisceau laser photographiés en sortie de la cavité laser

Figure I.23 - Caractéristiques spatiales du faisceau délivré par le laser excimère à XeCl

Figure I.24 - Vue en coupe, simplifiée, du dispositif de polissage des faces de fibre

Figure I.25 - Dispositif de contrôle de la planéité des faces de fibre

Figure I.26 - Exemple des faces de fibre obtenues après polissage

Figure I.27 - Dispositif expérimental utilisé pour relever les distributions spatiales d'énergie des spots formés par les systèmes de focalisation testés

Figure I.28 - Représentation schématique d'un système d'anamorphose par deux lentilles cylindriques

Figure I.29 - Exemples de distributions spatiales d'intensité des spots formés par les systèmes de focalisation

- Figure I.30 - Dispositif expérimental utilisé pour contrôler la mise en place de l'extrémité de la fibre, et l'alignement de l'axe de la fibre avec celui du faisceau laser incident
- Figure I.31 - Photographies de faces d'entrée de fibre  
I.31.a - en début d'expérience  
I.31.b - au premier stade de fracture  
I.31.c - après fracture définitive
- Figure I.32 - Valeurs des seuils de fracture optique en fonction du diamètre de coeur de fibre
- Figure I.33 - Distribution spectrale d'énergie de l'impulsion en sortie de fibre
- Figure I.34 - Distribution temporelle de l'énergie transportée par l'impulsion transmise par la fibre
- Figure I.35 - Distribution spatiale d'énergie relevée en sortie de fibre
- Figure I.36 - Evolution de l'énergie transmise en fonction de l'énergie incidente (cas d'une fibre HCS-600 de longueur 6 m)
- Figure I.37 - Evolution de la transmission relative en fonction du rayon de courbure
- Figure I.38 - Evolution de la densité d'énergie mesurée en sortie de fibre ( $F = E_t / \pi a^2$ ) en fonction du nombre de tirs  
I.38.a - fibres PCS-200  
I.38.b - fibres HCSW-200  
I.38.c - fibres STU-200

Figure I.39 - Evolution de la densité d'énergie mesurée en sortie de fibre en fonction du nombre de tirs, pour deux longueurs de fibre

Figure I.40 - Evolution de la transmission relative de fibres HCSW-400 courbées en fonction du nombre de tirs

Figure I.41 - Dispositif expérimental utilisé pour l'analyse spectrale d'une fibre en cours d'irradiation

Figure I.42 - Evolution de la densité d'énergie mesurée en sortie d'une fibre HCSW-600 en fonction du nombre de tirs

Figure I.43 - Transmission spectrale relative de la fibre HCSW-600 en cours d'irradiation

Figure I.44 - Mise en évidence du rôle de la gaine optique dans la chute de transmission d'une fibre HCSW irradiée.

Figure I.45 - Dispositif de détection de l'émission rétrodiffusée provenant du coeur de fibre

Figure I.46 - Distributions spectrales d'intensité du signal émis par une fibre (PCS-600) soumise à l'irradiation laser, relevées :

I.46.a - aux environs de 15 000 tirs

I.46.b - aux environs de 30 000 tirs

Figure I.47 - Distribution temporelle d'énergie du signal de luminescence rouge

Figure I.48 - Evolution de l'intensité de la luminescence rouge ( $\lambda = 640$  nm) en fonction du nombre de tirs et de la nature des fibres

Tableau I.1 - Nature des rayons couplés dans une fibre à saut selon les conditions d'injection

Tableau I.2 - Coefficients de Sellmeier de la silice, à 20°C

Tableau I.3 - Coefficients d'atténuation Rayleigh d'une fibre à coeur en silice à différentes longueurs d'onde ultraviolettes ; atténuation pour une longueur de propagation 10 m

Tableau I.4 - Puissance pompe qu'il est nécessaire de coupler à la fibre pour obtenir un effet Raman stimulé ( $P_p(L) = P_s(L)$ ) ; densités d'énergie incidentes correspondantes

Tableau I.5 - Nature et proportions des constituants gazeux composant le milieu amplificateur du laser excimère à XeCl utilisé dans l'étude expérimentale

Tableau I.6 - Caractéristiques techniques des fibres utilisées dans l'étude expérimentale

Tableau I.7 - Seuils de fracture optique en fonction du type de fibre et du diamètre de coeur. Les énergies correspondent aux valeurs maximales transmises. Les valeurs des fluences seuil et des densités de puissance correspondantes sont relatives à l'entrée de fibre



## **CHAPITRE II**

**ETUDE IN VITRO DE LA DESTRUCTION DE CALCULS BILIAIRES**

**PAR LASER EXCIMERE A XeCl**

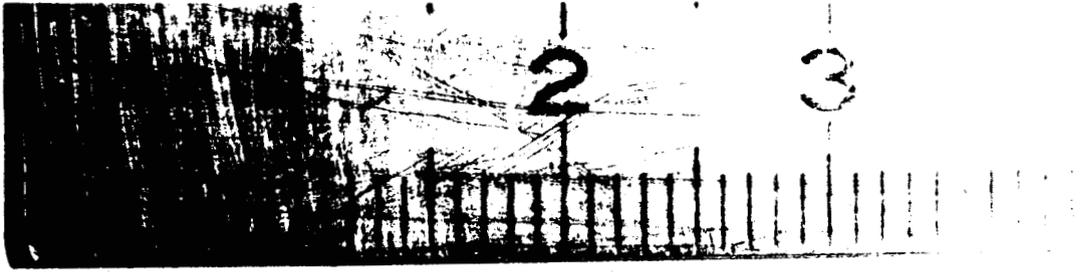


## II.1 - INTRODUCTION

Une étude statistique récente effectuée aux Etats-Unis [1] montre qu'environ dix pour cent de la population souffre d'affections digestives provoquées par la présence de calculs biliaires. On classe habituellement les calculs biliaires en deux catégories (cholestéroliques et pigmentées), selon que le constituant chimique principal est formé par du cholestérol (proportion du cholestérol supérieure à 70% (en masse)), ou par un mélange complexe de bilirubine, de sels biliaires, de pigments (en majorité du bilirubinate de calcium), avec ou sans carbonate de calcium [2]. Comme il apparaît sur les photographies présentées sur la figure (II.1), un simple examen visuel du calcul permet souvent de distinguer la catégorie à laquelle le calcul appartient. Les calculs pigmentés se forment généralement de façon multiple et présentent une couleur sombre. Le diamètre moyen de ces calculs varie entre 2 mm et 5 mm. Leur forme peut être irrégulière ou nette. Si l'on réalise une coupe du calcul, la section peut présenter un aspect cristallin ou amorphe [2]. Les calculs cholestéroliques, de couleur claire, possèdent généralement des facettes et présentent un contour net. Leur diamètre peut atteindre 30 mm. La section de ces calculs apparaît cristalline, laminée ou stratifiée et comporte souvent un noyau central plus foncé (centre pigmenté ou matrice protéinique) [2]. Si nécessaire, la classification du calcul peut être établie de façon plus rigoureuse au moyen par exemple d'une analyse spectroscopique réalisée par spectrométrie d'absorption infra-rouge (voir la figure III.1 présentée dans le chapitre III du mémoire). Le tableau (II.1), tiré de la référence [3], présente des résultats d'une étude épidémiologique réalisée dans la région lilloise



II.1.a



II.1.b



Figure II.1 - Exemples de calculs biliaires appartenant à la catégorie  
II.1.a - pigmenté  
II.1.b - cholestérolique



Composition chimique	Nombre de cas	%	Classification d'après ref. [2]
1. Cholestérol et bilirubinate de Ca	94	43,5 %	C
2. Bilirubinate de Ca	32	15 %	P
3. Bilirubinate de Ca et cholestérol	19	9 %	P
4. Cholestérol	15	7 %	C
5. Calcite	14	6,5 %	P
6. Bilirubinate de Ca, calcite, apatite	12	5,5 %	P
7. Bilirubinate de Ca et calcite	11	5 %	P
8. Cholestérol, bilirubinate de Ca, et carbonate de Ca	11	5 %	P
9. Bilirubinate de Ca et palmitate de Ca	4	2 %	P
10. Cholestérol et calcite	1	0,5 %	C
11. Bilirubinate de Ca et apatite	1	0,5 %	P
12. Cholestérol et palmitate de Ca	1	0,5 %	C
13. Cholestérol, bilirubinate de Ca et apatite	1	0,5 %	C

Tableau II.1 - Fréquence d'apparition des lithiases biliaires, en fonction de leur composition chimique, d'après la référence [3].

C : calculs cholestéroliques

P : calculs pigmentés

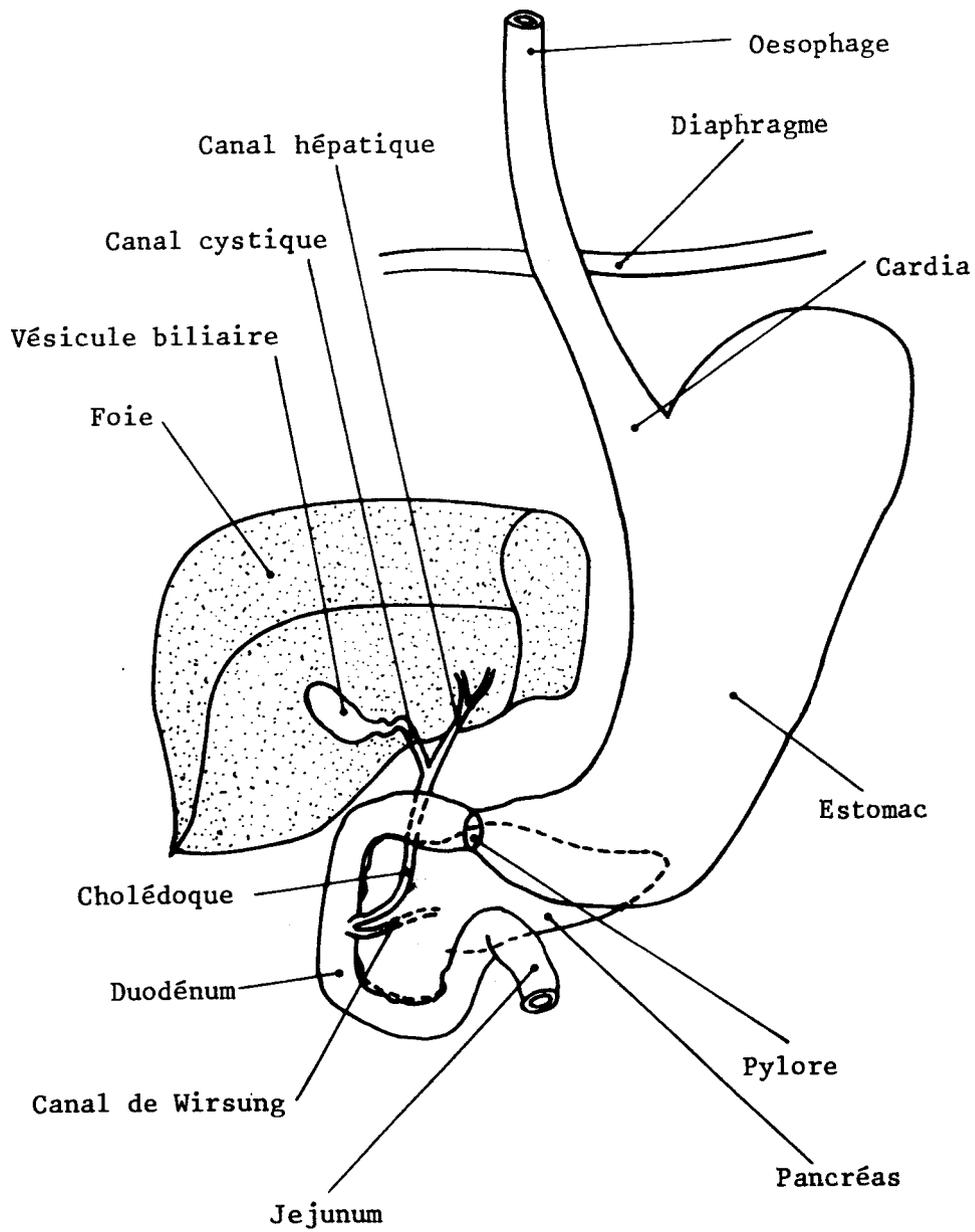


Figure II.2 - Schéma de l'appareil digestif.

sur 216 cas de lithiases biliaires. Il établit la fréquence de chaque type de lithiase en fonction de la composition chimique des calculs.

D'après des études réalisées aux Etats-Unis [2], les calculs biliaires se forment le plus souvent dans la vésicule (voir la figure II.2 sur laquelle un schéma simplifié de l'appareil digestif est présenté). Dans quatre vingts pour cent des cas, les calculs restent localisés dans la vésicule, alors que pour vingt pour cent des cas ils migrent dans le cholédoque ou dans des conduits biliaires. Les lithiases pigmentées primaires du cholédoque semblent rares, alors qu'elles sont fréquentes en Orient (80% des cas) [2].

La cholécystectomie (ablation de la vésicule), accompagnée d'une exploration du cholédoque, la cholédochotomie (incision du cholédoque pour effectuer le retrait d'un calcul), constituent les traitements chirurgicaux de référence. Ces interventions présentent cependant un risque opératoire non négligeable, en particulier chez les personnes âgées [4] [5]. Cette situation explique l'émergence d'autres techniques moins traumatisantes et de coût social moins élevé, telles que par exemple l'endoscopie opératoire ou la lithotripsie extra-corporelle par onde de choc. L'extraction par voie endoscopique de calculs ou de fragments de calculs par panier présente parfois des difficultés techniques, qui ont conduit certaines équipes à préconiser l'utilisation du laser [5], [6]. L'impact des tirs lasers se traduit, en effet, par la fragmentation des calculs en éléments de petite taille, plus faciles à évacuer. Ainsi, l'équipe de la Harvard Medical School de Boston [5] a procédé à une étude in-vitro de destruction de calculs biliaires, en utilisant des lasers pulsés accordables à colorant émettant dans le domaine du spectre visible (énergie par impulsion  $E_p \simeq 10$  à  $60$  mJ, durée d'impulsion  $0,8 - 360$   $\mu$ s). La fragmentation se trouve accomplie au terme

d'un nombre restreint de tirs (environ 500 tirs pour une valeur de  $E_p$  de l'ordre de 30 mJ). Cependant, les dimensions des fragments formés au cours des tirs peuvent atteindre 8 mm. Il est alors nécessaire de soumettre à nouveau ces débris aux tirs lasers jusqu'à ce que le plus gros fragment obtenu présente une dimension inférieure à 2 mm (la réalisation de cette condition constitue le critère de complète fragmentation retenue par les auteurs de ce travail [5]). A la lumière de ces résultats, il apparaît donc intéressant de procéder à une étude de faisabilité de destruction de calculs biliaires à l'aide de laser émettant dans un domaine spectral différent. En raison de leurs longueurs d'onde d'émission situées dans l'ultraviolet, les radiations issues de laser à excimères sont en général très fortement absorbées par les matériaux organiques. L'énergie d'un photon ultraviolet est comparable aux énergies de liaison des molécules, ce qui conduit à la photodécomposition du matériau sous l'effet de l'exposition au flux laser [7]. Ce mécanisme d'interaction apparaît prometteur dans le cas des calculs biliaires car il peut conduire à la destruction du calcul sous forme de particules de dimensions faibles, aisément éliminables par les voies naturelles. Nous avons donc entrepris cette étude de faisabilité de destruction de calculs biliaires par laser excimère à XeCl. Nous présentons les résultats de cette étude sous la forme d'un article paru dans une édition spéciale du journal IEEE Transactions on Biomedical Engineering.

II.2 - ARTICLE

**XeCl Laser in Biliary Calculus Fragmentation :  
Fluence Threshold and Ablation Products**

IEEE Transactions on Biomedical Engineering, vol. 36, n° 12,  
pp. 1202-1209, 1989.

# XeCl Laser in Biliary Calculus Fragmentation: Fluence Threshold and Ablation Products

R. WROBEL, P. BERNAGE, P. NIAY, H. BOCQUET, C. DESCAMPS, J. P. HUVENNE, B. LACROIX, J. M. BRUNETAUD, AND S. R. MORDON, MEMBER, IEEE

**Abstract**—The *in vitro* action of a xenon-chlorine (XeCl) excimer laser on biliary calculi is reported: fluence threshold and rate for ablation process are given. An analysis of gaseous products evolved during irradiation of gallstones, performed through an infrared spectrophotometric technique is also reported. Based on the different results, we discuss the mechanism of destruction.

## I. INTRODUCTION

**B**IOLICAL material-laser interactions appear closely dependent on both material composition and laser characteristics. For example, continuous wave Nd:Yag, carbon dioxide, or argon ion lasers involve thermal effects in vaporization and coagulation of tissues [1], [2].

Pulsed lasers may interact with materials through other processes. Thus, excimer laser irradiation allows the removal of organic material through a soft process known as "ablative photodecomposition" [3], leading to active investigation in angioplasty and ophthalmology [4]–[6]. High peak power associated to short laser pulses can create, when focused on a target, electric field large enough to induce a local dielectric breakdown in transparent medium, producing an "electromechanical effect" (shock-wave effect) [1]. This process is widely used in ophthalmology [7], [8].

Q-switched Nd-Yag lasers have been reported as being successful when used in laser induced shock-wave lithotripsy [9]. Pulsed flash-lamp pumped dye lasers appear also well suited to fragment ureteral and biliary calculi [10], [11]. In these cases, calculus fragmentation results from the shock-wave propagation following the expansion of a plasma.

Laser-induced plasma may take place through one of the following processes: ionization of the molecules by a multiphoton excitation, ionization by thermal effect, dielectric breakdown through the intense electric field induced by the laser, ionization of desorbed molecules and atoms.

Whatever the physical process to initiate the plasma may be, the XeCl ( $\lambda = 308$  nm) and XeF ( $\lambda = 350$  nm) excimer lasers are good candidates for the destruction of biliary calculi: the emitted photon energies are 4 and 3.5 eV, respectively, whereas ionization energy of molecules is generally comprised between 6 and 10 eV: ionization of the molecules by two-photon excitation may be considered. The pulse is energetic (150 mJ) and desorption and ionization through thermal effect may take place. The peak amplitude of the electric-field may easily reach  $3 \cdot 10^8$  V/m for commercial excimer lasers. Moreover, the XeCl and XeF wavelengths are located in the near ultraviolet range for which the small signal transmission of fused silica UV fibers ( $\sim 70$  percent for 1 m length at 308 nm wavelength) remain good enough to consider their potential use in laser lithotripsy. Furthermore, it has been shown that ablation threshold fluence for biliary calculi (in the visible range) and for artery wall (in the UV range) is lower when the linear absorption coefficient is larger [10], [12]; organic materials often exhibit large absorption coefficients near the 308 and 350 nm emission wavelengths.

In this paper we first examine the biliary calculus transmittance versus wavelength. Second, we report the characteristics of the XeCl laser ablation, namely threshold fluence and ablation rate. Third, we present a spectrometric analysis of the gaseous products created during stone irradiation in order to investigate about their possible toxicities. Then we discuss about the probable mechanisms involved in stone destruction by the XeCl excimer laser.

## II. GALLSTONE RELATIVE TRANSMITTANCE MEASUREMENTS VERSUS WAVELENGTH

Biliary calculi were salvaged by a surgical procedure and stocked in saline solution. They were first classified by visual inspection, based on color and aspect, respectively, into pigment or cholesterol stones, according to whether bilirubin or cholesterol is the predominant constituent [13], [14]. This classification was afterwards confirmed through spectrometric infrared analysis [15].

Samples were made of a little of grinded stone mixed with KBr powder (transparency domain  $\approx 0.2$ – $26$   $\mu\text{m}$ ) and compressed into a disk of 13 mm diameter and 200 mg weight. Because of the heterogeneous composition of stones and the lack of accuracy on the sample thickness

Manuscript received October 4, 1988; revised March 27, 1989.

R. Wrobel, P. Bernage, P. Niay, H. Bocquet, and C. Descamps are with the Laboratoire de Spectroscopie Moléculaire, Université de Lille Flandres Artois, 59655 Villeneuve d'Ascq Cedex, France.

J. P. Huvenne and B. Lacroix are with the Centre Universitaire de Mesure et Analyses, Université de Lille II, 59045 Lille Cedex, France.

J. M. Brunetaud and S. Mordon are with the Institut National de la Santé et de la Recherche Médicale (INSERM U279) 59019 LILLE Cedex, France.

IEEE Log Number 8931106.

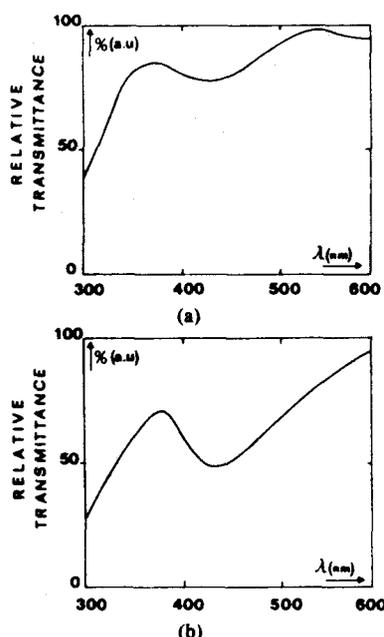


Fig. 1. Visible and near UV relative transmission spectra. (a) Cholesterol stones, (b) pigment stones. (Transmission has been arbitrarily fixed to 95 percent at 600 nm wavelength.)

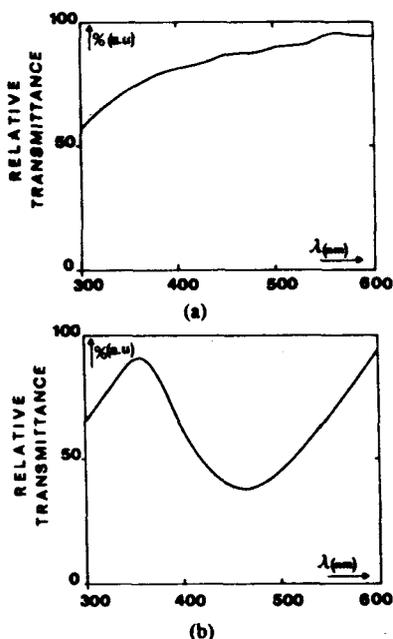


Fig. 2. Visible and near UV relative transmission spectra. (a) Pure cholesterol, (b) pure bilirubin. (Transmission has been arbitrarily fixed to 95 percent at 600 nm wavelength.)

measurements, we did not attempt to measure the optical absorption and diffusion coefficients. We only examined the qualitative overall shape of stone transmittance curves through the wavelength range 300–600 nm. A conventional experimental setup for spectrometry was used, including a tungsten or deuterium lamp as sources according to the spectral range under investigation, a monochromator (10 nm resolution), a photomultiplier tube followed by a lock-in amplifier as detection set.

Six pigment stones and four cholesterol stones were studied to get an averaged relative transmittance profile versus wavelength for these two main categories of calculi (Fig. 1) (transmission has been arbitrarily fixed to 95 percent at 600 nm wavelength). Transmittance of both cholesterol and pigment stone strongly decreases below 370 nm (Fig. 1). For comparison, Fig. 2 shows the transmission spectra of samples made of pure cholesterol [Fig. 2(a)] or of pure bilirubin [Fig. 2(b)]. The bilirubin transmittance maximum near 350 nm, provides some arguments for using the XeCl laser line rather than the XeF one. Accordingly, the experiments described below were performed with an XeCl excimer laser.

### III. ABLATION THRESHOLD FLUENCE AND DESTRUCTION RATE

The laser used for ablation of gallstones is an XeCl excimer laser (SOPRA 1250 E 20) producing repetitive pulses (0–20 Hz) at 308 nm wavelength (pulse duration 20 ns, maximum pulse energy 150 mJ). The laser was designed with a stable resonator delivering a rectangular output beam of area  $1 \times 2 \text{ cm}^2$ .

#### A. Ablation Threshold Fluence Measurements

We define the threshold fluence<sup>1</sup> for stone ablation as the lowest fluence at which visual removal of particles occurs by multiple shots irradiation. We measured the threshold fluences for cholesterol and pigment stones through the following experimental scheme (Fig. 3). These experiments were carried out in air.

Stones were placed just behind a circular stainless steel diaphragm ( $4 \text{ mm}^2$  area) located at a distance of 16 cm from a 20 cm focal calcium fluoride ( $\text{CaF}_2$ ) lens. The diaphragm was used to get the dimensions of the irradiated area precisely determined. The distance from lens was chosen so as to obtain a fluence almost uniform across the stone.

Fluence was varied by increasing the laser pulse energy until damage occurred. Ablation started by ejection of stone dust, and was accompanied by a loud sound and strong fluorescence.

After stones were removed the laser pulse energy was measured and consequently threshold fluence could be calculated by dividing the pulse energy value by the irradiated area. The laser pulse energy was derived from the beam power measurement by using a Scientech disk calorimeter placed behind the hole.

Threshold fluences were determined at 20 Hz pulse repetition rate and were found to vary from 0.05 to 0.1  $\text{J}/\text{cm}^2$  for pigment stones and from 0.1 to 0.2  $\text{J}/\text{cm}^2$  for cholesterol stones.

At fluences below ablation threshold, cholesterol stones changed to a vitrified and melted look; this behavior erratically occurred in the case of pigment stones.

<sup>1</sup>Fluence is defined as the energy supplied by unit area in  $\text{J}/\text{cm}^2$ .

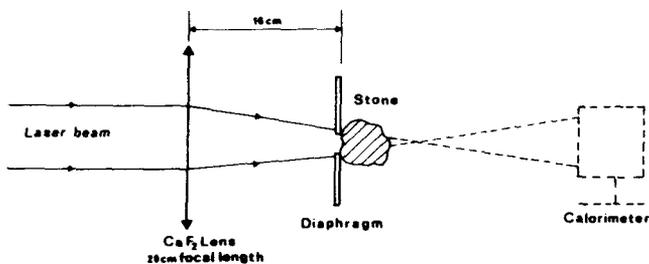


Fig. 3. Experimental set-up used for ablation threshold fluence measurements.

**B. Ablation Rate**

Destruction of biliary calculi takes on two distinct appearances according to the value of the fluence of the beam impinging on the stones. For fluence values fixed just above the threshold, laser light interacts with stones through an ablation process characterized by a fast removal of fine particles. Dust was collected and studied through a 400 × magnification microscope. Visual examination showed that dust was constituted with bowls of ~ 20 μm diameter in majority and a few bowls of diameter smaller than 80 μm. When fluence is raised (fluence ~ 1 J/cm<sup>2</sup>), a bright flash of light appears and sound becomes sharper. Stones undergo a recoil as laser light digs a hole.

A visual inspection showed that the larger the fluence became, the bigger the removed particles were. For example, for 10 J/cm<sup>2</sup> fluence, the mean diameter of the particles could reach 0.4 mm. At fluence larger than 10 J/cm<sup>2</sup>, fragments of millimeter size may be erratically ejected. Thus, stones may be entirely shattered to fragments of some millimeter size by moving laser focus location. Typically, complete fragmentation requires several thousand shots for a stone of 300 mg weight at fluence superior to 10 J/cm<sup>2</sup>.

So, it appears possible to reduce the calculus with an excimer laser in particles of different diameter according to the used fluence. At low fluence, the products are particles less than 80 μm size. This process is of interest because fine particles can be more easily eliminated by the body than fragments of some millimeter size.

We measured the ablated mass per pulse versus pulse energy  $E_p$  at various irradiated areas in the following way. Irradiated areas of a pigment stone were successively fixed at 16 mm<sup>2</sup>, 2.6 mm<sup>2</sup>, 0.3 mm<sup>2</sup> by changing the distance between the focusing lens ( $f = 200$  mm) and the calculus. The calculus was weighed by using a 10<sup>-5</sup> g sensitivity balance before and after a burst of ten shots was applied (shot frequency 3 Hz). We did not retain the results obtained when the burst induced the removal of a big fragment of size exceeding 0.3 mm.

The results are displayed on Fig. 4. We define the efficiency of the ablation as the mass removed per unit deposited energy (mg/J). Fig. 5 shows that the efficiency is strongly dependent on the fluence, exhibiting a sharp maximum ( $\approx 0.90$  mg/J) as fluence reaches 1 J/cm<sup>2</sup>; the dispersion of measures for the maximum efficiency

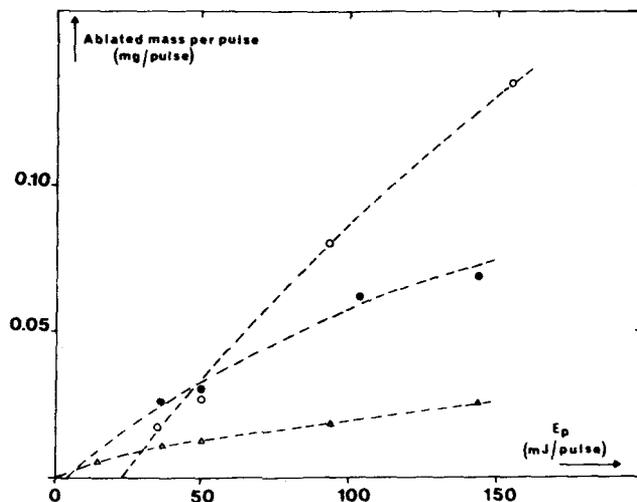


Fig. 4. Evolution of ablated mass versus fluence (irradiated areas: Δ 0.3 mm<sup>2</sup>, ● 2.6 mm<sup>2</sup>, ◻ 16 mm<sup>2</sup>).

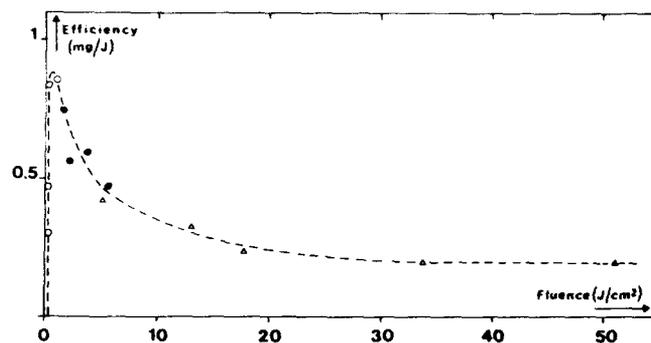


Fig. 5. Efficiency of gallstones ablation (irradiation areas: Δ 0.3 mm<sup>2</sup>, ● 2.6 mm<sup>2</sup>, ◻ 16 mm<sup>2</sup>).

value versus the nature of the pigment stone remains inferior to 0.3 mg/J. Under this experimental condition, the complete reducing of the calculus to dust requires typically 350 J. If one admits that an UV grade 400 μm diameter fibers can supply 6 mJ per pulse (pulse duration 20 ns) [16] at 20 Hz shot rate, the duration of the operation may reach roughly 30 min if we assume the fluence remains equal to 1 J/cm<sup>2</sup> on the irradiated area. The ablation rate of the cholesterol stones and of the pigment stones have a similar behavior versus pulse energy. Nevertheless, the time for complete destruction of cholesterol stones requires three times that for destruction of pigment ones.

In a clinical work, the surrounding medium would be water. Because of the porous nature of calculi, it has not been possible to weigh them to determine an ablation rate. Nevertheless, some remarks can be made. First, the threshold fluence in water is about two times higher than in air. Second, at low fluence the etch has not edges as well defined than in air, but particles ejected remain small. Experiments must be carried out in a flush of water to avoid the absorption of laser light by the stone dust. Third, at higher fluence (> 1 J/cm<sup>2</sup>), stones undergo a recoil more violent than in air.

#### IV. ANALYSIS OF THE GASEOUS PRODUCTS

##### A. Experimental Procedure

Samples were dried and placed into a first cell, closed with an UV grade window through which the laser beam was focused onto the sample by a 400 mm focal CaF<sub>2</sub> lens. This cell was connected to a second cell (10 cm long), namely the absorption cell, provided with KBr windows, intended to collect gas for infrared analysis. Pressure in the two cells was continuously monitored by a differential manometer (0.5 torr sensitivity). The setup is displayed on Fig. 6. Before laser irradiation, the two cells were evacuated to 10<sup>-3</sup> torr for 2 h.

Laser delivered 150 mJ pulse energy at 3 Hz rate. The number of pulses was fixed to ensure a sufficient quantity of gas to be produced for the subsequent analysis (pressure in the cell around 30 torr).

Immediately after the beginning of the irradiation, window and wall of the first cell were being coated with a fine brownish powder. That did not affect dramatically the window transmission since each pulse cleaned the window by volatilizing powder.

Experiments were carried out on seven pigment stones and four cholesterol stones.

We noticed that the total quantity of gas collected for a same number of shots varied according to the category of calculi: pigment stone gas amounts were around three-fold larger than cholesterol ones.

After irradiation, volatile products were withdrawn to the infrared gas absorption cell, that was afterwards inserted into a Nicolet 7000 Fourier transform spectrophotometer. The runs were performed with a 0.12 cm<sup>-1</sup> spectral resolution.

##### B. Results

**Nature of the Gases:** The nature of the gases was identified from the rotation-vibration frequencies and from the relative intensities of the bands through the comparison of spectra with the published ones [17]-[28].

The IR spectra obtained from irradiation of either pigment or cholesterol stones revealed a similar appearance.

A typical IR spectrum is displayed on Fig. 7. The gas mixture was found to be composed of methane, ethylene, diacetylene, acetylene, propylene, ethane, and carbon monoxide. Carbon dioxide was occasionally detected. One can note that infrared absorption spectrometry cannot give any information about homopolar diatomic gaseous molecules (as N<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, H<sub>2</sub> . . .).

Experiments in which pure ethylene, methane, and acetylene were successively irradiated under similar conditions of fluences were performed in order to determine if one of the previously identified products could result from a secondary process. Only negligible quantities of gases (methane, diacetylene, ethylene) were present after the photolysis of acetylene, whereas ethylene and methane did not show any decomposition through the irradiation.

In order to determine the abundance of each gas in the mixture, we adopted the following procedure.

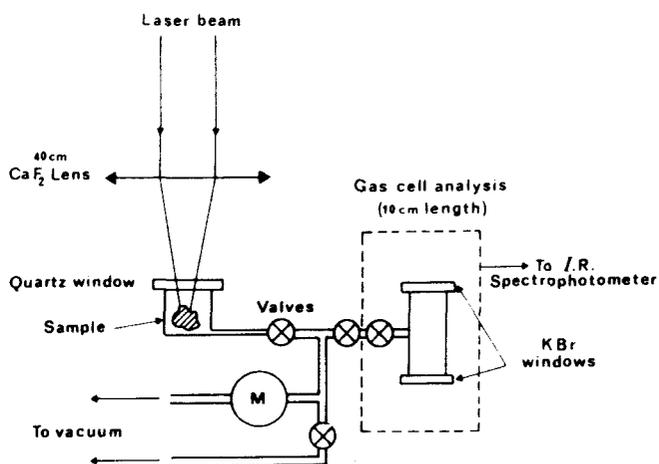


Fig. 6. Schematic experimental arrangement used for gases collection.

**Evaluation of the Amounts of Infrared Absorption Active Gases:** According to the vibration-rotation spectrum aspect of each constituent (resolved or not in rotational lines), two different techniques were used to obtain the relative amounts of products.

For the bands resolved in rotational lines, the amounts of products were derived from the apparent spectral transmittance  $T^a(\nu)$ . This later is given by the convolution product of the instrumental function  $A(\nu)$  by the gas transmittance  $T(\nu)$ :

$$T^a(\nu) = A(\nu) \otimes T(\nu)$$

where  $A(\nu)$  is given by

$$A(\nu) = \Delta^{-1} \text{sinc}^2 \left( \pi \frac{\nu}{\Delta} \right) c^2.$$

If the absorption coefficient is described by a Lorentzian shape,  $T(\nu)$  is expressed as

$$T(\nu) = \exp \left\{ \frac{-S_o}{\pi \gamma_l} \cdot \frac{pL}{1 + \left( \frac{\nu - \nu_o}{\gamma_l} \right)^2} \right\}.$$

So, the convolution product may be expressed as

$$T^a(\nu) = \int_{\nu-2\Delta}^{\nu+2\Delta} A(\nu - \nu') \cdot \exp \left\{ \frac{-S_o}{\pi \gamma_l} \cdot \frac{pL}{1 + \left( \frac{\nu' - \nu_o}{\gamma_l} \right)^2} \right\} d\nu'$$

where  $2\Delta$  is a sufficiently large wavenumber interval at the limit of which the amplitude of the oscillatory function  $A(\nu')$  is negligible,  $p$  the partial pressure of the gas considered,  $S_o$  the intensity of a line ( $\text{atm}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$ ),  $\gamma_l$  the collision-broadened half-width ( $\text{cm}^{-1}$ ) calculated at the total pressure  $p$  in the cell,  $L$  the length of the cell

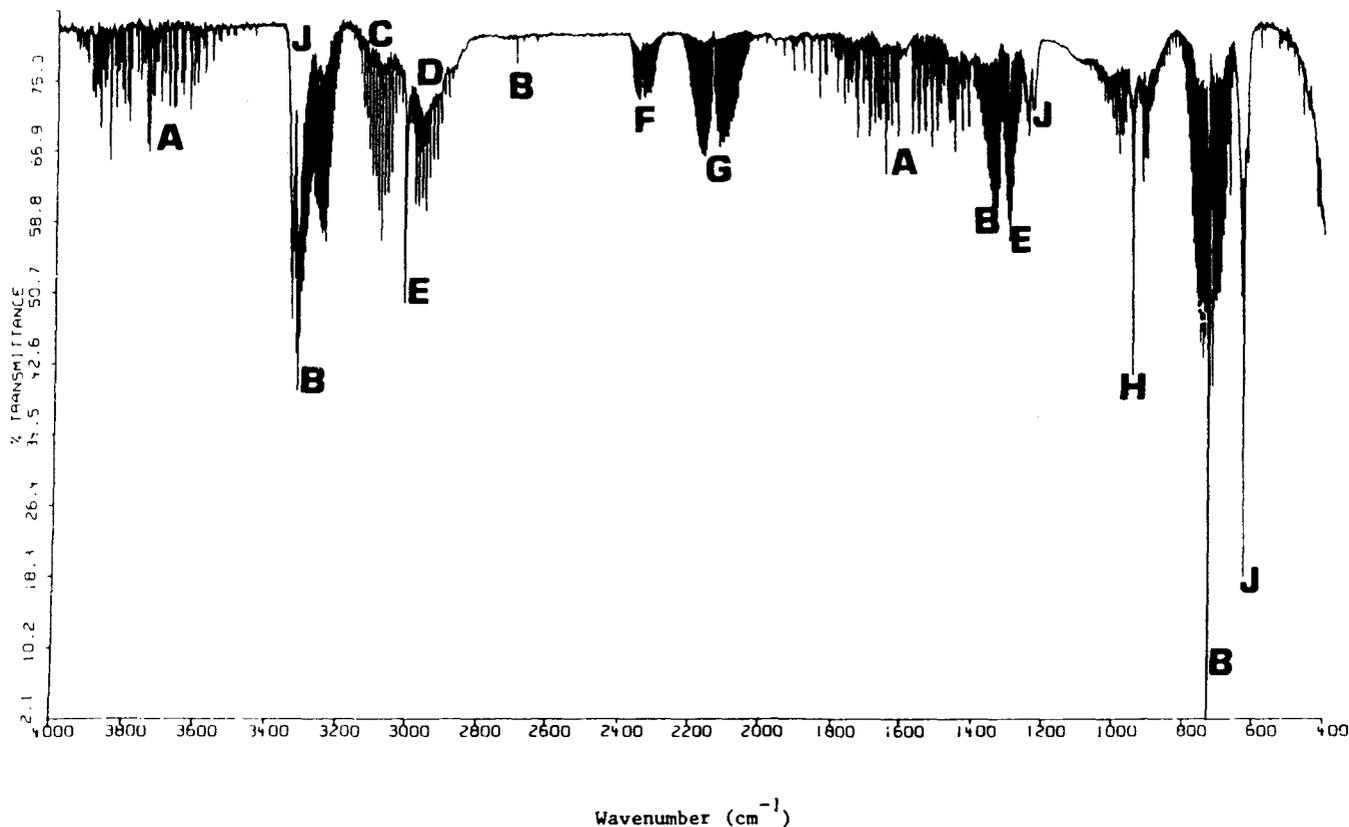


Fig. 7. Infrared spectrum of gases evolved during irradiation of biliary calculi by the XeCl excimer laser. A: water, B: acetylene, C: propylene, D: ethane, E: methane, F: carbon dioxide, G: carbon monoxide, H: ethylene, J: diacetylene.

(cm),  $\nu_0$  the line position, and  $\nu$  the central frequency of the instrumental function  $A(\nu - \nu')$ .

The  $\gamma_i$  coefficients were taken or were extrapolated from published data [17]–[28], doing the rough approximation that self-broadening coefficients  $\gamma_0$  correctly describe the evolution of the linewidth versus pressure  $P$ .

For each constituent, the spectral transmittance of several rotational lines were computed and the partial pressure adjusted until the calculated apparent transmittance was equal to the measured one, leading to an order of magnitude of the partial pressure of the product in the cell.

For the unresolved bands, the band areas were measured graphically, and the partial pressure derived through the equivalent width technique described in reference [18].

The partial pressure of each infrared absorption active gas in the mixture, obtained by using one or other of the two methods, was then divided by the total pressure in the cell to give the abundance. The results given in Table I show that the total amount of infrared absorption active gases is roughly twenty per cent of the total gaseous mixture. From the composition formula of stones [28], [30], we assume the remaining gases are mainly composed with  $H_2$ ,  $O_2$ , and  $N_2$ . The volume of each gas under atmospheric conditions reaches a few ten  $mm^3$ . These quantities remain too weak to affect the surrounding tissues.

TABLE I  
AMOUNTS OF GAS EVOLVED DURING IRRADIATION OF GALLSTONES BY THE XeCl EXCIMER LASER

Nature of gas		Abundance %
A—Water	$H_2O$	**
B—Acetylene	$C_2H_2$	4
C—Propylene	$C_3H_6$	*
D—Ethane	$C_2H_6$	4
E—Methane	$CH_4$	0.7
F—Carbon Dioxide	$CO_2$	**
G—Carbon Monoxide	$CO$	2
H—Ethylene	$C_2H_4$	7
I—Diacetylene	$C_4H_2$	2

\*slight trace  
\*\*trace

### V. MECHANISM OF LASER ACTION

Since the destruction of biliary calculi takes on two distinct appearances according to the fluence of the beam impinging on the stones, we distinguish the case of a low fluence ( $< 1 J/cm^2$ ) from the high fluence one, when describing the possible mechanisms of the destruction.

#### Low Fluence

Two principal processes have been proposed to explain the action of UV pulsed laser light on organic materials

[31, 32], including either a pure photochemical effect or a photothermal mechanism.

The photochemical effect is described as a molecular bond breaking process resulting from the decomposition of a high dissociative excited electronic state when absorbing the UV photons. The volume occupied by the excess of molecules thus produced leads to an explosive process.

In the photothermal process, a bound electronic level excited by the UV impulsion undergoes a transition to the electronic ground state through internal conversion, but leaves the molecule in a highly excited vibration-rotation state. As a result, the irradiated volume temperature increases, and simultaneously heat conduction takes place. The heat penetration characteristic depth can be expressed as  $2(kt)^{1/2}$  [33] where  $k$  is the coefficient of thermal diffusivity and  $t$  the pulse duration. For gallstones, if we assume  $k$  to be around  $0.003 \text{ cm}^2/\text{s}$  [34], the characteristic depth for 20 ns pulse time is approximately  $0.15 \mu\text{m}$ . Thus, heat conduction does not permit an adequate outlet of heat into the material. Consequently, the temperature of the irradiated volume will increase.

The irradiated volume is defined as the product of the irradiated area by the optical penetration depth. From [34], this penetration depth may be estimated to be  $\approx 50 \mu\text{m}$ , for a gallstone irradiated by the 308 nm radiation. Material in a layer near the surface is vaporized while material in the next layer is fused. The vaporization leads to an explosive process since the volume occupied by the gas exceeds the solid one. The two processes leading to similar consequences, other experiments are needed to distinguish one from other.

### High Fluence

We may assume that at sufficiently high fluence ( $> 1 \text{ J}/\text{cm}^2$ ), the vapor temperature is high enough to cause ionization and atomic excitation. A plasma is thus generated [33]. As long as the plasma density remains inferior to the critical density ( $N_{ec} = 1.2 \cdot 10^{22} \text{ e}^-/\text{cm}^3$  at 308 nm), the plasma absorbs laser light. An estimation of the magnitude order for the absorption coefficient  $K$  (assuming  $T_e = 10^5 \text{ K}$ ,  $n_e = 10^{20} \text{ e}^-/\text{cm}^3$ ) shows that  $K$  is roughly equal to  $10 \text{ cm}^{-1}$  [33]. This absorption may explain the decrease of the efficiency for the ablation as shown in Fig. 5.

The formation of the plasma can be detected by the occurrence of the continuum Brehmstrahlung radiation [36], in the optical spectrum of the light emitted after the laser shot. We did observe this continuous spectrum between  $\lambda = 230 \text{ nm}$  and  $\lambda = 650 \text{ nm}$  through a spectrophotometric experiment. The *a posteriori* analysis of the nature and relative abundance of the gases formed during XeCl laser irradiation does not enable us to find a complete explanation for the mechanism of the plasma formation. However, the presence of diacetylene and acetylene among the gas mixture may be explained by high temperatures reached following the laser irradiation [37].

## VI. CONCLUSION

Stone composition is determinant for laser ablation threshold since thresholds appear being higher for cholesterol stones than for pigment stones ( $0.1\text{--}0.2 \text{ J}/\text{cm}^2$  and  $0.05\text{--}0.1 \text{ J}/\text{cm}^2$ , respectively).

The total amount of gaseous products is also closely dependent on the stone composition: the amounts are larger when irradiating pigment stones, which are more easily ablated than cholesterol stones. The nature of the gases has been identified. Their abundance remains weak and does not appear to be an obstacle to the *in vivo* calculus destruction.

The destruction of stone occurs through two different processes: a "soft ablative" one at very low fluences ( $0.1\text{--}1 \text{ J}/\text{cm}^2$ ) involving vaporization and dust formation (dust mean diameter  $20 \mu\text{m}$ ), and a second one at higher fluences involving a plasma which may induce the fragmentation of the calculus to millimeter size fragments.

However, the potential use of XeCl radiation for destruction of gallstones remains at this time limited. The ablation efficiency exhibits a sharp maximum versus fluence. This maximum is weak ( $\approx 1 \text{ mg}/\text{J}$  at  $1 \text{ J}/\text{cm}^2$ ) and, due to the currently available energy at the end tip of commercial fibers ( $\approx 6 \text{ mJ}$  for a  $400 \mu\text{m}$  core diameter and 20 ns pulse duration), the number of shots required to efficiently ablate gallstones is important (40 000 for a 200 mg calculus). However, research is active to get available excimer lasers with long pulse (300 ns) that would allow to transmit higher energy through optical fiber by decreasing the peak power. Furthermore, some studies have shown that increasing pulse duration did not affect threshold fluence [39].

## ACKNOWLEDGMENT

We are grateful to Dr. Riquet (Hopital de Valenciennes) for his helpful discussion, and Dr. Leroy and Dr. Sahafi for providing samples.

## REFERENCES

- [1] J. Boulnois, "Photophysical processes in recent medical laser developments: A review," *Lasers Med. Sci.*, vol. 1, pp. 47-66, 1986.
- [2] J. M. Brunetaud, S. Mordon, J. Bourez *et al.* "Therapeutic applications of lasers," in *Proc. SPIE Optical Fiber Biomed. Field*, vol. 405, 1985, pp. 2-3.
- [3] R. Srinivasan and V. M. Banton, "Self-developing photoetching of poly(ethylene terephthalate) films by far-ultraviolet excimer laser radiation," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 41, pp. 576-578, 1982.
- [4] E. M. Farrel, A. J. Higginson, S. W. Nip, V. M. Farrel, and W. J. Keon, "Pulsed excimers laser angioplasty of human cadaveric arteries," *J. Vasc. Surg.*, vol. 3, pp. 284-287, 1986.
- [5] R. R. Linsker, R. Srinivasan, J. J. Wynne, and D. R. Alonso, "Far U-V laser ablation of atherosclerotic lesions," *Lasers Surg. Med.*, vol. 4, pp. 201-206, 1984.
- [6] J. Marshall, S. Trokel, S. Rothery, and R. R. Krueger, "Photoablative reprofiling of the cornea using an excimer laser: Photorefractive keratectomy," *Lasers Ophthalmol.*, vol. 1, pp. 21-48, 1986.
- [7] C. A. Puliafito and R. F. Steinert, "Short-pulsed Nd:Yag laser microsurgery of the eye: Biophysical consideration," *IEEE J. Quantum Electron.*, vol. QE-20, pp. 1442-1448, 1984.
- [8] D. Aron-Rosa, "Pulsed Nd:Yag laser in ophthalmology," presented at First Intern. Conf. "Laser M2P", 1987.
- [9] H. S. Kloiber, E. Reichel, and H. Schoffman, "Laser induced shock-wave lithotripsy (LISL)," *Biomedizinische Tech.*, vol. 30, pp. 7-8, 1985.

[10] N. S. Nishioka, P. C. Levins, S. C. Murray, J. A. Parrish, and R. R. Anderson, "Fragmentation of biliary calculi with tunable dye lasers," *Gastroenterol.*, vol. 93, pp. 250-255, 1987.

[11] G. M. Watson, S. L. Jacques, S. P. Dretler, and J. A. Parrish, "Tunable pulsed dye laser for fragmentation of urinary calculi," *Lasers Surg. Med.*, vol. 6, p. 191, 1986.

[12] D. L. Singleton, G. Paraskevopoulos, G. S. Jolly, P. S. Irwin, and D. J. McKenny, "Excimer laser in cardiovascular surgery: ablation products and photoacoustic spectrum of artery wall," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 48, pp. 878-880, 1986.

[13] B. W. Trotman, J. D. Ostrow, and R. D. Soloway, "Pigment versus cholesterol cholelithiasis: Comparison of stone and bile composition," *Digest. Dis.*, vol. 19, pp. 585-590, 1974.

[14] R. D. Soloway, B. W. Trotman, and J. D. Ostrow, "Pigment gallstones," *Gastroenterol.*, vol. 72, pp. 167-182, 1977.

[15] F. Brouqsault, "Etude comparative de deux techniques d'analyse des lithiases: la méthode chimique et la spectrophotométrie infrarouge," Thèse de Pharmacie 1984, Lille II.

[16] R. S. Taylor, K. R. Leopold, and S. Mihailov, "Damage measurements of fused silica fibers using long optical pulse XeCl lasers," *Opt. Commun.*, vol. 63, pp. 26-31, 1987.

[17] G. Herzberg, *Infrared and Raman Spectra: Electronic Spectra of Polyatomic Molecules* Princeton, NJ: Van Nostrand, 1945.

[18] K. N. Rao and L. A. Pugh, "Intensities from infrared spectra," in *Molecular Spectroscopy Modern Research, Vol. 3*. New York Academic, 1985.

[19] R. C. Golike, I. M. Wills, W. B. Person, and B. Crawford Jr., "Vibrational intensities. Ethylene and its deuterioisotopes," *J. Chem. Phys.*, vol. 24, pp. 1266-1275, 1956.

[20] W. J. Lafferty and R. Thibault, "High resolution infrared spectra of  $C_2^{12}H_2$ ,  $C^{12}C^{13}H_2$  and  $C_2^{13}H_2$ ," *J. Mol. Spectrosc.*, vol. 14, pp. 79-96, 1964.

[21] P. Varanasi, L. A. Pugh, and B. R. P. Bangaru, "Measurements of the multiplet intensities and noble gas-broadened line-widths in the  $\nu_5$  fundamental of methane," *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, vol. 14, pp. 829-838, 1974.

[22] J. L. Hardwick, D. A. Ramsay, J. M. Garneau, J. Lavigne, and A. Cabana, "The infrared spectrum of diacetylene," *J. Mol. Spectrosc.*, vol. 76, pp. 492-505, 1979.

[23] L. P. Giver, P. Varanasi, and F. P. J. Valero, "Propane absorption band intensities and band model parameters from 610 to 1580  $cm^{-1}$  at 296 and 300 K," *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, vol. 31, pp. 203-213, 1984.

[24] H. D. Dhu, A. S. Pine, and W. J. Lafferty, "Les intensités dans les bandes  $\nu_5$ ,  $\nu_7$  et  $\nu_8$  +  $\nu_{11}$  de l'éthane  $C_2H_6$ ," *Can. J. Phys.*, vol. 62, pp. 514-521, 1984.

[25] K. S. Kondo and Y. Koga, "Infrared absorption intensities of methyl acetylene," *J. Chem. Phys.*, vol. 69, pp. 4022-4031, 1978.

[26] R. C. Lord and P. Venkateswarlu, "The infrared spectra of propylene and propylene-d6," *J. Opt. Soc. Amer.*, vol. 43, pp. 1079-1085, 1953.

[27] T. H. Koops, T. Visser, and W. M. A. Smit, "The harmonic force field and absolute infrared intensities of diacetylene," *J. Mol. Struct.*, vol. 125, pp. 179-196, 1984.

[28] P. Varanasi, L. P. Giver, and F. P. J. Valero, "Thermal infrared lines of methane broadened by nitrogen at low temperatures;" "Intensity measurements in the  $\nu_4$ -fundamental of  $^{13}CH_4$  at planetary atmospheric temperatures;" "Infrared absorption by acetylene in the 12-14  $\mu m$  region at low temperatures;" "Measurements of nitrogen-broadened line widths of acetylene at low temperatures;" *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, vol. 30, pp. 481-516, 1983.

[29] M. S. Stoll and C. H. Gray, "The preparation and characterization of bile pigments," *Biochem. J.*, vol. 163, pp. 59-101, 1977.

[30] *Dictionary of Organic Compounds, Vol. 1*. London: Eyre & Spottiswoode. Publishers-LTD, pp. 399, 702.

[31] R. Srinivasan, "Ablation of polymers and biological tissue by ultraviolet lasers," *Science*, vol. 234, pp. 559-565, 1986.

[32] J. H. Brannon, J. R. Lankard, A. I. Braise, F. Burns, and J. Kaufman, "Excimer laser etching of polyimide," *J. Appl. Phys.*, vol. 58, pp. 2036-2043, 1985.

[33] J. F. Ready in *Effects of High-Power Laser Radiation*. New York: Academic, 1971.

[34] F. H. Long, N. S. Nishioka, and T. F. Deutsch, "Measurements of the optical and thermal properties of biliary calculi using the pulsed photothermal radiometry," *Lasers Surg. Med.*, vol. 7, pp. 461-466, 1987.

[35] N. S. Nishioka, P. Teng, T. F. Deutsch, and R. R. Anderson, "Mechanism of laser-induced fragmentation of urinary and biliary calculi," *Lasers Life Sci.*, vol. 1, pp. 231-245, 1987.

[36] G. Bekefi in *Principles of Laser Plasma*. New York: Wiley, 1976.

[37] H. W. Drawin, *Physique Atomique et Moléculaire des Plasmas*. Orsay, 1980.

[38] R. Pini, R. Salembini, and M. Vannini, "Optical fiber transmission of high power excimer laser radiation," *Appl. Opt.*, vol. 26, pp. 4184-4189, 1987.

[39] R. S. Taylor, D. L. Singleton, and G. Paraskevopoulos, "Effect of optical pulse duration on the XeCl laser ablation of polymers and biological tissue," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 50, pp. 1772-1781, 1982.



**R. Wrobel** was born in Lille, France, on February 8, 1961. He received the M.S. degree and the D.E.A. in physics from Lille University, Lille, France, in 1986 and 1987, respectively. He is now engaged in research on excimer laser applications for Medicine and Surgery. Since 1987, he has been studying for the "Thèse d'Etat" degree at the Lille University.



**P. Bernage** was born in Rouen, France, on March 14, 1941. He was graduated as Doctor in physics in 1976. He has been working in the past on infrared spectroscopy and laser spectroscopy. For several years, his current research lays in optical sensors and optical fiber optics. He is a Professor of Physics at the University of Lille. Dr. Bernage is a member of the Société Française d'Optique.

**P. Niay** was born in St Quentin, France, on April 2, 1945. He was awarded the "Thèse d'Etat" degree in 1980 from the Lille University, Lille, France. He has been engaged in the past in research on spectroscopy and his current research interests lay in nonlinear optics and in optical fiber optics. He is a Professor of Physics at the Lille University and a member of the Société Française d'Optique.

**H. Bocquet**, photograph and biography not available at the time of publication.

**C. Descamps**, photograph and biography not available at the time of publication.

**J. P. Huvenne**, photograph and biography not available at the time of publication.

**B. Lacroix**, photograph and biography not available at the time of publication.

**J. M. Brunetaud** was born in Reims, France, on June 29, 1945. He received the M.D. degree in 1970 from the Reims University, Reims..

His current research is in animal and human studies on therapeutic laser applications including laser tissue interaction development of new laser systems, tests on animal clinical, and economical evaluation of laser treatments. He is an Associate Professor of Medicine, Gastroenterology, and Biomedical engineering at the University of Lille. He is the Director of the Laser Department at the INSERM unit 279 of Lille and the Director of the multidisciplinary laser center of the Lille University Hospital. Dr. Brunetaud is the President of the French Laser Society of Medicine and Surgery.



**S. R. Mordon** (M'88) was born on May, 24, 1959. He was graduated as Doctor in medical physics in 1985.

In 1981, he joined the staff of the French National Institute of Health and Medical Research (INSERM) in Lille where he has been engaged in research of infrared radiometry and medical lasers. He is presently "Chargé de recherche" in the Laser Department of the INSERM, U 279.

### II.3 - CONCLUSION

Notre étude a montré que le seuil d'ablation des calculs biliaires diffère selon leur composition (0,05 à 0,1 J/cm<sup>2</sup> pour les calculs pigmentés et 0,1 à 0,2 J/cm<sup>2</sup> pour les calculs cholestéroliques). Nous avons également déterminé la loi régissant l'efficacité de l'ablation (en mg/J) en fonction de la densité d'énergie incidente (en J/cm<sup>2</sup>). L'analyse des produits gazeux dégagés lors de la destruction des calculs par irradiation laser a permis d'établir que l'abondance des gaz toxiques reste faible, si bien que le risque de toxicité des gaz peut être négligé. Cette conclusion doit cependant être retenue avec une relative prudence, puisque notre analyse a porté sur des espèces chimiques recueillies après les tirs lasers, en état d'équilibre stationnaire. La nature des espèces gazeuses formées de façon transitoire n'est donc pas élucidée par notre étude. Cependant P. Teng et al. [8] ont résolu en partie ce problème. Ces auteurs ont en effet procédé à une analyse spectrale en temps résolu du signal lumineux émis par un calcul irradié par une impulsion laser de fluence très supérieure à la fluence d'ablation. Le spectre d'émission est formé d'un continuum auquel se mélange un spectre d'absorption atomique attribué à des transitions du calcium neutre (Ca) et des ions ionisés (Ca<sup>+</sup> et Ca<sup>++</sup>). La présence d'un continuum d'émission est caractéristique de la formation d'un plasma d'électrons et d'ions. La durée de vie du plasma est de l'ordre de quelques microsecondes.

L'utilisation du laser excimère à XeCl ( $\lambda = 308$  nm), permet de détruire le calcul sous forme de particules de taille inférieure à 300  $\mu$ m, qui sont donc aisément éliminables par les voies naturelles. Cependant l'opportunité de l'utilisation éventuelle de ce type de laser reste encore à ce jour limitée, principalement pour des raisons technolo-

giques. Pour illustrer ce propos, nous avons reporté sur la figure II.3 le nombre de tirs et le temps d'intervention nécessaires pour détruire un calcul biliaire de masse M égale à 200 mg, en fonction du diamètre du coeur de la fibre utilisée pour guider le faisceau ultraviolet. Nous avons établi cette figure en formulant les hypothèses suivantes :

- (i) le calcul appartient à la catégorie pigmentée (l'efficacité d'ablation (figure 5 de l'article) est environ 2 à 3 fois supérieure à celle d'un calcul de type cholestérolique) ;
- (ii) les fibres sont du type STU, courtes ( $L < 2m$ ) ; que les densités d'énergie en sortie de fibre sont égales à la moitié des fluences correspondant aux seuils de fracture optique dont les valeurs sont reportées dans le tableau I.7 du chapitre I ;
- (iii) la cadence de tirs est égale à la cadence maximale autorisée par le laser utilisé, soit 20 Hz.

Nous pouvons tout d'abord noter que, **sous ces conditions expérimentales**, les temps d'intervention apparaissent prohibitifs. Il s'avère toutefois possible de diminuer les durées d'intervention en augmentant la cadence des tirs du laser (certains fabricants proposent des lasers dont la cadence de tirs est supérieure à 150 Hz [9]). Nous pouvons admettre que le nombre de tirs requis pour détruire un calcul est indépendant de la cadence de tirs, si bien que, quelle que soit la cadence, le nombre de tirs demeure élevé (> 50 000 dans le cas d'une fibre de diamètre de coeur 400  $\mu m$ ). Cette remarque implique que l'on utilise des fibres qui transmettent de hautes densités d'énergie sans que leur transmission ne diminue en fonction du nombre d'impulsions

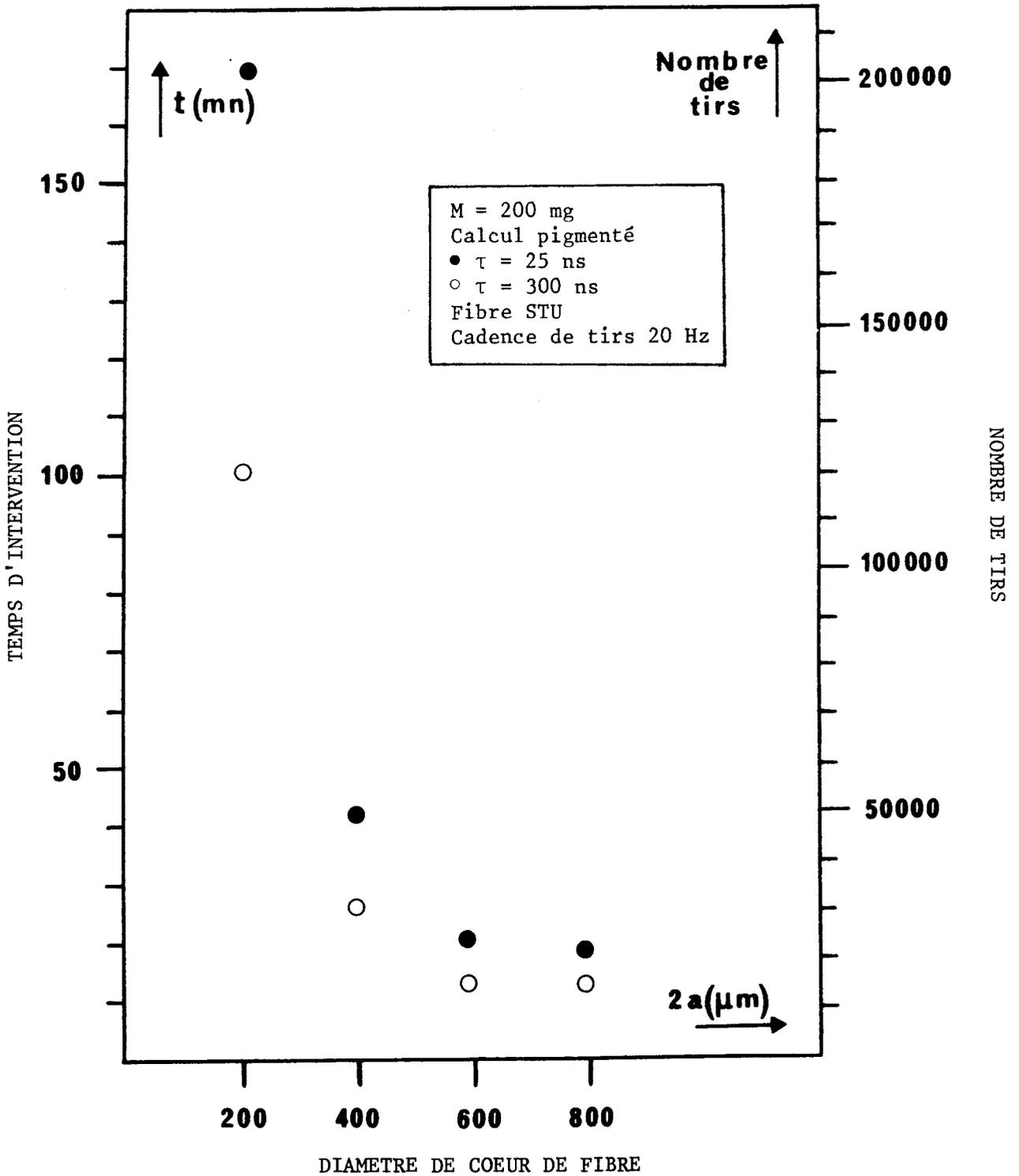


Figure II.3 - Temps d'intervention et nombre de tirs nécessaires pour détruire un calcul pigmenté au moyen d'impulsions délivrées par un laser excimère à XeCl ( $\lambda = 308$  nm) en fonction du diamètre de coeur de fibre.

auxquelles elles sont soumises. Nous avons montré dans le premier chapitre que, parmi les fibres testées, seules les fibres à coeur et gaine en silice se prêtaient à des irradiations par des tirs lasers répétés (50 000 tirs au moins).

D'autre part, nous avons reporté sur la figure II.3 les valeurs du nombre de tirs et des temps d'intervention que nous avons calculées en supposant que nous utilisons un laser délivrant des impulsions de durée  $\tau = 300$  ns (cercles vides). Pour effectuer ce calcul nous avons déterminé les valeurs des seuils de fracture optique à  $\tau = 300$  ns en utilisant les valeurs retenues précédemment ( $\tau = 25$  ns), corrigées de la loi de dépendance temporelle en  $\tau^{-0,4}$ . Nous avons considéré que la densité d'énergie en sortie de fibre était égale à la moitié de ces valeurs seuil. Nous avons également supposé que l'efficacité de l'ablation était indépendante de la durée de l'impulsion. Sous ces hypothèses nous pouvons constater que la réduction du nombre de tirs est surtout importante pour des fibres de faible diamètre de coeur (200  $\mu\text{m}$  et 400  $\mu\text{m}$ ). Pour des fibres de diamètre de coeur supérieur, la réduction du nombre de tirs est plus limitée, en raison de la baisse d'efficacité de l'ablation avec la fluence appliquée au calcul (figure 5 de l'article). Il est important de signaler que les fibres de diamètre de coeur 200  $\mu\text{m}$  et 400  $\mu\text{m}$  sont celles qui répondent le mieux à une application réelle in-vivo. En conséquence, pour que la destruction des calculs biliaires par laser excimère à XeCl puisse être envisagée in-vivo, il est nécessaire, d'une part d'utiliser des lasers présentant des cadences de tirs élevées ( $> 20$  Hz), et d'autre part d'augmenter la durée des impulsions ( $> 25$  ns). Ces progrès techniques ne pourront être exploités correctement que si les fabricants de fibre améliorent encore la tenue des fibres soumises à des tirs répétés réalisés dans l'ultraviolet à fluence élevée. Il reste également à évaluer les dangers mutagènes liés à la nature ultraviolette du rayonnement employé lors de l'ablation.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES DU CHAPITRE II

- [1] H.J. BURHENNE  
The promise of extracorporeal shock-wave lithotripsy for  
the treatment of gallstones.  
Am. J. of Rad., vol. 149, pp. 233-235, 1987.
- [2] R.D. SOLOWAY, B.W. TROTMAN, J.D. OSTROW  
Pigment Gallstones  
Gastroenterology, vol. 72, pp. 167-182, 1977.
- [3] F. BROUCQSAULT  
Etude comparative de deux techniques d'analyse des  
lithiases : la méthode chimique et la spectro-  
photométrie infrarouge.  
Thèse de Pharmacie, Lille II, 1984.
- [4] J.T. FERRUCCI  
Biliary lithotripsy : What will the issue be ?  
Am. J. of Rad., vol. 149, pp. 227-231, 1987.
- [5] N.S. NISHIOKA, P.C. LEVINS, S.C. MURRAY, J.A. PARRISH,  
R.R. ANDERSON  
Fragmentation of biliary calculi with tunable dye lasers  
Gastroenterology, vol. 93, pp. 250-255, 1987.
- [6] C. MAFFIOLI, J. DIOT, A. SEGAL, H. LOUVET, L. VANDROMME  
Lithotripsie biliaire par laser à colorant pulsé.  
Gastroenterologie, Clin. et Bid., vol. A173, 1988.

- [7] T.A. ZNOTINS, D. POULIN, J. REID  
Excimer lasers : an emerging technology in material  
processing  
Laser focus/electro-optics, pp. 54-70, May 1987.
- [8] P. TENG, N.S. NISHIOKA, R.R. ANDERSON, T.F. DEUTSCH  
Optical studies of pulsed-laser fragmentation of biliary  
calculi.  
Appl. Phys; B, vol. 42, p. 73-78, 1987.
- [9] Laser Focus World  
The Buyer's Guide, 1990.

## LISTE DES FIGURES ET TABLEAUX DU CHAPITRE II

Figure II.1 - Photographies d'échantillons caractéristiques de calculs biliaires appartenant aux deux catégories de calculs :

II.1.a : calcul pigmenté

II.1.b : calcul "cholestérolique".

Figure II.2 - Schéma de l'appareil digestif.

Figure II.3 - Temps d'intervention et nombre de tirs nécessaires pour détruire un calcul pigmenté au moyen d'impulsions délivrées par un laser excimère à XeCl ( $\lambda = 308 \text{ nm}$ ), en fonction du diamètre de coeur de fibre.

Tableau II.1 - Fréquence d'apparition des lithiases biliaires en fonction de leur composition chimique.

## **CHAPITRE III**

**DETERMINATION DE LA CONSTITUTION CHIMIQUE DE CALCULS**

**BILIAIRES ASSISTEE PAR UNE ANALYSE MULTICANALE**

**DE SPECTRES DE FLUORESCENCE INDUITS**

**A FAIBLE FLUENCE PAR LASER :**

**Classement des calculs dans la catégorie**

**cholestérolique ou pigmentée**



### III.1 - INTRODUCTION

Nous avons signalé dans le chapitre précédent qu'un effort de recherche important a été entrepris afin de mettre au point des méthodes thérapeutiques nouvelles permettant de traiter les cas de lithiases biliaires pour lesquels les méthodes conventionnelles semblent délicates à mettre en oeuvre, ou même susceptibles de conduire à une morbidité importante [1].

L'utilisation du laser constitue l'une des voies explorées. Nous avons montré dans le chapitre II que, dans l'état actuel des performances obtenues en associant le laser à une fibre optique, l'utilisation du laser excimère à XeCl ( $\tau \simeq 20$  ns), quoique prometteuse, ne conduit cependant pas encore à des résultats satisfaisants. L'utilisation de lasers pulsés visibles, à longue durée d'impulsion ( $1 \mu\text{s} < \tau < 360 \mu\text{s}$ ), permet de procéder à la fragmentation des calculs biliaires en un nombre restreint d'impulsions (environ 500 impulsions de 20 mJ pour détruire un calcul à forte teneur en cholestérol, à  $\lambda_p = 504$  nm [2]). Quelle que soit la longueur d'onde laser utilisée ( $\lambda_p = 308$  nm ou  $450 \text{ nm} < \lambda_p < 700 \text{ nm}$ ), les fluences correspondant au seuil d'ablation des calculs pigmentés s'avèrent jusqu'à cinq fois plus faibles que celles des calculs à forte teneur en cholestérol [2][3]. Le développement futur des techniques de destruction des calculs par laser implique donc que des méthodes d'identification in-vivo de la nature chimique des calculs soient mises au point afin d'optimiser les paramètres des tirs avant ou pendant l'intervention. D'autres techniques thérapeutiques, basées sur la dissolution des calculs par des solvants chimiques, ont également été proposées [4,5,6,7,8]. La dissolution peut être obtenue par

ingestion de médicaments (acides biliaires), au bout d'un temps plus ou moins long (1 à 2 ans), ou par injection directe du solvant à l'aide d'un cathéter (la durée du traitement varie dans ce cas de quelques heures à quelques jours). Dans ces deux derniers cas, l'efficacité du traitement est conditionnée par la composition chimique des calculs (et du solvant) : suivant les conditions thérapeutiques, les calculs cholestéroliques sont susceptibles d'être partiellement ou totalement dissous [1], alors que les calculs pigmentés résistent pour l'instant à tout traitement chimique. Il semble donc, là encore, important d'être en mesure d'identifier sans ambiguïté la nature chimique de la lithiase biliaire avant d'appliquer ce type de traitement à un patient.

Différentes méthodes d'analyse biochimique peuvent être utilisées pour déterminer la composition chimique de calculs extraits par voie chirurgicale du cholédoque ou de la vésicule biliaire. Nous pouvons citer par exemple les méthodes faisant appel à l'extraction des composants du calcul par dissolution chimique sélective, suivie de dosages quantitatifs [9]. La chromatographie en phase liquide [9], ainsi que des méthodes physiques basées sur la diffractométrie des rayons X [2] [10], peuvent être employées pour préciser les résultats de ces analyses. La spectrométrie d'absorption infrarouge est également fréquemment utilisée pour déterminer la nature chimique des calculs. Elle permet une analyse semi-quantitative de leur composition. Bien que la méthode spectrophotométrique soit moins sensible que l'analyse chimique pour la détection de certains composants au sein de calculs particuliers, elle s'avère d'un usage courant en milieu hospitalier. Elle permet au gastroentérologue d'étudier l'épidémiologie, l'étiologie, et d'envisager une éventuelle thérapeutique pour rétablir l'équilibre biologique du patient.

L'analyse in-vivo de la nature chimique des calculs par radiographie semble conduire à des résultats peu fiables [10] [11]. En effet il n'existe pas, à notre connaissance, de critère radiologique précis permettant d'identifier avec une bonne probabilité la composition d'un calcul (pour citer un exemple, une lithiase multiple laisse présager que les calculs sont cholestéroliques selon certains auteurs [11], alors que pour d'autres auteurs ce critère est caractéristique des calculs pigmentés [12]). Devant cette situation, il nous a semblé intéressant de mettre au point une méthode de détermination de la nature chimique des calculs, basée sur un concept différent. La méthode repose sur l'analyse spectrale de la fluorescence de calculs biliaires excitée par laser.

Nous présentons dans ce chapitre les résultats préliminaires obtenus *in-vitro* par cette méthode.

### **III.2 - DESCRIPTION DE LA METHODE D'ANALYSE**

#### **III.2.1 - Les échantillons**

Vingt deux échantillons ont été retenus au hasard parmi une population de soixante dix calculs provenant d'hôpitaux divers de la région lilloise. Nous n'avons pas eu connaissance de l'étiologie des lithiases biliaires étudiées. Les dates de prélèvement et des renseignements tels que âge, sexe, poids, race des patients ne nous ont pas été communiqués. Les calculs ont été stockés dans une solution saline placée à 4°C dans un réfrigérateur. Avant toute expérience, le calcul est essuyé, et une masse de 2 mg est prélevée afin d'en réaliser l'analyse par spectrométrie

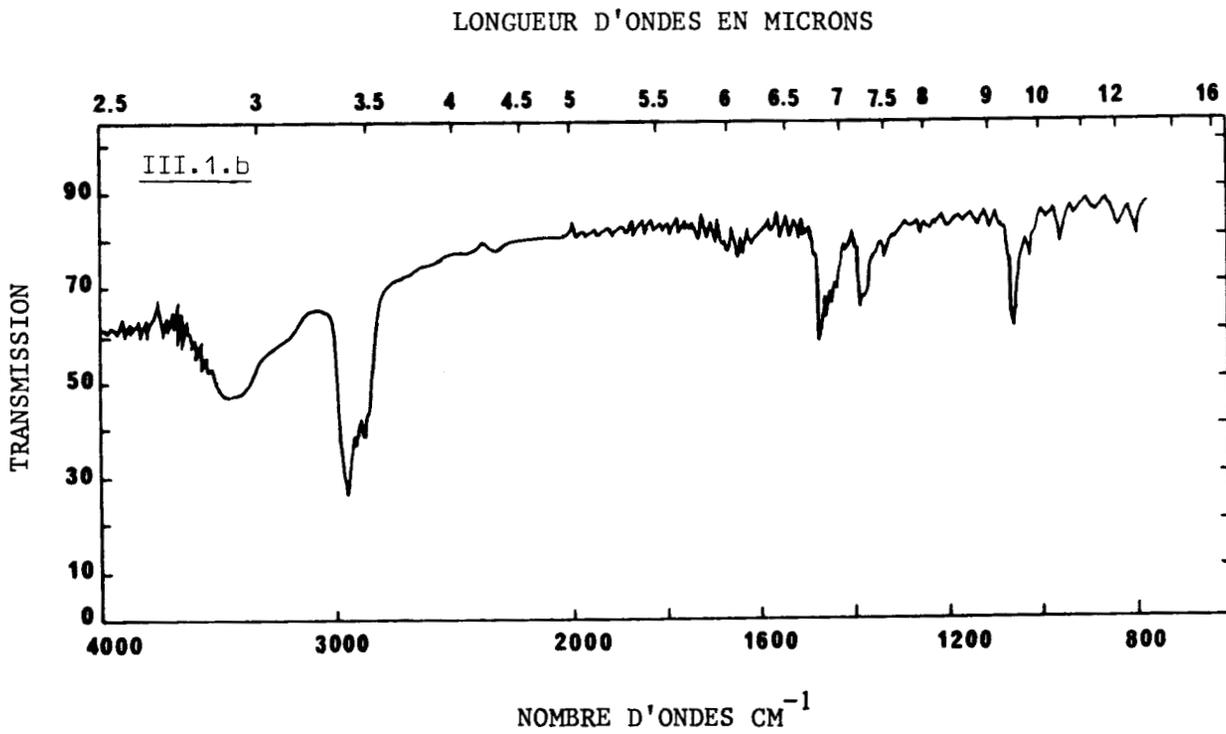
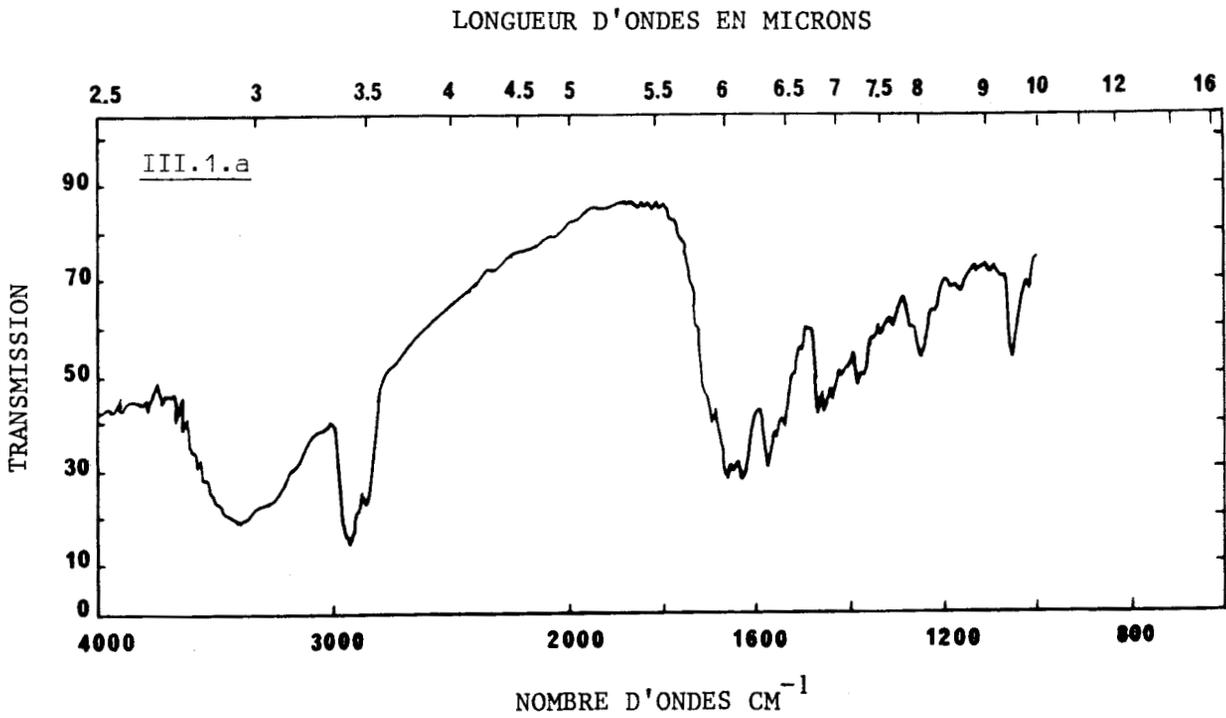


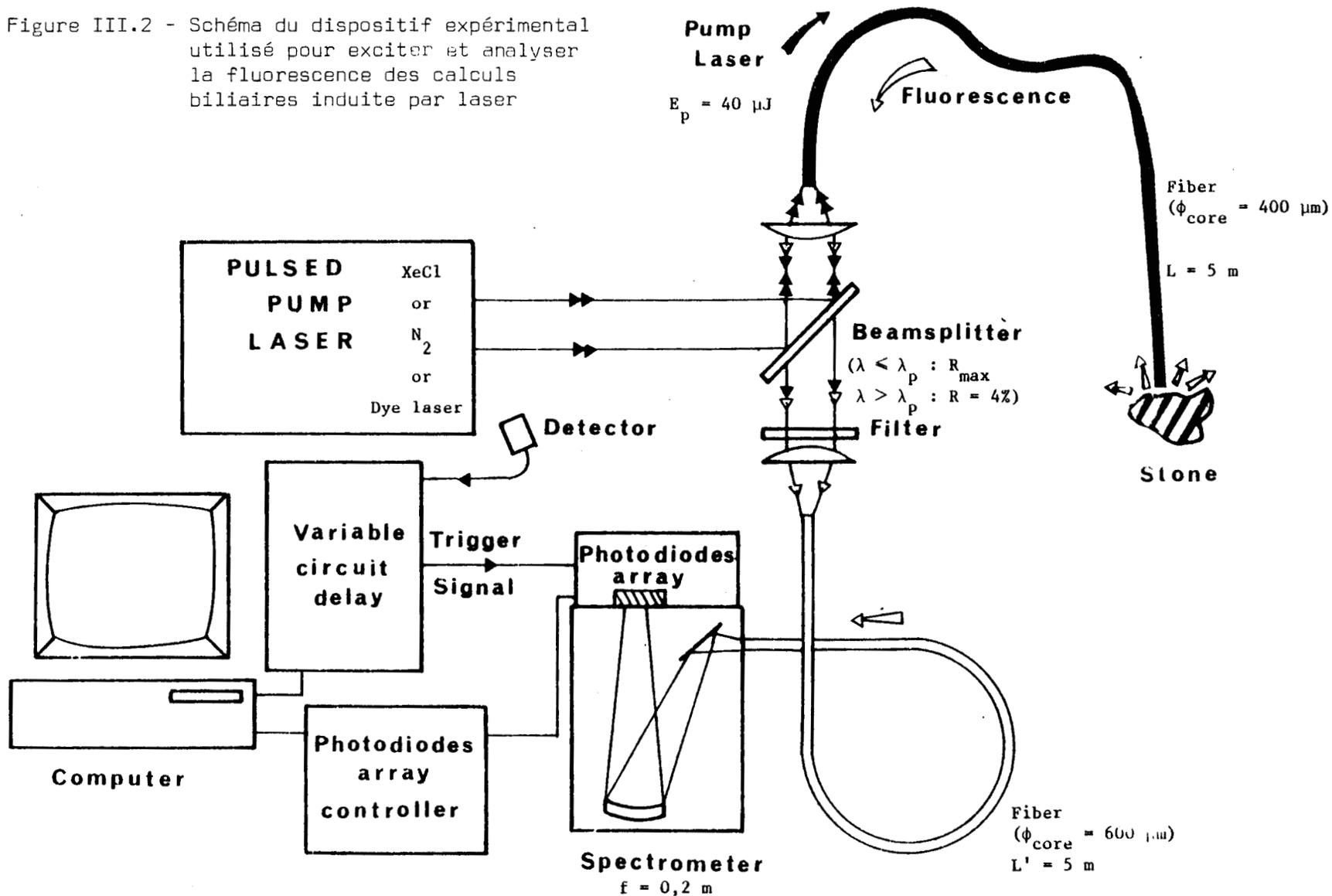
Figure III.1 - Exemples de spectres caractéristiques d'absorption infrarouge correspondant à :  
III.1.a : calcul pigmenté ;  
III.1.b : calcul cholestérolique

infrarouge \*. Le prélèvement est broyé dans un mortier puis mélangé à 200 mg de poudre de bromure de potassium (Kbr). Une pastille de 1 mm d'épaisseur est obtenue par compression de la poudre. La pastille est ensuite interposée sur un faisceau de lumière parallèle issu d'une source blanche de type Globar. Ce faisceau constitue l'un des deux bras d'un spectromètre d'absorption différentielle à réseau (Beckman, Acculab 1). Une pastille de Kbr pur de même épaisseur est placée en référence sur le second bras. L'analyse du spectre d'absorption permet d'établir la composition chimique du calcul. Comme il apparaît sur la figure (III.1), les différences entre le spectre d'un calcul pigmenté et celui d'un calcul à forte teneur en cholestérol sont surtout notables autour de  $1600\text{ cm}^{-1}$ . L'étude détaillée des spectres obtenus par cette méthode, présentée dans la référence [13], permet une analyse semi-quantitative des différentes molécules constituant le calcul. Ainsi, parmi les vingt deux échantillons retenus dans notre étude, vingt calculs ont été identifiés comme provenant de lithiases banales alors que deux calculs ont pour origine des lithiases plus rares. Parmi les vingt calculs, onze ont été classés dans la catégorie cholestérolique et neuf dans la catégorie pigmentée (les calculs pigmentés comportent une proportion importante de bilirubinate de calcium). Ces vingt calculs ont été utilisés pour établir les lois statistiques à l'origine de la méthode de classement que nous proposons. L'un des deux calculs peu communs correspond à une lithiase de calcite alors que l'autre est constitué essentiellement de palmitate de calcium. L'unicité de ces calculs a rendu impossible toute

---

\* Nous remercions vivement Monsieur le Docteur E. LEROY du Laboratoire de Biochimie (Hôpital Calmette) qui a procédé aux analyses des échantillons.

Figure III.2 - Schéma du dispositif expérimental utilisé pour exciter et analyser la fluorescence des calculs biliaires induite par laser



étude statistique portant sur leurs spectres de fluorescence. Ces spectres ont toutefois servi à contrôler la validité de la méthode de classement proposée.

Afin d'étayer la corrélation entre l'aspect de la distribution spectrale d'intensité des signaux de fluorescence et la composition chimique du calcul, nous avons procédé à l'enregistrement des spectres de fluorescence de différents constituants purs susceptibles d'entrer dans la composition des calculs. Le cholestérol, la bilirubine, le carbonate de calcium et le phosphate de calcium nous ont été fournis par de la Société Prolabo. Le palmitate de calcium et le bilirubinate de calcium ne sont pas disponibles commercialement. Nous avons donc réalisé\* la synthèse chimique de ces produits en procédant comme indiqué dans les références [14] et [15].

Les calculs soumis à l'étude de fluorescence ne subissent aucune préparation particulière supplémentaire. La majeure partie des expériences a été réalisée sur des calculs placés sur un support à l'air libre. Quelques expériences ont toutefois été effectuées sur des calculs immergés dans de la bile d'origine humaine.

### III.2.2 - Description du dispositif expérimental

Une fibre optique unique est utilisée pour transmettre l'impulsion laser excitatrice jusqu'au calcul et pour recueillir en retour le signal de fluorescence soumis à l'analyse spectrale. Le schéma du dispositif expérimental

---

\* Nous tenons à remercier M. Laurent BOUSCHOT du Laboratoire de Chimie Organique (M. Le Professeur CORDONNIER), pour l'aide précieuse qu'il nous a apportée dans la réalisation de cette synthèse.

Longueur d'onde de pompe $\lambda_p$	Source laser	Durée d'impulsion	Energie délivrée par impulsion en sortie de fibre	Séparatrice	Filtre	Détection
308 nm	Excimère XeCl	25 ns	40 $\mu$ J	Lame de quartz $R_\lambda = 308 \text{ nm} \approx 8\%$ $T_\lambda = 308 \text{ nm} \approx 90\%$	<ul style="list-style-type: none"> <li>M.T.O., J 324 a  <math>T_\lambda = 308 \text{ nm} \approx 4\%</math>  <math>T_\lambda &gt; 350 \text{ nm} \approx 90\%</math></li> <li>Filtre Technical Optics Limited  <math>T_\lambda = 308 \text{ nm} \approx 0</math>  <math>T_\lambda = 350 \text{ nm} \approx 42\%</math>  <math>T_\lambda &gt; 400 \text{ nm} \approx 90\%</math></li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>Spectromètre à réseau concave holographique UFS-200 blasé à 4000Å  Efficacité :  27 à 3000 Å  36 à 4000 Å  20 à 7000 Å</li> <li>Barette de photodiodes (EGG, modèle 1420)  Sensibilité :  40 mA/W à 300 nm  65 mA/W à 425 nm  92 mA/W à 700 nm</li> </ul>
337 nm	Azote	7 ns	40 $\mu$ J	Miroir traité $R_\lambda = 337 \text{ nm} \approx 70\%$ $T_\lambda > 400 \text{ nm} \approx 90\%$	<ul style="list-style-type: none"> <li>Schott GG 375  <math>T_\lambda = 337 \text{ nm} &lt; 0,001\%</math>  <math>T_\lambda = 380 \text{ nm} \approx 58\%</math>  <math>T_\lambda &gt; 430 \text{ nm} \approx 92\%</math></li> </ul>	
423 nm	Colorant (stilbène 420) pompé par laser excimère XeCl	17 ns	40 $\mu$ J	Miroir traité $R_\lambda = 423 \text{ nm} \approx 30\%$ $T_\lambda > 450 \text{ nm} \approx 90\%$	<ul style="list-style-type: none"> <li>Schott GG 475  <math>T_\lambda = 420 \text{ nm} &lt; 0,001\%</math>  <math>T_\lambda \approx 480 \text{ nm} \approx 63\%</math>  <math>T_\lambda &gt; 510 \text{ nm} \approx 90\%</math></li> </ul>	
469 nm	Colorant (coumarine) pompé par laser excimère XeCl	17 ns	40 $\mu$ J	Miroir traité $R_\lambda = 469 \text{ nm} \approx 30\%$ $T_\lambda > 500 \text{ nm} \approx 90\%$	<ul style="list-style-type: none"> <li>Filtre Optics Technologies  <math>T_\lambda = 469 \text{ nm} \approx 0,001\%</math>  <math>T_\lambda &gt; 510 \text{ nm} \approx 85\%</math></li> </ul>	

Tableau III.1 - Caractéristiques d'émission des sources lasers et de transmission spectrale des éléments optiques.

est représenté sur la figure (III.2). L'impulsion pompe est guidée jusqu'au calcul au moyen d'une fibre optique à saut d'indice en silice (fibre ST-U, diamètre de coeur 400  $\mu\text{m}$ ). L'extrémité de la fibre est placée au **contact du calcul**. Cette fibre recueille le signal de fluorescence émis par le calcul et le guide jusqu'à une lame séparatrice. La lame séparatrice réfléchit une partie de la puissance pompe incidente, et présente un facteur de transmission de l'ordre de 90% aux longueurs d'onde supérieures à celle de l'émission de pompe. Un filtre optique passe-haut permet d'atténuer encore l'émission réfléchie ou diffusée à la longueur d'onde de pompe  $\lambda_p$ . Le signal de fluorescence est ensuite injecté dans une chaîne de mesure au moyen d'une seconde fibre servant de déport. Cette chaîne d'analyse et de détection est constituée par un spectromètre à réseau concave holographique (Jobin-Yvon, UFS200), associé à une barette de détecteurs au silicium (EGG, modèle 1420). Les détecteurs, fonctionnant en mode déclenché, sont suivis d'un système automatique d'acquisition de données piloté par microordinateur. La sensibilité des détecteurs est intensifiée pendant la durée d'ouverture (5 ns) d'une porte électronique. L'ouverture de cette porte est activée avec un retard ajustable entre 60 ns et 310 ns par rapport au début de l'impulsion lumineuse de pompe. Un tel dispositif permet l'enregistrement en temps réel des spectres de fluorescence sur le domaine spectral {300 nm - 700 nm}.

Quatre sources lasers ont été successivement utilisées pour exciter la fluorescence des calculs. Les caractéristiques de ces sources ainsi que celles des éléments optiques utilisés dans le montage expérimental propre à chacune de ces sources, sont rassemblées dans le tableau (III.1). Le choix des longueurs d'onde  $\lambda_p = 308$  nm et  $\lambda_p = 337$  nm résulte de la disponibilité commerciale des lasers émettant ces radiations. Les longueurs d'onde des



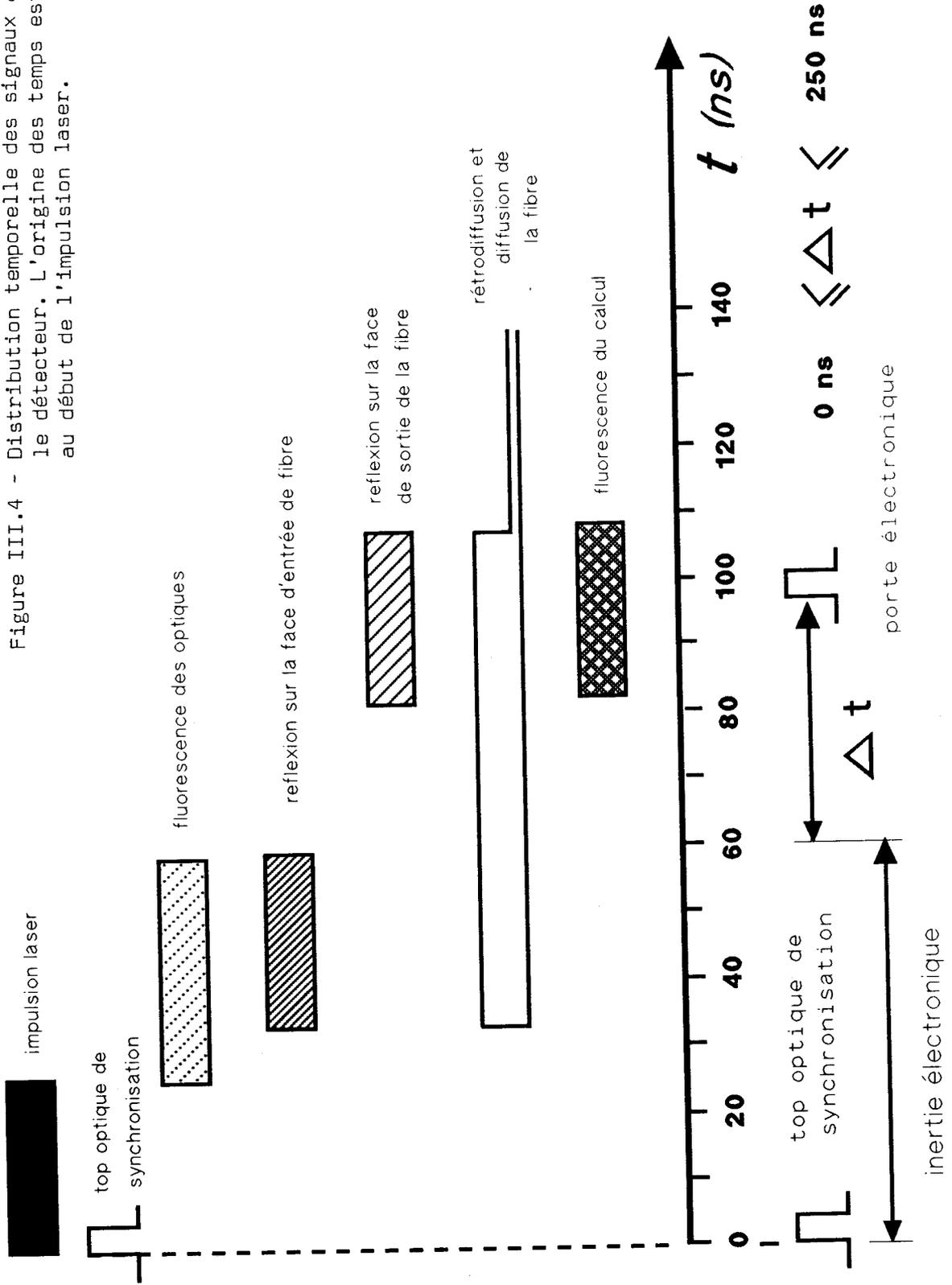
lasers visibles ( $\lambda_p = 423 \text{ nm}$  et  $\lambda_p = 469 \text{ nm}$ ) ont été choisies dans une région spectrale dans laquelle les coefficients d'absorption  $\alpha_p$  et  $\alpha_c$  des calculs respectivement pigmentés et cholestéroliques présentent une différence relative maximale (par exemple, à  $\lambda_p = 423 \text{ nm}$ ,  $\alpha_c \simeq 80 \text{ cm}^{-1}$ ,  $\alpha_p \simeq 140 \text{ cm}^{-1}$  et à  $\lambda_p = 469 \text{ nm}$ ,  $\alpha_c = 65 \text{ cm}^{-1}$ ,  $\alpha_p \simeq 155 \text{ cm}^{-1}$  [14]).

Il est important de signaler que, comme il apparaît dans le tableau III.1, la fluence incidente sur le calcul ( $F \simeq 0,03 \text{ J/cm}^2$ ) est ajustée, quel que soit le laser de pompe, à une valeur inférieure à celle correspondant au seuil d'ablation du calcul à la longueur d'onde considérée [2], [3].

Avant de procéder à l'analyse multicanale des spectres de fluorescence, nous avons réalisé les deux expériences préliminaires suivantes.

Nous nous sommes tout d'abord proposés de déterminer la durée des signaux de fluorescence émis par les calculs. A cet effet, nous avons disposé l'extrémité de la fibre de déport devant un détecteur rapide (photomultiplicateur Hamamatsu R955, de temps de montée 2,2 ns). Le signal électrique, délivré par le photomultiplicateur, est enregistré au moyen d'un oscilloscope numérique de bande passante 1 GHz (Hewlett-Packard, 54100 A). Des enregistrements caractéristiques de signaux obtenus avec le laser de pompe XeCl ( $\lambda_p = 308 \text{ nm}$ ) sont représentés sur la figure (III.3). Les signaux de la figure (III.3.a) ont été obtenus sans que les filtres optiques passe-haut aient été placés dans le montage. La première impulsion de la figure (III.3.a) correspond au signal de longueur d'onde  $\lambda_p$  réfléchi par la face d'entrée de la fibre. La deuxième impulsion résulte du signal de fluorescence émis par un calcul (cholestérolique) qui se mélange temporellement au signal obtenu par la réflexion de l'impulsion pompe sur la face de sortie de la fibre et sur

Figure III.4 - Distribution temporelle des signaux atteignant le détecteur. L'origine des temps est prise au début de l'impulsion laser.



le calcul. Les deux signaux sont séparés temporellement par un délai d'environ 50 ns, qui correspond au temps d'aller-retour de la lumière dans la fibre d'analyse. Le signal de la figure (III.3.b) a été enregistré avec les filtres optiques passe-haut disposés comme indiqué sur la figure (III.2). Les signaux à la longueur d'onde  $\lambda_p$  sont complètement atténués par le filtre passe-haut, et seule apparaît sur l'enregistrement l'impulsion due à la fluorescence du calcul. Il résulte de l'examen de la figure (III.3.b) que, à la résolution temporelle de notre expérience près, le signal de fluorescence est synchrone de l'impulsion de pompe incidente sur le calcul. La durée du signal de fluorescence est sensiblement égale à celle de l'impulsion pompe. Ces constatations permettent de préciser la valeur des délais temporels que nous avons fixés pour chaque laser entre l'instant de départ de l'impulsion laser et celui d'ouverture de la porte électronique activant les détecteurs. La figure (III.4) représente la distribution temporelle des signaux optiques produits par l'impulsion pompe issue du laser à excimère XeCl. Comme il apparaît sur cette figure, l'utilisation d'un laser de pompe pulsé et d'une fibre introduisant un trajet optique  $L$  supérieur à la longueur spatiale  $L'$  de l'impulsion ( $L' = \tau.c = 7,5$  m) permet de réaliser un filtrage temporel partiel des signaux lumineux parasites induits par le laser de pompe.

D'autre part nous avons également cherché à mesurer la **réponse spectrale relative du dispositif expérimental**. Cette réponse est une fonction de la transmission spectrale de chaque élément optique du montage (lame séparatrice, fibres, lentilles, filtre, spectromètre) (voir tableau III.1), et de la sensibilité spectrale de la barette de détecteurs. A défaut d'une source étalon de luminance spectrale étalonnée, nous avons utilisé pour réaliser cette mesure une lampe **S** à filament de tungstène (type lampe à

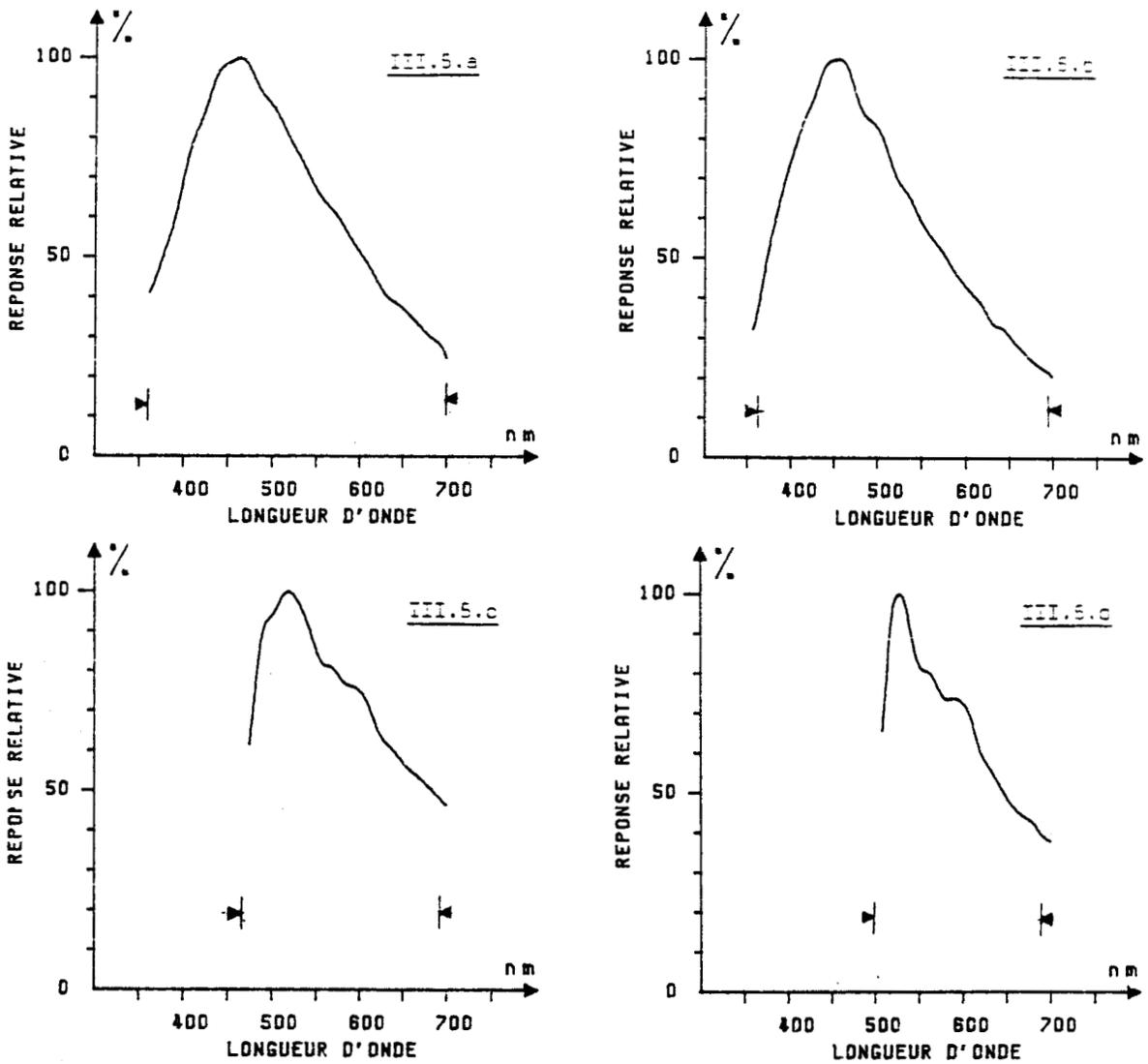


Figure III.5 - Réponses spectrales des montages utilisés avec chaque source laser (▶ | ◀ indique les limites du domaine de validité des réponses)

- III.5.a :  $\lambda_p = 308$  nm
- III.5.b :  $\lambda_p = 337$  nm
- III.5.c :  $\lambda_p = 423$  nm
- III.5.d :  $\lambda_p = 469$  nm

iode) dont la température de luminance  $T_l \approx 3400$  K a été déterminée à l'aide d'un pyromètre optique à disparition de filament [17]. Une partie du flux lumineux issu de la source **S** est injectée dans la fibre d'analyse par la face située du côté du calcul. La distribution spectrale  $D(\lambda)$  de l'émission de la lampe, détectée par la barette de photodiodes après traversée de la chaîne de mesure, est alors enregistrée. En assimilant la luminance spectrale de la source **S** à celle d'un corps noir porté à la température  $T = T_l$ , nous pouvons déduire de cet enregistrement la réponse spectrale  $R(\lambda)$  du montage. A cet effet nous calculons pour chaque longueur d'onde la luminance  $L(\lambda)$  de la source **S** à l'aide de la relation (III.1) [18] :

$$(III.1) \quad \left\{ \begin{array}{l} L(\lambda) = \frac{C_1 \cdot \lambda^{-5}}{\exp\left\{\frac{C_2}{\lambda \cdot T}\right\} - 1} \quad (\text{W/cm}^3/\text{sr}) \\ C_1 = 1,1916 \cdot 10^{-12} \quad (\text{W} \cdot \text{cm}^2) \\ C_2 = 1,4391 \quad (\text{cm} \cdot \text{K}) \end{array} \right.$$

Dans l'expression (III.1) il convient d'exprimer la longueur d'onde  $\lambda$  en cm et la température  $T$  en Kelvins. Nous supposons que le détecteur présente une réponse linéaire en puissance et nous formons pour chaque longueur d'onde le quotient entre l'amplitude du signal enregistré  $D(\lambda)$  et la valeur calculée  $L(\lambda)$ . La valeur de la réponse est arbitrairement normalisée à 100% à la longueur d'onde pour laquelle le quotient  $\frac{D(\lambda)}{L(\lambda)}$  est maximum. Les réponses spectrales relatives des montages expérimentaux utilisés avec chaque source laser de pompe sont reportées sur la figure (III.5). Nous avons limité le tracé des courbes de réponse aux domaines spectraux significatifs. Il faut signaler que l'incertitude attachée à la détermination du quotient dépend de la

longueur d'onde et que (compte-tenu des hypothèses formulées) la précision du tracé des courbes de réponse est difficile à évaluer de façon absolue. La chute de réponse vers les basses longueurs d'onde est due à la faible transmission à ces longueurs d'onde du système de filtrage optique. La chute de l'efficacité du réseau et de la sensibilité des détecteurs à mesure que la longueur d'onde augmente vers le proche infrarouge se traduisent par une baisse de la réponse dans le jaune et le proche infrarouge.

### III.3 - RESULTATS

#### III.3.1 - Présentation des spectres de fluorescence

Les spectres de fluorescence ont été enregistrés pour chaque échantillon et pour chaque longueur d'onde d'excitation. Selon la catégorie des calculs, il apparaît des différences sensibles dans l'intensité et la répartition spectrale des signaux obtenus lorsque la fluorescence est excitée par une longueur d'onde ultraviolette ( $\lambda_p = 308$  nm et  $\lambda_p = 337$  nm). Lorsque la longueur d'onde du laser de pompe est située dans le visible, la zone spectrale d'analyse se trouve réduite en raison de la limitation en bande d'analyse imposée par le filtre optique passe-haut (figure III.5). Les différences entre les spectres des calculs de nature chimique distincte apparaissent alors moins marquées. Des spectres caractéristiques de calculs cholestéroliques et pigmentés sont représentés sur les figures (III.6.a.β) à (III.6.d.β). La nature chimique des calculs se trouve précisée dans la légende. Ces spectres ne sont pas corrigés de la réponse spectrale de la chaîne de mesure utilisée. Ils correspondent à un enregistrement pris en moyenne sur dix tirs. La fluctuation tir à tir de l'intensité

globale des signaux de fluorescence peut atteindre vingt pour cent. Dans la plupart des cas, l'aspect général des spectres se conserve tir après tir lorsque l'on déplace le point d'analyse (diamètre du spot  $2a \approx 500 \mu\text{m}$ ) à la surface du calcul.

### III.3.1-1 Calculs cholestéroliques

Lorsque la longueur d'onde de pompe est égale à  $\lambda_p = 308 \text{ nm}$ , les spectres de fluorescence des calculs à forte teneur en cholestérol sont caractérisés par une bande intense dont le maximum se situe entre 390 nm et 425 nm. Avec le laser à azote, ( $\lambda_p = 337 \text{ nm}$ ), cette bande se situe entre 400 nm et 450 nm. Dans le cas des lasers visibles, la bande intense est localisée entre 490 et 540 nm ( $\lambda_p = 423 \text{ nm}$ ) ou entre 520 nm et 550 nm ( $\lambda_p = 469 \text{ nm}$ ). Quelle que soit la longueur d'onde du laser de pompe, le signal de fluorescence émis entre 650 nm et 700 nm par les calculs cholestéroliques se révèle très faible.

### III.3.1-2 Calculs pigmentés

Les signaux de fluorescence des calculs pigmentés apparaissent moins intenses sans dispersion que ceux provenant des calculs cholestéroliques. Après dispersion, les répartitions spectrales d'intensité sont moins contrastées. Avec des lasers de pompe à XeCl ou  $\text{N}_2$ , les maxima observés se situent respectivement vers 450 nm et 475 nm. Le spectre de la figure (III.6.b.β.3) ( $\lambda_p = 337 \text{ nm}$ ) correspondant à un calcul de composition chimique établie par spectrométrie infrarouge : {bilirubinate de calcium + cholestérol} constitue un cas particulier intéressant. En effet, ce calcul, de couleur brunâtre, présente des zones annulaires plus rouges dont les dimensions typiques sont de l'ordre du millimètre. Lorsque l'extrémité de la fibre est placée au contact de

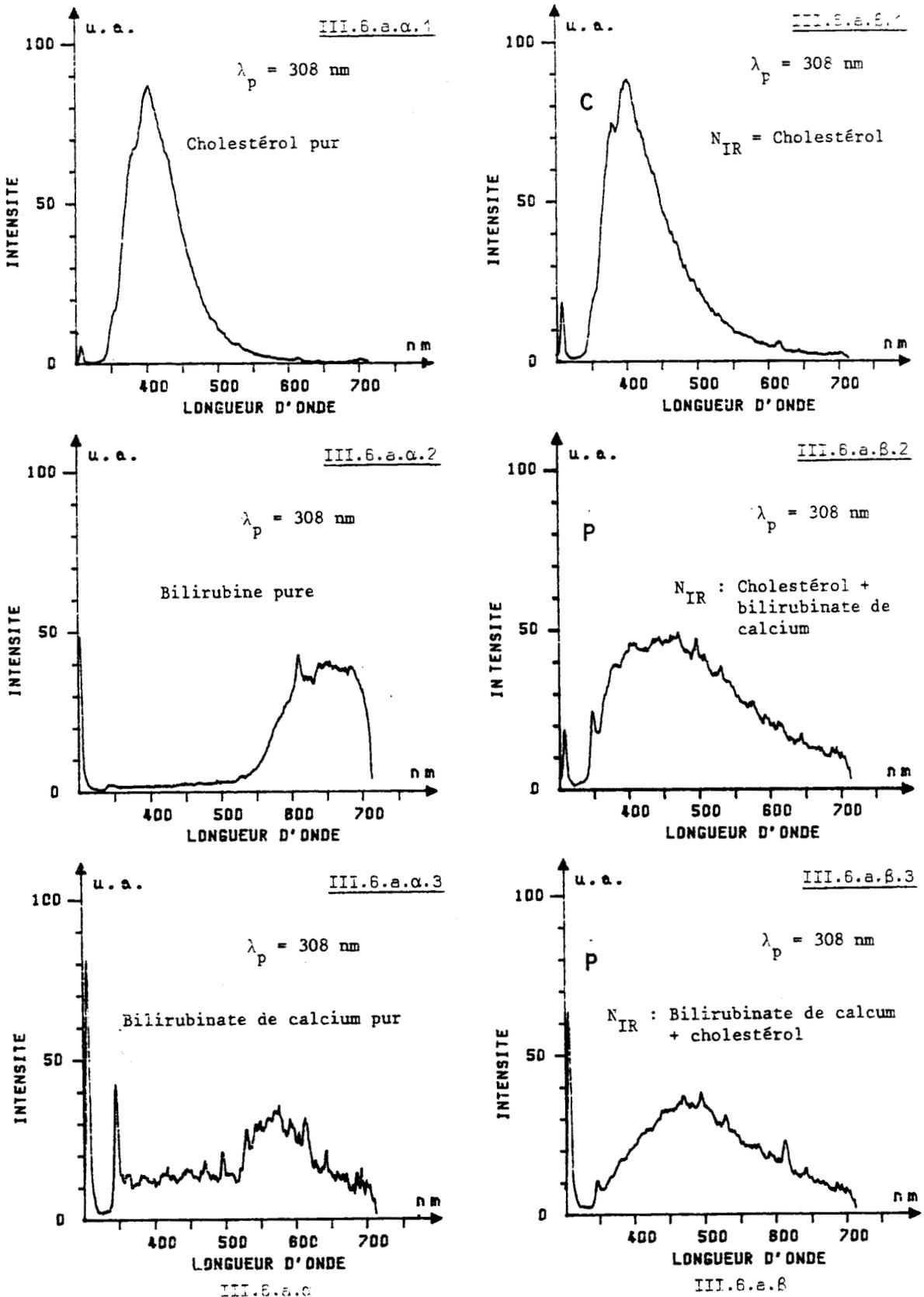
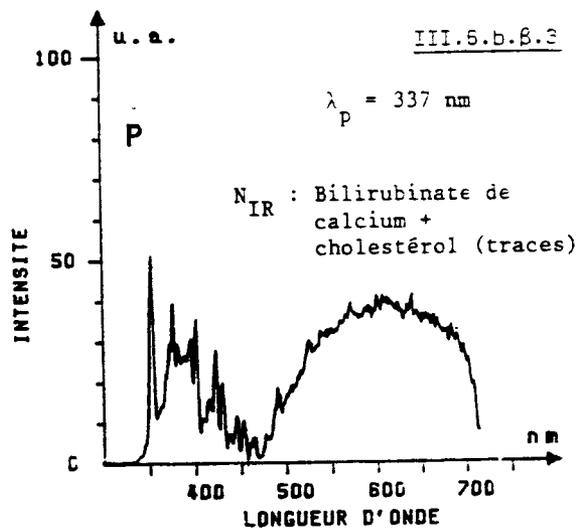
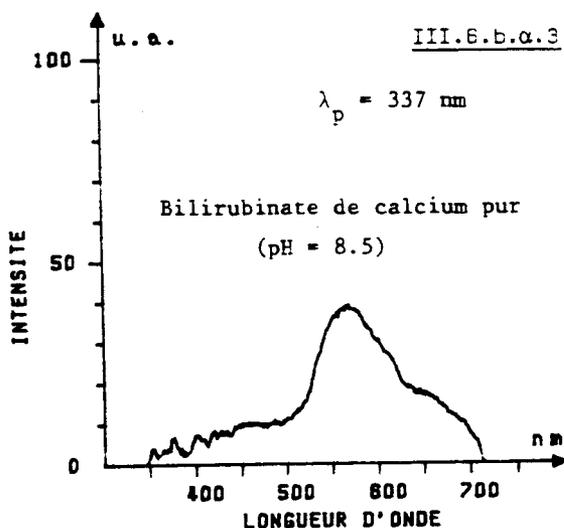
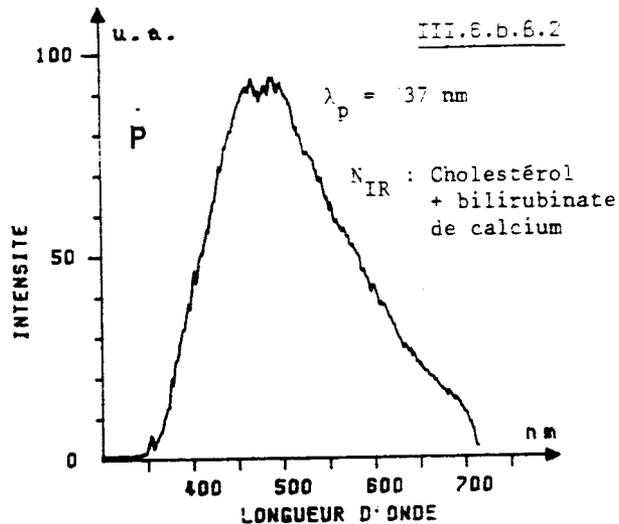
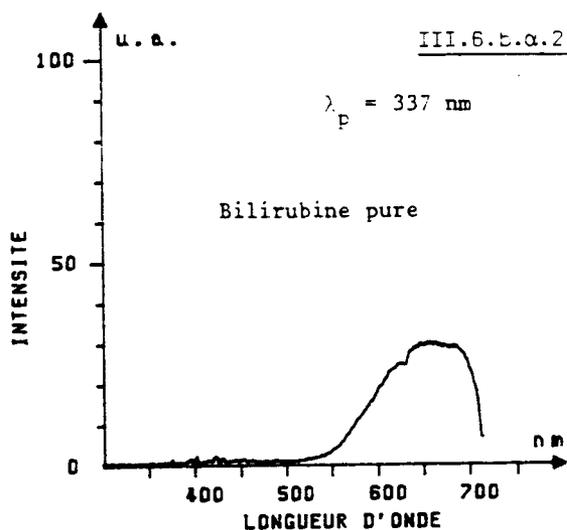
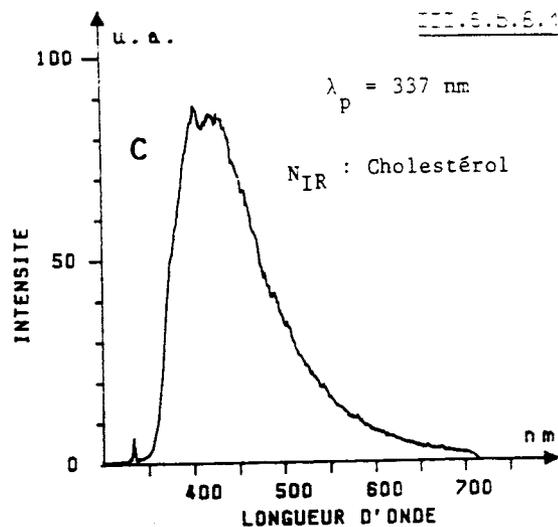
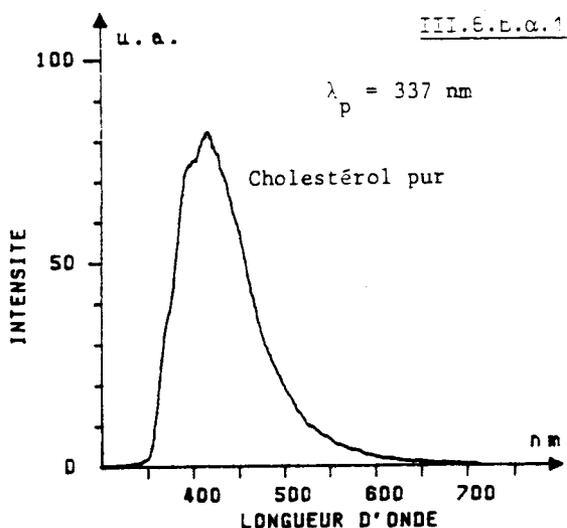


Figure III.6.a - Spectres de fluorescence excitée par la longueur d'onde  $\lambda_p = 308 \text{ nm}$  (spectres non corrigés de la réponse spectrale du montage)  
 III.6.a.alpha : spectres de constituants purs  
 III.6.a.beta : spectres de calculs  
 $N_{IR}$  indique la composition chimique du calcul établie par spectrométrie infrarouge ;  
 C : calcul cholestérolique ;  
 P : calcul pigmenté.



III.6.b.alpha

III.6.b.beta

Figure III.6.b - Spectres de fluorescence excitée par la longueur d'onde  $\lambda_p = 337$  nm (spectres non corrigés de la réponse spectrale du montage)

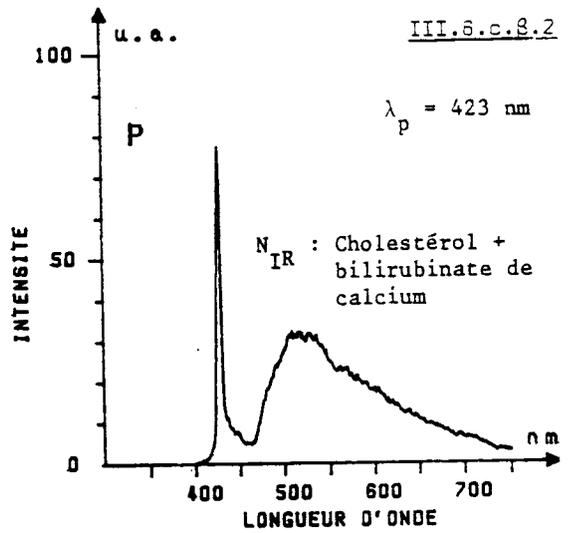
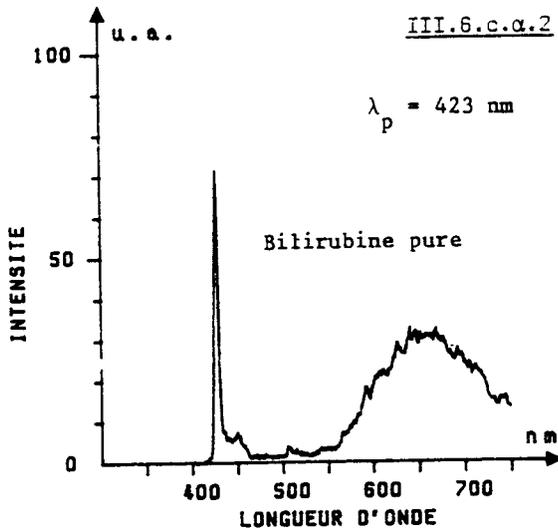
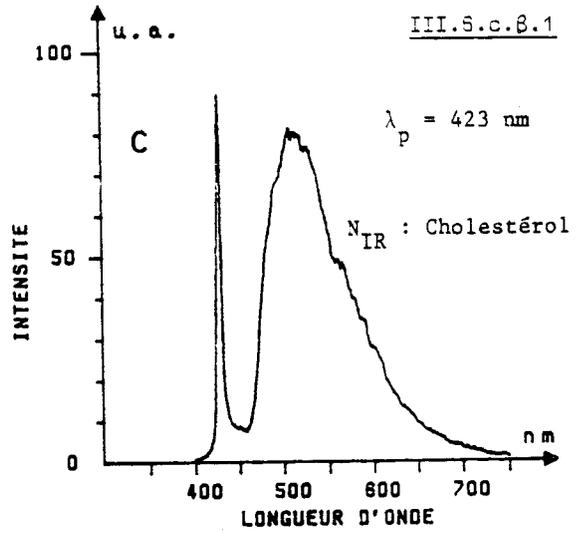
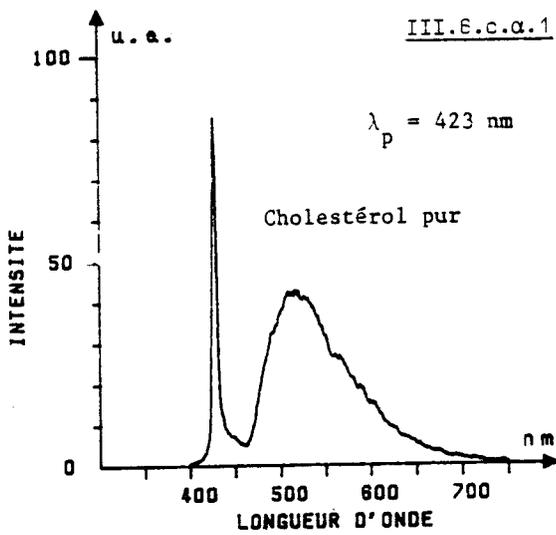
III.6.b.alpha : spectres de constituants purs

III.6.b.beta : spectres de calculs

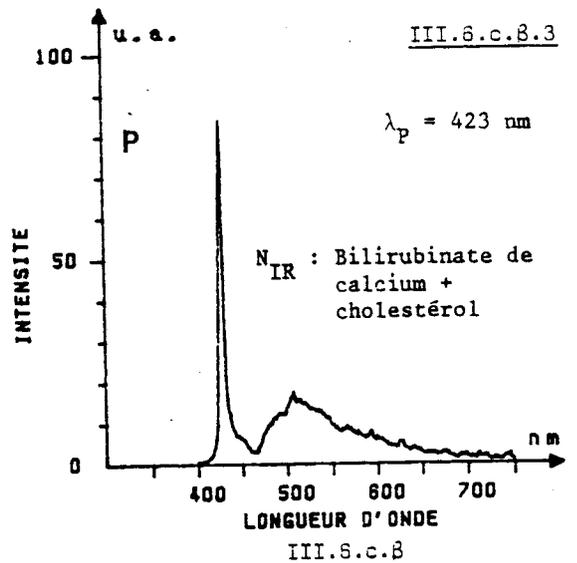
$N_{IR}$  indique la composition chimique du calcul établie par spectrométrie infrarouge ;

C : calcul cholestérolique ;

P : calcul pigmenté



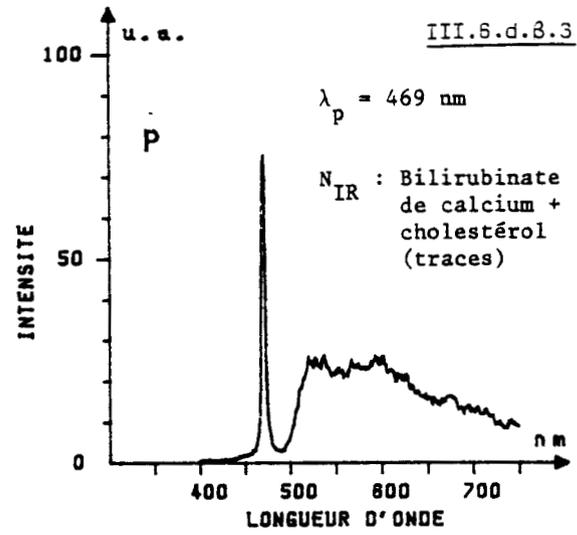
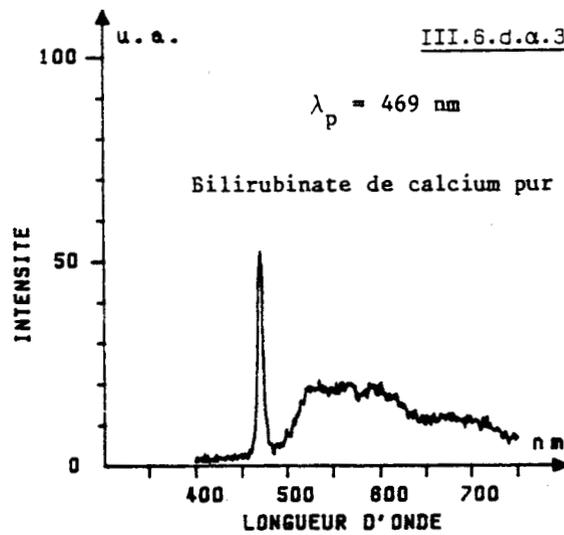
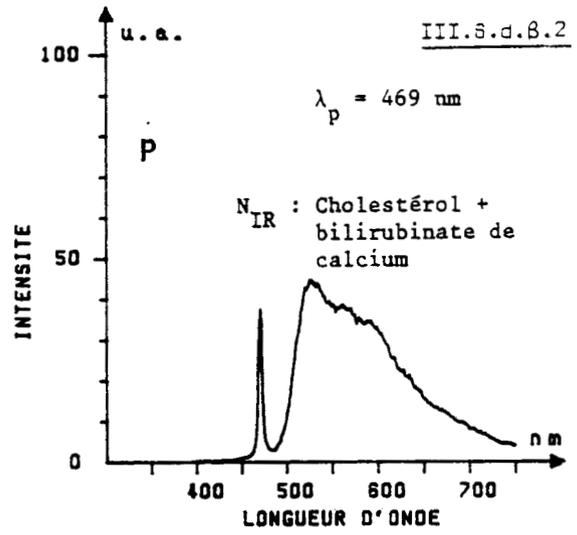
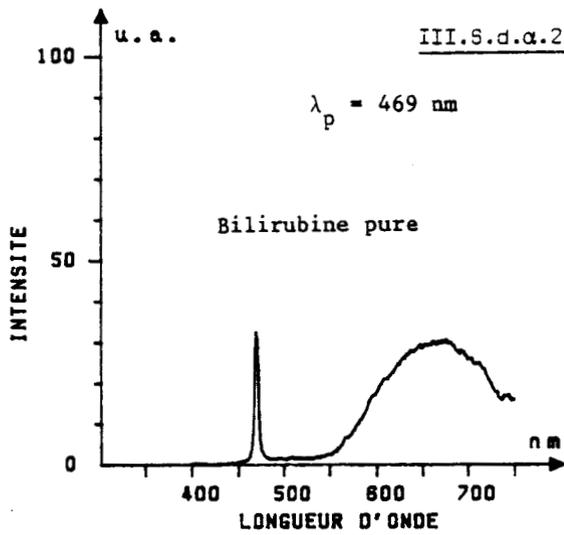
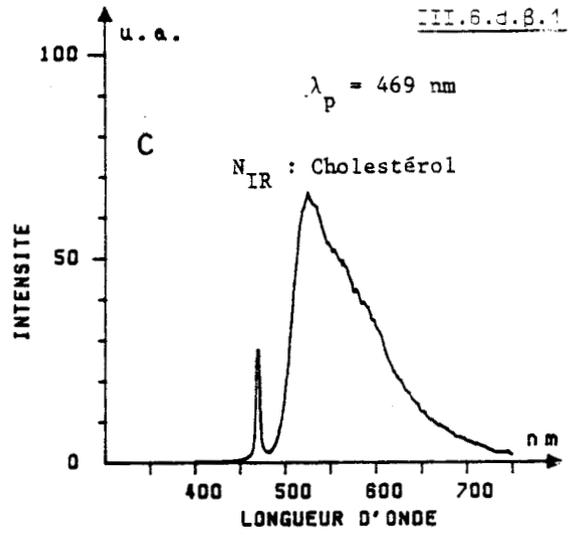
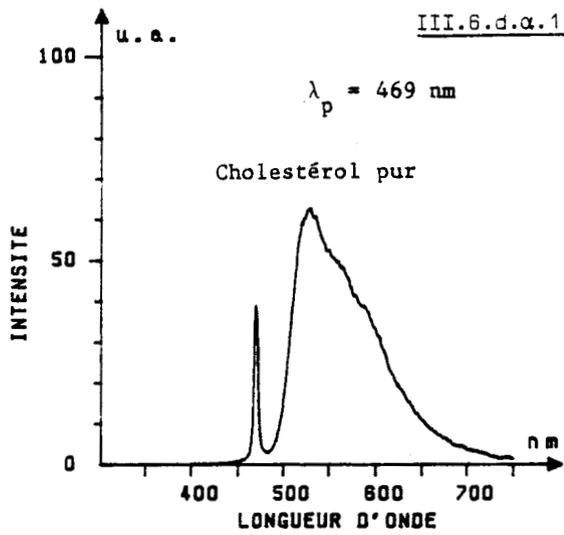
Bilirubinate de calcium pur :  
intensité du signal de fluorescence  
en limite de sensibilité du système  
de détection.



III.6.c.α

III.6.c.β

Figure III.6.c - Spectres de fluorescence excitée par la longueur d'onde  $\lambda_p = 423$  nm (spectres non corrigés de la réponse spectrale du montage)  
 III.6.c.α : spectres de constituants purs  
 III.6.c.β : spectres de calculs  
 $N_{IR}$  indique la composition chimique du calcul établie par spectrométrie infrarouge ;  
 C : calcul cholestérolique ;  
 P : calcul pigmenté.



III.6.d.alpha

III.6.d.beta

Figure III.6.d - Spectres de fluorescence excitée par la longueur d'onde  $\lambda_p = 467 \text{ nm}$  (spectres non corrigés de la réponse spectrale du montage)  
III.6.d.alpha : spectres de constituants purs  
III.6.d.beta : spectres de calculs  
 $N_{IR}$  indique la composition chimique du calcul établie par spectrométrie infrarouge ;  
C : calcul cholestérolique ;  
P : calcul pigmenté.

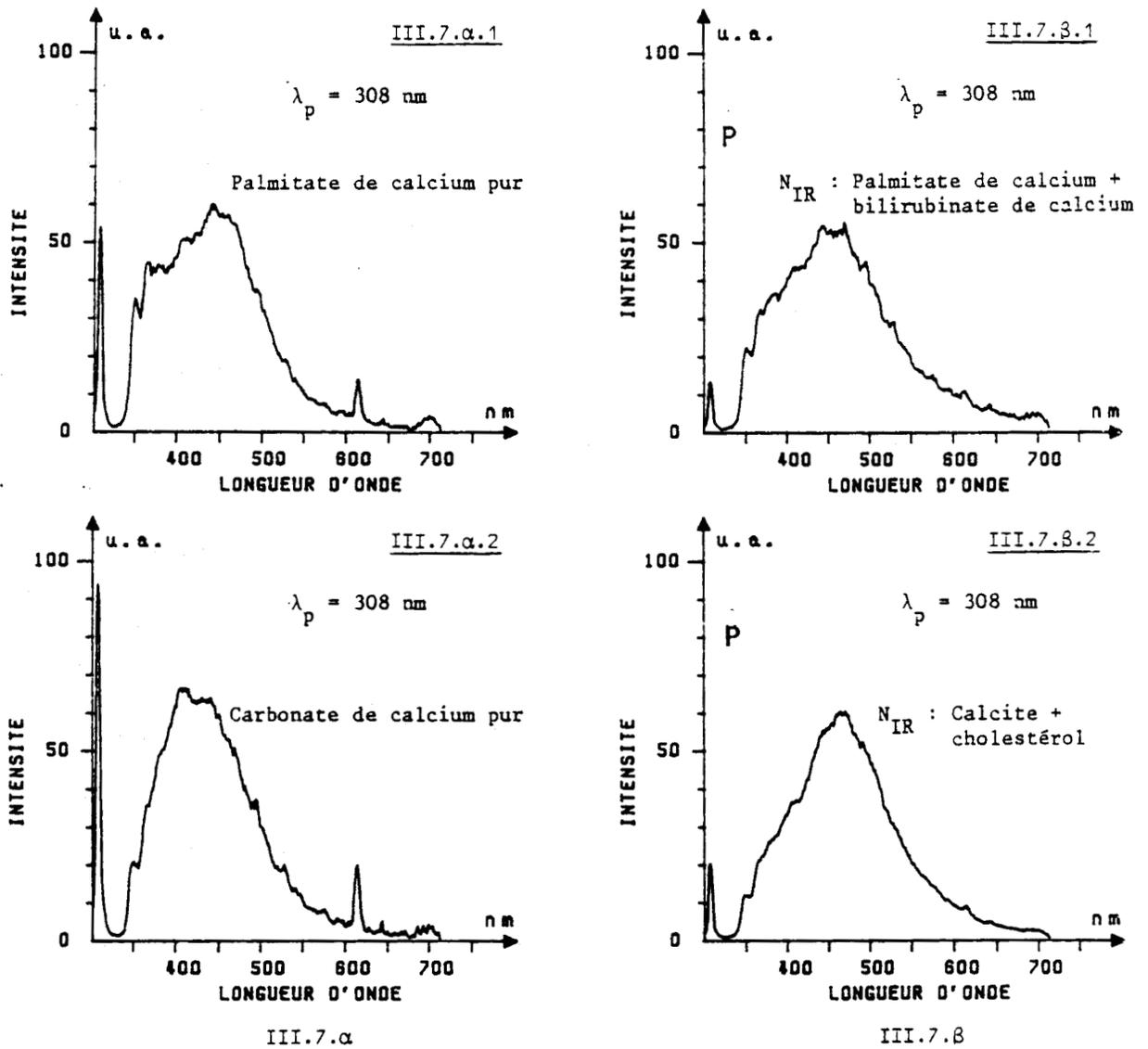


Figure III.7 - Spectres de fluorescence (excitée par la longueur d'onde  $\lambda_p = 308$  nm) de calculs appartenant à des catégories de lithiases de fréquence d'apparition faible (spectres non corrigés)

III.7.alpha : spectres de constituants purs

III.7.beta : spectres de calculs

N<sub>IR</sub> indique la composition chimique du calcul établie par spectrométrie infrarouge.

l'une de ces zones, le spectre enregistré est analogue à celui présenté sur la figure (III.6.b.β.3). Lorsque la fibre est placée en dehors de ces zones, le spectre détecté prend l'aspect du spectre (III.6.b.β.2). Nous avons réalisé ensuite l'analyse chimique de cette zone rouge prélevée sur le calcul. L'analyse par spectrométrie infrarouge a décelé une forte abondance de bilirubinate de calcium et des traces de cholestérol.

Avec des longueurs d'onde de pompe égale à  $\lambda_p = 423 \text{ nm}$  ou  $\lambda_p = 469 \text{ nm}$ , les intensités des spectres de fluorescence sont faibles. Leur maximum se situe vers 520 nm.

### III.3.1-3 Spectres de constituants purs

Les spectres des constituants purs les plus abondants (cholestérol, bilirubinate de calcium), enregistrés aux quatre longueurs d'onde excitatrices 308 nm, 337 nm, 423 nm et 469 nm, sont représentés sur les figures (III.6.α). Leurs aspects confirment qualitativement les différences observées dans les spectres des calculs en fonction de leur composition chimique. Il faut noter toutefois que l'utilisation d'un laser de pompe de longueur d'onde  $\lambda_p = 423 \text{ nm}$  ne permet pas d'établir de similarité entre le spectre de fluorescence du bilirubinate de calcium et celui d'un calcul pigmenté. En effet, dans les conditions de détection retenues pour nos expériences (moyenne sur 10 tirs), la sensibilité de la chaîne de détection s'est avérée insuffisante pour permettre d'effectuer des relevés significatifs des spectres de fluorescence de ce composé.

### III.3.1-4 Spectres de calculs prélevés dans des cas de lithiases présentant une fréquence d'apparition faible : calcul de palmitate et calcul de calcite.

Les spectres obtenus à partir de ces deux calculs sont rassemblés sur la figure (III.7), avec les spectres

correspondant des constituants purs\* ( $\lambda_p = 308 \text{ nm}$ ). Les deux spectres de calculs présentent un maximum d'intensité vers 450 nm, mais leurs répartitions spectrales semblent assez différentes. En effet, l'intensité du spectre de calcite (figure III.7.β.2) s'atténue plus rapidement vers les basses longueurs d'onde que le spectre du calcul de palmitate de calcium (figure III.7.β.1). Par ailleurs, les spectres présentent des différences sensibles dans la région spectrale 400 nm - 500 nm avec les spectres de la figure (III.6a) (calculs cholestéroliques ou pigmentés).

### III.3.1-5 Spectres de fluorescence corrigés de la réponse spectrale de la chaîne de mesure

Bien que les réponses spectrales représentées sur la figure (III.5) aient été établies de façon indirecte sans utiliser une lampe spectrale de luminance étalonnée, il semble utile de tenir compte de leur influence sur la forme des spectres obtenus. La répartition spectrale des spectres de fluorescence apparaîtra donc ainsi, en première approximation, indépendante des conditions expérimentales. Pour chaque spectre de fluorescence nous avons divisé l'intensité relative  $I(\lambda)$  par la réponse spectrale relative  $R_{\lambda_p}(\lambda)$  correspondant à la longueur d'onde d'excitation  $\lambda_p$ . Les spectres corrigés sont rassemblés sur les figures (III.8). Pour un calcul de type donné et pour une longueur d'onde de pompe fixée, la longueur d'onde à laquelle se produit le maximum de fluorescence, ainsi que l'aspect général des spectres, se trouvent modifiés par l'application de la correction.

---

\* Le carbonate de calcium utilisé dans notre expérience se présentait sous une forme hydratée.

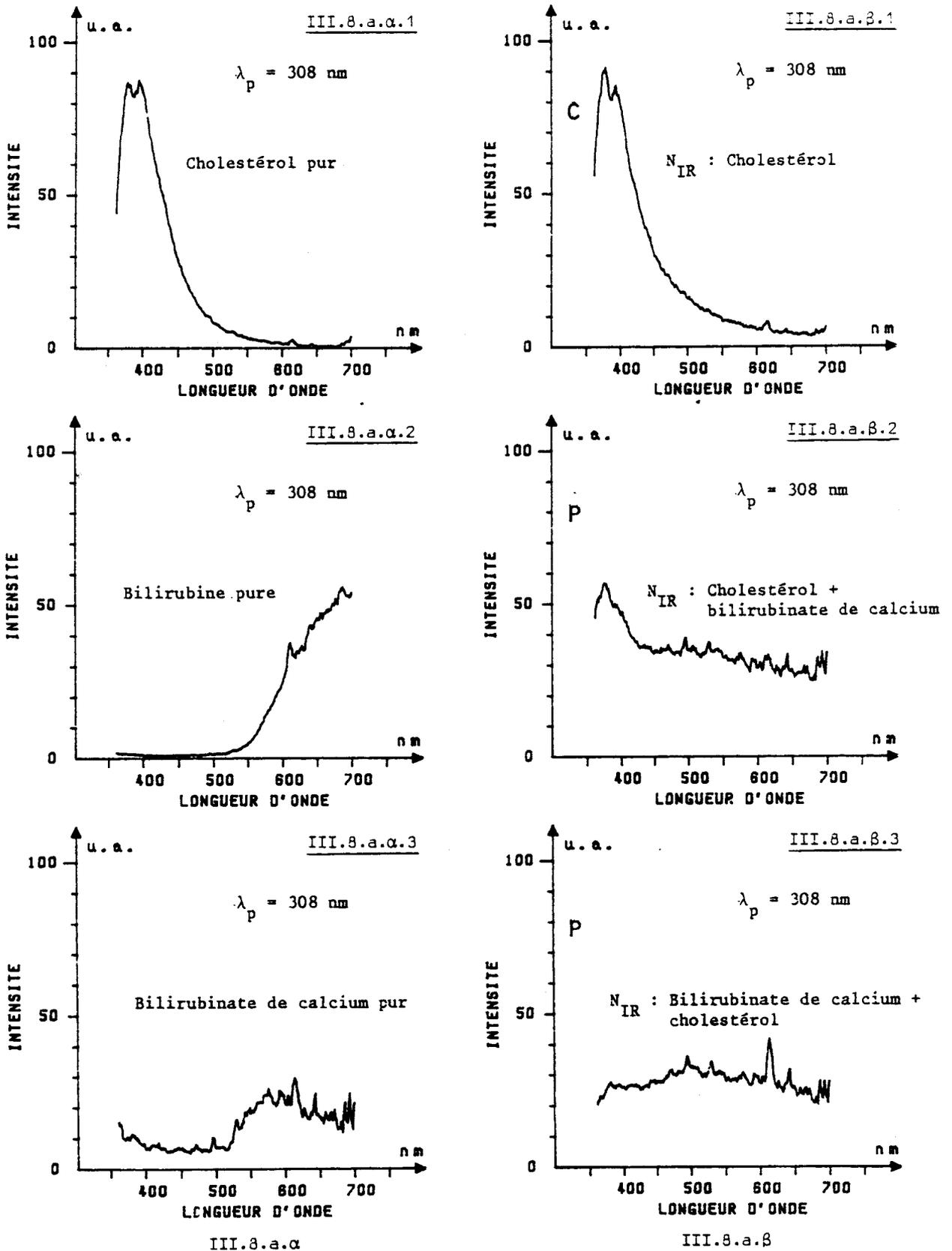


Figure III.8.a - Spectres de fluorescence excitée par la longueur d'onde  $\lambda_p = 308$  nm, corrigés de la réponse spectrale de la chaîne de mesure  
 III.8.a.α : spectres de constituants purs  
 III.8.a.β : spectres de calculs  
 $N_{IR}$  indique la composition chimique du calcul établie par spectrométrie infrarouge ;  
 C : calcul cholestérolique ;  
 P : calcul pigmenté.

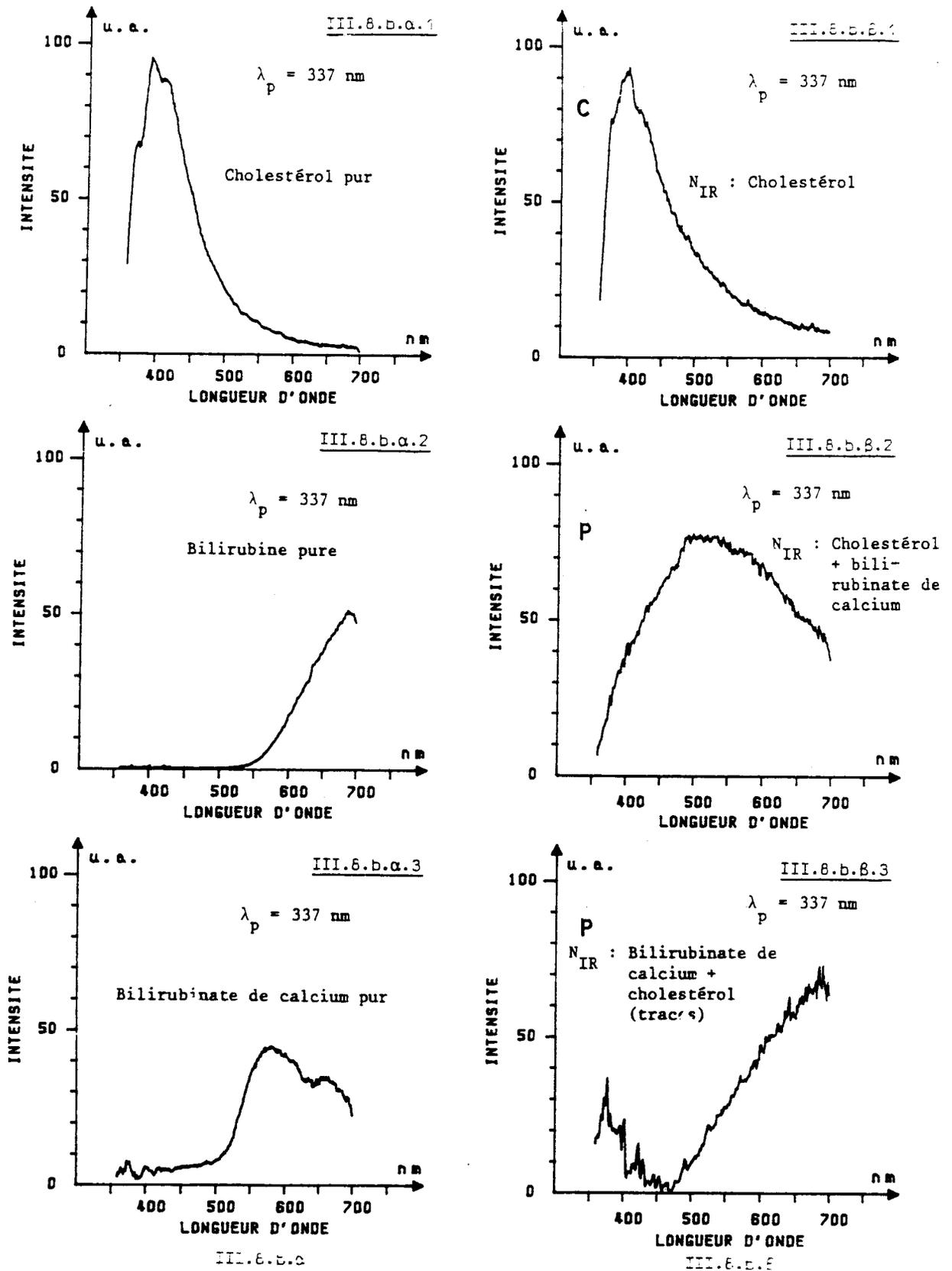
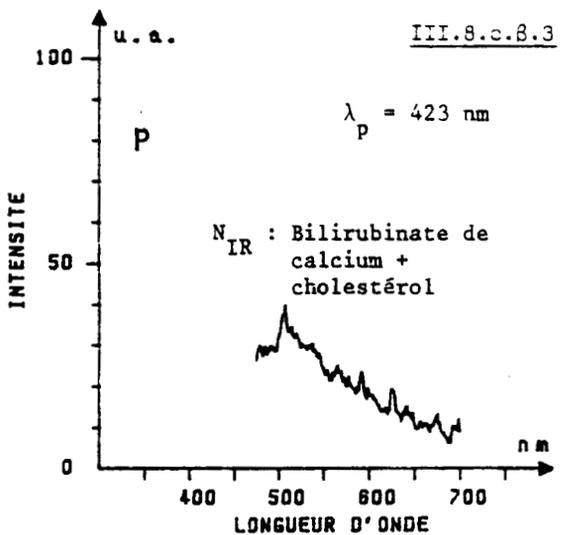
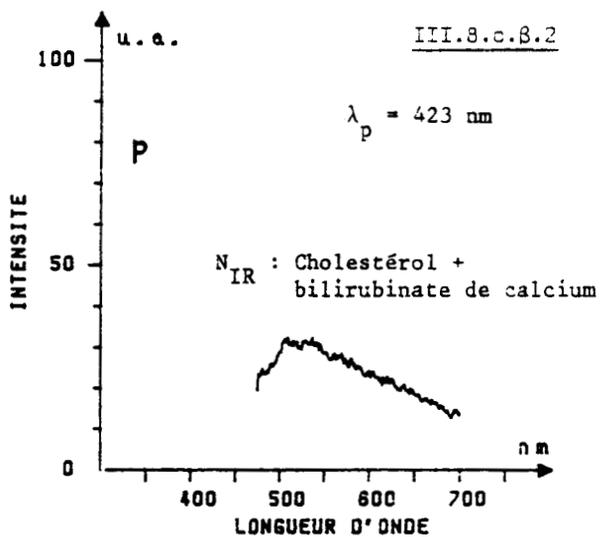
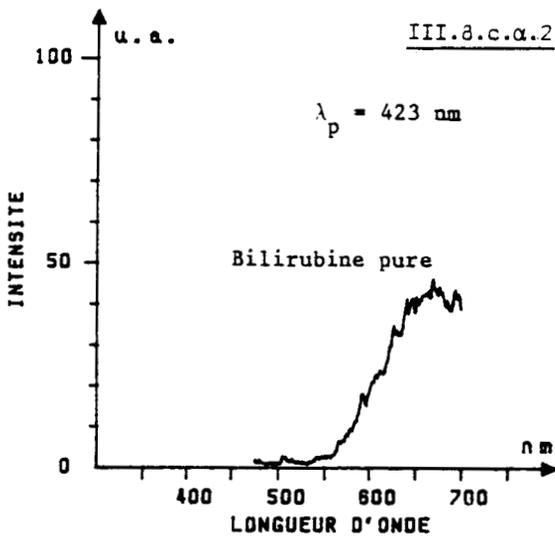
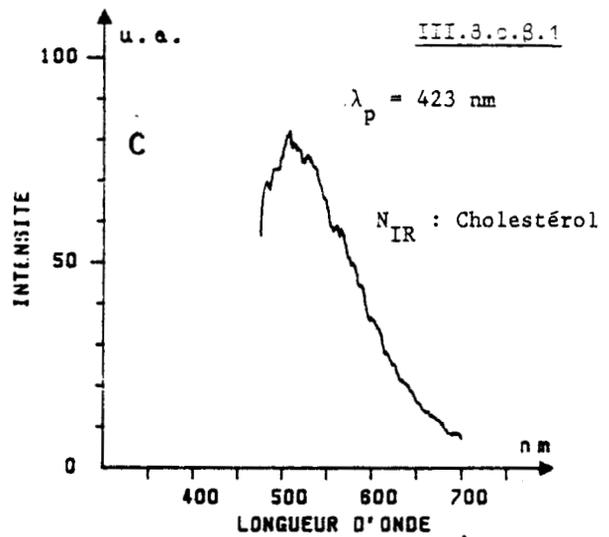
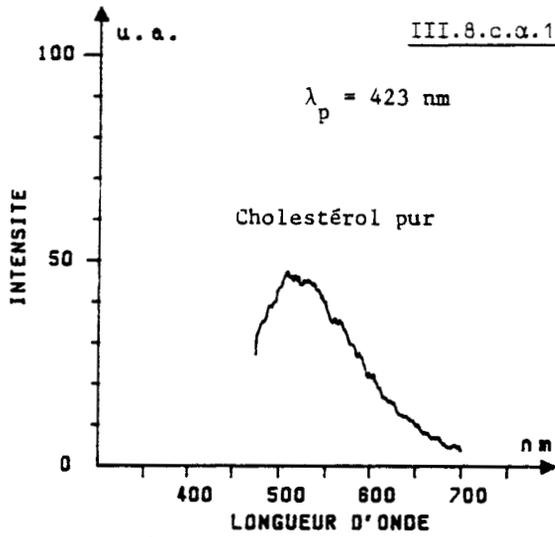


Figure III.8.b - Spectres de fluorescence excitée par la longueur d'onde  $\lambda_p = 337$  nm, corrigés de la réponse spectrale  
 III.8.b.α : spectres de constituants purs  
 III.8.b.β : spectres de calculs  
 N<sub>IR</sub> indique la composition chimique du calcul établie par spectrométrie infrarouge ;  
 C : calcul cholestérolique ;  
 P : calcul pigmenté.



III.8.c.alpha

III.8.c.beta

Figure III.8.c - Spectres de fluorescence excitée par la longueur d'onde  $\lambda_D = 423 \text{ nm}$ , corrigés de la réponse spectrale  
III.8.c.alpha : spectres de constituants purs  
III.8.c.beta : spectres de calculs  
N<sub>IR</sub> indique la composition chimique du calcul établie par spectrométrie infrarouge ;  
C : calcul cholestérolique ;  
P : calcul pigmenté.

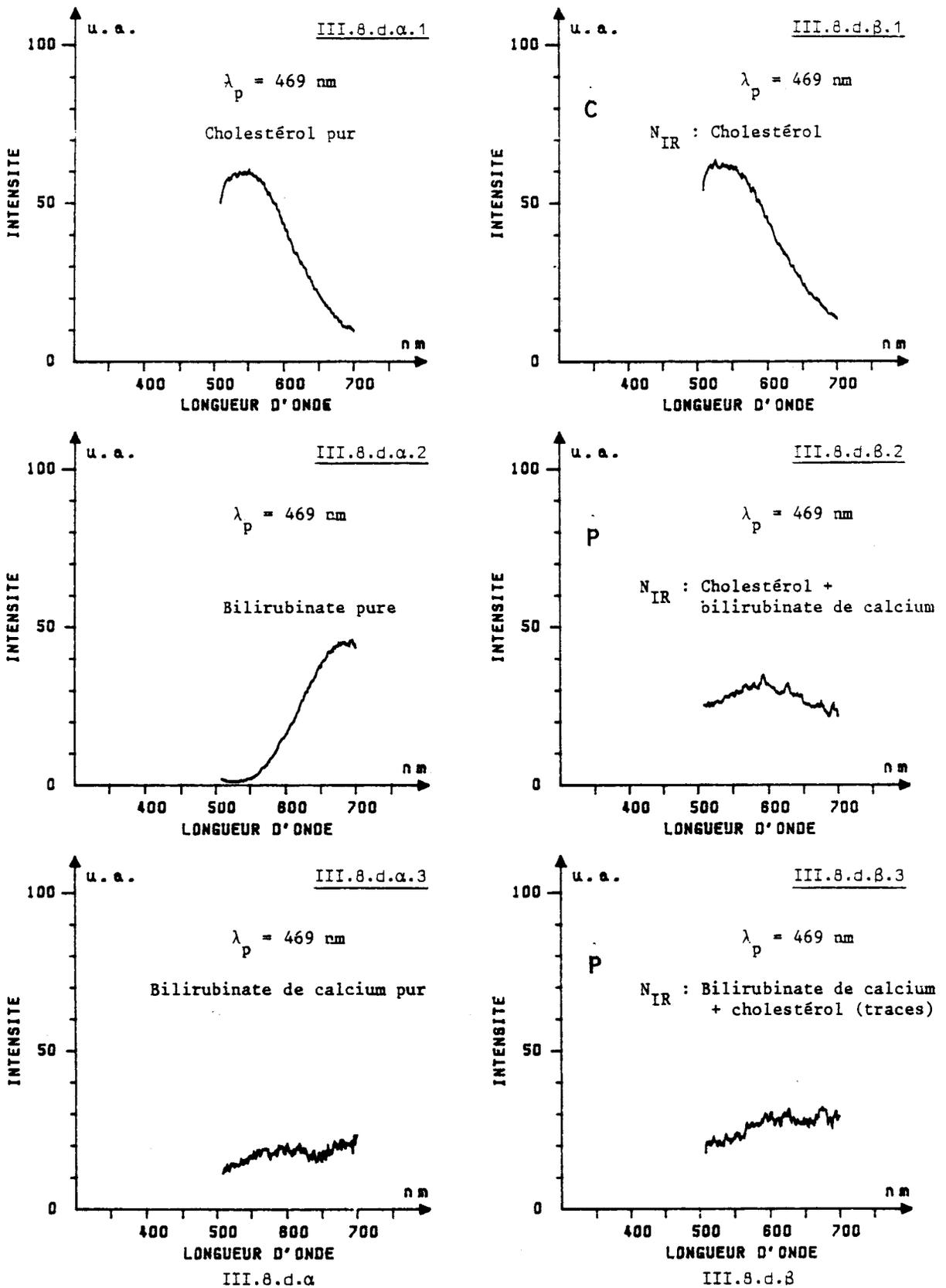
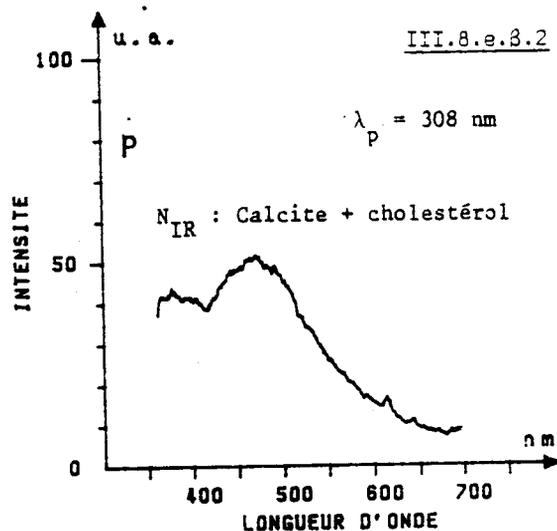
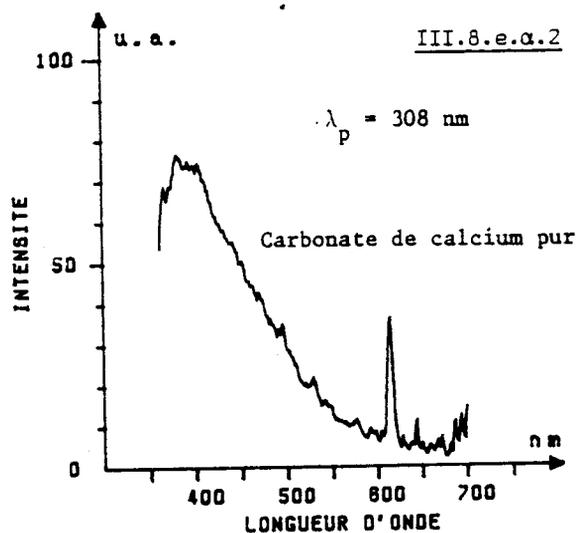
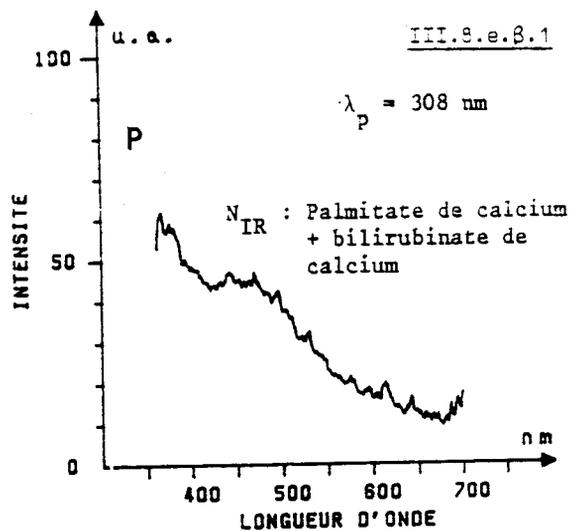
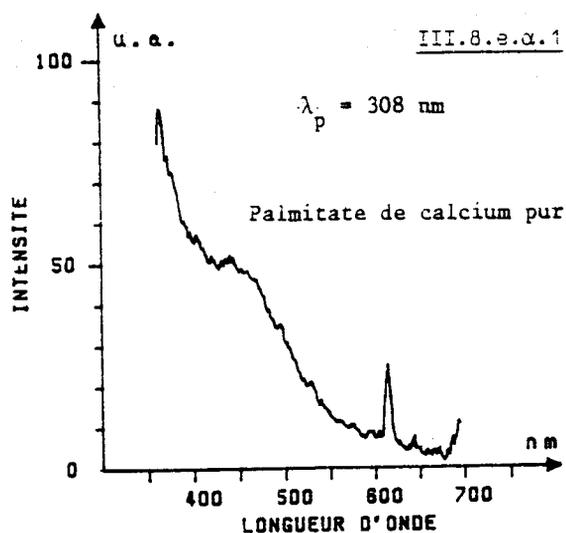


Figure III.8.d - Spectres de fluorescence excitée par la longueur d'onde  $\lambda_p = 469$  nm, corrigés de la réponse spectrale.  
 III.8.d.alpha : spectres de constituants purs  
 III.8.d.beta : spectres de calculs  
 N<sub>IR</sub> indique la composition chimique du calcul établie par spectrométrie infrarouge ;  
 C : calcul cholestérolique ;  
 P : calcul pigmenté.



III.8.e.alpha

III.8.e.beta

Figure III.8.e - Spectres de fluorescence (excitée par la longueur d'onde  $\lambda_D = 308 \text{ nm}$ ) de calculs appartenant à des catégories de lithiases de fréquence d'apparition faible. Spectres corrigés de la réponse spectrale.  
 III.8.e.alpha : spectres de constituants purs  
 III.8.e.beta : spectres de calculs  
 $N_{IR}$  indique la composition chimique du calcul établie par spectrométrie infrarouge.

### III.3.2 - Détermination d'un critère quantitatif permettant le classement des calculs dans la catégorie pigmentée ou cholestérolique

Les spectres présentés sur les figures (III.6) et (III.8) présentent un aspect très différent selon la nature chimique du calcul. Ces différences peuvent s'apprécier visuellement, ou de façon plus rigoureuse, par un traitement mathématique corrélant l'information recueillie sur chaque pixel de la barette de détecteurs à la concentration de chacun des constituants du calcul [21]. Cependant il apparaît important, d'un point de vue pratique et économique, de réduire la complexité et le coût du montage expérimental utilisé pour procéder aux enregistrements des figures (III.6) et (III.8).

Nous décrivons dans ce paragraphe une méthode quantitative simple de comparaison des spectres à partir de laquelle nous pouvons classer les calculs dans la catégorie pigmentée ou cholestérolique. Cette méthode peut être mise en oeuvre avec un montage expérimental peu coûteux.

Pour une longueur d'onde de pompe  $\lambda_p$ , nous mesurons les intensités  $I(\lambda_1)$  et  $I(\lambda_2)$  des signaux de fluorescence émis par chaque échantillon à deux longueurs d'onde  $\lambda_1$  et  $\lambda_2$  fixées. Les valeurs de  $\lambda_1$  et  $\lambda_2$  correspondent à des longueurs d'onde choisies respectivement au voisinage du maximum de fluorescence du bilirubinate de calcium pur et au voisinage du maximum de fluorescence de la bilirubine pure. A ces longueurs d'onde, l'intensité de la fluorescence du cholestérol pur est très faible. Les intensités  $I(\lambda)$  sont exprimées en unités arbitraires, aussi avons-nous choisi de les normaliser en référence à l'intensité  $I_{(\lambda_{max})}$  mesurée à la longueur  $\lambda_{max}$  pour laquelle le cholestérol pur présente un maximum de fluorescence. Pour chaque longueur d'onde de pompe  $\lambda_p$ , nous avons déterminé les valeurs de  $\lambda_1$ ,  $\lambda_2$ , et

$\lambda_{\max}$  à partir des spectres des figures (III.6) et (III.8). Notons que ces valeurs peuvent être différentes (à  $\lambda_p$  fixé), selon que nous considérons les courbes corrigées ou non de la réponse spectrale de la chaîne de mesure.

Nous avons ainsi formé les deux rapports  $Q_1 = \frac{I_{\lambda_{\max}}}{I(\lambda_1)}$  et  $Q_2 = \frac{I_{\lambda_{\max}}}{I(\lambda_2)}$ , pour tous les échantillons étudiés et pour les quatre longueurs d'onde excitatrices.

Nous avons rassemblé dans les tableaux (III.2.a) et (III.2.b) les valeurs moyennes des paramètres  $Q_i$  ( $i=1,2$ ), leurs écarts quadratiques moyens, les intervalles de confiance de leurs valeurs moyennes ainsi que leurs domaines de mesure. Les données ont été calculées à partir des spectres de fluorescence des vingt calculs retenus dans l'étude statistique. Les valeurs reportées dans le tableau (III.2.a) sont relatives aux spectres non corrigés de la réponse spectrale de la chaîne de mesure, alors que nous avons tenu compte de cette correction pour déterminer les valeurs numériques figurant dans le tableau (III.2.b). Les intervalles de confiance des valeurs moyennes correspondent à une probabilité de 95%. Ils ont été déterminés à partir des valeurs des écart-types en utilisant la méthode de Student [19] appliquée sur les onze échantillons cholestéroliques et les neuf échantillons pigmentés. Nous avons reporté sur la figure (III.9) une représentation graphique des intervalles de confiance des valeurs moyennes des paramètres  $Q_i$  calculées aux quatre longueurs d'onde de pompe (les figures III.9.a et III.9.b correspondent respectivement aux spectres non corrigés et corrigés de la réponse de la chaîne de mesure). L'examen de la figure (III.9) révèle que ces intervalles sont disjoints pour les longueurs d'onde de pompe ultravioletes ( $\lambda_p = 308 \text{ nm}$ ,  $\lambda_p = 337 \text{ nm}$ ). Les différences observées entre les valeurs moyennes des paramètres  $Q_i$  sont donc statistiquement significatives. Pour les longueurs d'onde de pompe visible retenues dans notre étude, les dif-

$\lambda_p = 308 \text{ nm}$	Calculs cholestéroliques				Calculs pigmentés			
	Moyenne	Ecart-type	Intervalle de confiance à 95%	Extrema min. max.	Moyenne	Ecart-type	Intervalle de confiance à 95%	Extrema min. max.
$Q_1 = \frac{I_{425}}{I_{525}}$	3,41	1,16	2,55 - 4,26	2,13 - 4,09	1,10	0,159	0,97 - 1,23	0,78 - 1,25
$Q_2 = \frac{I_{425}}{I_{580}}$	6,65	2,23	5 - 8,29	3,69 - 10,35	1,90	0,334	1,62 - 2,17	1,39 - 2,42

$\lambda_p = 337 \text{ nm}$	Calculs cholestéroliques				Calculs pigmentés			
	Moyenne	Ecart-type	Intervalle de confiance à 95%	Extrema min. max.	Moyenne	Ecart-type	Intervalle de confiance à 95%	Extrema min. max.
$Q_1 = \frac{I_{425}}{I_{550}}$	4,7	1,8	3,37 - 6,03	2,1 - 6,7	1,6	0,7	1,03 - 2,17	0,67 - 3,1
$Q_2 = \frac{I_{425}}{I_{650}}$	13,4	5,7	9,19 - 17,6	5,5 - 23,6	2,5	1,6	1,19 - 3,81	0,62 - 6,7

$\lambda_p = 423 \text{ nm}$	Calculs cholestéroliques				Calculs pigmentés			
	Moyenne	Ecart-type	Intervalle de confiance à 95%	Extrema min. max.	Moyenne	Ecart-type	Intervalle de confiance à 95%	Extrema min. max.
$Q_1 = \frac{I_{510}}{I_{575}}$	2,02	0,22	1,86 - 2,18	1,56 - 2,46	1,87	0,28	1,69 - 2,05	1,43 - 2,31
$Q_2 = \frac{I_{510}}{I_{650}}$	6,38	1,96	4,93 - 7,83	3,30 - 9,85	4,06	0,96	3,28 - 4,84	2,65 - 5,81

$\lambda_p = 469 \text{ nm}$	Calculs cholestéroliques				Calculs pigmentés			
	Moyenne	Ecart-type	Intervalle de confiance à 95%	Extrema min. max.	Moyenne	Ecart-type	Intervalle de confiance à 95%	Extrema min. max.
$Q_1 = \frac{I_{525}}{I_{600}}$	1,64	0,21	1,48 - 1,8	1,31 - 1,87	1,19	0,13	1,08 - 1,29	1,05 - 1,46
$Q_2 = \frac{I_{525}}{I_{700}}$	9,63	3,59	6,97 - 12,29	3,84 - 14,35	3,27	1,07	2,40 - 4,14	1,93 - 5,43

Tableau III.2a - Valeurs moyennes, écarts quadratiques et intervalles de confiance des moyennes (à 95%) des paramètres  $Q_1$  et  $Q_2$  calculés à partir des spectres de fluorescence des vingt échantillons étudiés (spectres non corrigés de la réponse spectrale de la chaîne de mesure).

$\lambda_p = 308 \text{ nm}$	Calculs cholestéroliques				Calculs pigmentés			
	Moyenne	Ecart-type	Intervalle de confiance à 95%	Extrema min. max.	Moyenne	Ecart-type	Intervalle de confiance à 95%	Extrema min. max.
$Q_1 = \frac{I_{390}}{I_{500}}$	1,97	1,11	1,15 - 2,79	1,06 - 3,99	0,46	0,11	0,37 - 0,55	0,28 - 0,56
$Q_2 = \frac{I_{390}}{I_{650}}$	33,45	11,48	24,96 - 41,93	15,88 - 48,77	4,54	1,24	3,52 - 5,55	3,32 - 6,52

$\lambda_p = 337 \text{ nm}$	Calculs cholestéroliques				Calculs pigmentés			
	Moyenne	Ecart-type	Intervalle de confiance à 95%	Extrema min. max.	Moyenne	Ecart-type	Intervalle de confiance à 95%	Extrema min. max.
$Q_1 = \frac{I_{390}}{I_{580}}$	4,63	2,05	3,11 - 6,14	1,22 - 7,33	0,92	0,35	0,63 - 1,20	0,48 - 1,51
$Q_2 = \frac{I_{390}}{I_{675}}$	6,12	3,80	3,31 - 8,92	1,57 - 13,55	0,81	0,38	0,50 - 1,12	0,30 - 1,71

$\lambda_p = 423 \text{ nm}$	Calculs cholestéroliques				Calculs pigmentés			
	Moyenne	Ecart-type	Intervalle de confiance à 95%	Extrema min. max.	Moyenne	Ecart-type	Intervalle de confiance à 95%	Extrema min. max.
$Q_1 = \frac{I_{510}}{I_{510}}$	1,78	0,25	1,59 - 1,96	1,28 - 2,20	1,56	0,25	1,35 - 1,76	1,15 - 2,06
$Q_2 = \frac{I_{510}}{I_{675}}$	4,17	1,57	3,01 - 5,32	1,92 - 6,88	2,13	0,41	1,79 - 2,46	1,62 - 2,72

$\lambda_p = 469 \text{ nm}$	Calculs cholestéroliques				Calculs pigmentés			
	Moyenne	Ecart-type	Intervalle de confiance à 95%	Extrema min. max.	Moyenne	Ecart-type	Intervalle de confiance à 95%	Extrema min. max.
$Q_1 = \frac{I_{540}}{I_{600}}$	1,20	0,13	1,09 - 1,30	0,98 - 1,35	0,92	0,09	0,84 - 0,99	0,80 - 1,15
$Q_2 = \frac{I_{540}}{I_{690}}$	3,26	1,15	2,41 - 4,10	1,32 - 4,86	1,21	0,33	0,94 - 1,48	0,7 - 1,82

Tableau III.2b - Valeurs moyennes, écarts quadratiques et intervalles de confiance des moyennes (à 95%) des paramètres  $Q_1$  et  $Q_2$  calculés à partir des spectres de fluorescence des vingt échantillons étudiés (spectres corrigés de la réponse spectrale de la chaîne de mesure).

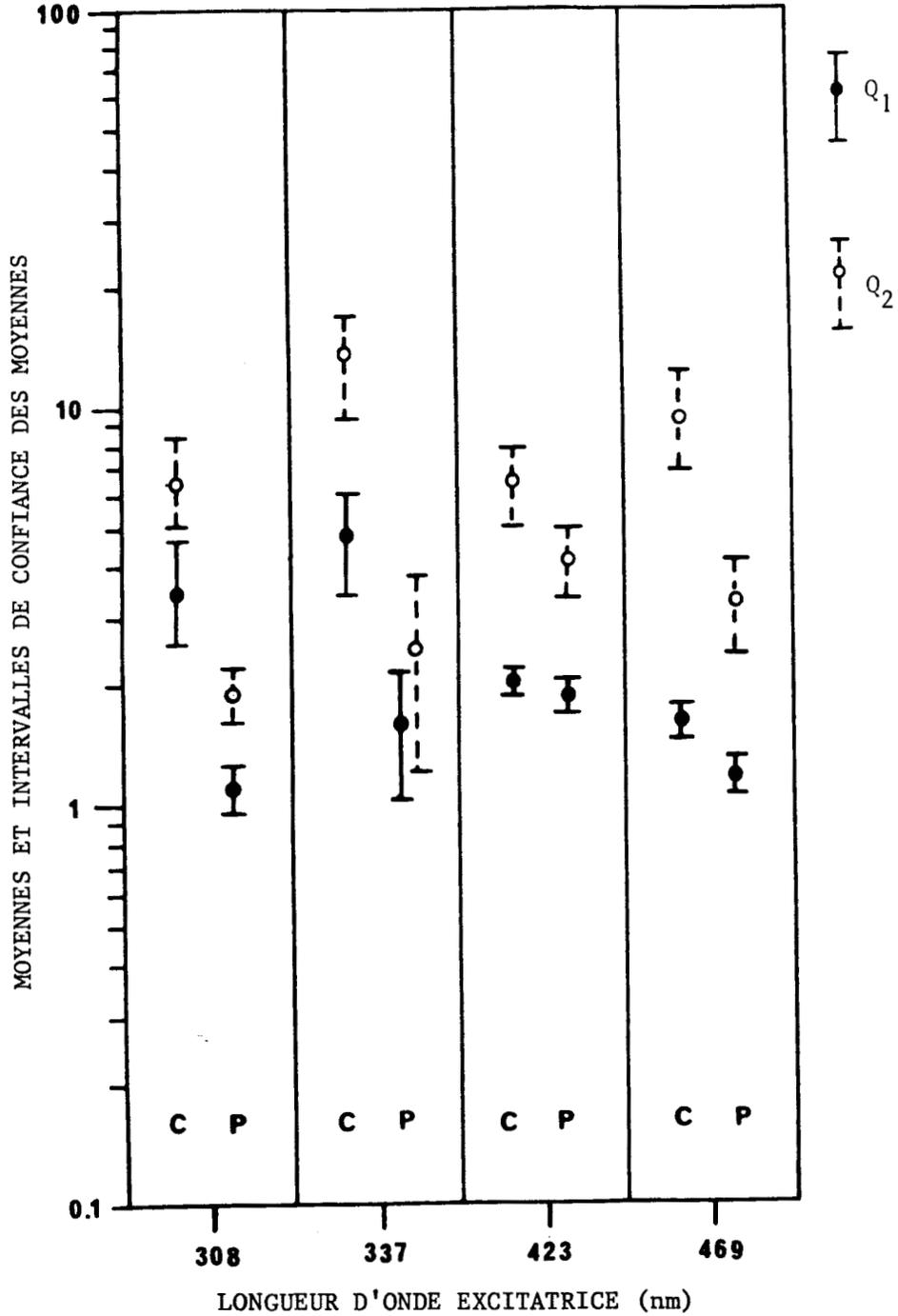


Figure III.9.a - Valeurs des moyennes et intervalles de confiance des moyennes (à 95%) des paramètres  $Q_1$  et  $Q_2$  déterminés aux quatre longueurs d'onde laser, à partir des spectres d'onde laser non corrigés de la réponse spectrale de la chaîne de mesure.

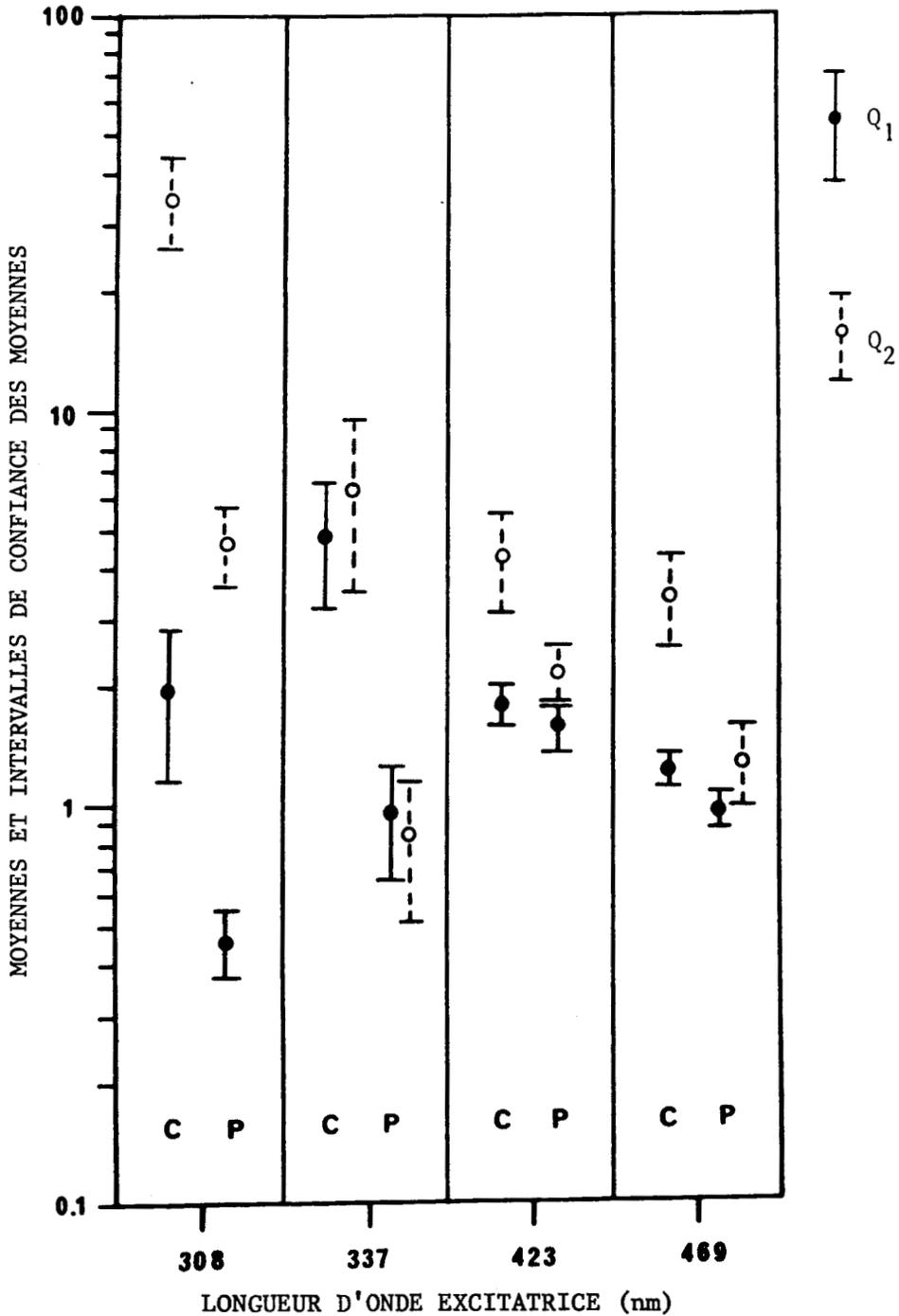


Figure III.9.b - Valeurs des moyennes et intervalles de confiance (à 95%) des moyennes des paramètres  $Q_1$  et  $Q_2$  déterminés aux quatre longueurs d'onde laser à partir des spectres corrigés de la réponse spectrale de la chaîne de mesure.

férences entre les paramètres  $Q_i$  des deux catégories de calculs présentent des ordres de grandeur comparables avec les écart-types correspondants. Cet effet de recouvrement est particulièrement marqué à la longueur d'onde excitatrice  $\lambda_p = 423$  nm, pour laquelle les intervalles de confiance des valeurs moyennes des paramètres  $Q_2$  ne sont pas disjoints. Il ne semble donc pas judicieux d'établir un critère de classification des calculs à partir de l'examen des spectres de fluorescence excitée par les radiations visibles.

Les résultats précédents peuvent être utilisés pour estimer la probabilité\* P pour qu'un calcul appartienne à la catégorie cholestérolique. A cet effet nous supposons tout d'abord que le calcul est issu d'une population ne comportant que des calculs cholestéroliques ou des calculs pigmentés dont le composant majoritaire est constitué par du bilirubinate de calcium. Nous déterminons les valeurs des paramètres  $Q_1$  et  $Q_2$  à partir du spectre de fluorescence du calcul. Pour calculer P à partir des valeurs de  $Q_1$  et de  $Q_2$ , nous formulons deux hypothèses supplémentaires :

(i) parmi une distribution aléatoire de 100 calculs issus de la population considérée, 55 correspondent à des calculs cholestéroliques, et 45 à des calculs pigmentés. Ces chiffres sont obtenus à partir d'une étude épidémiologique réalisée dans le nord de la France [13]. Ils peuvent être modifiés pour tenir compte des particularités épidémiolo-

---

\* Nous convenons d'appeler P la probabilité que le calcul soit cholestérolique et  $1-P$  celle qu'il soit pigmenté.

giques typiques à chaque pays\*. Nous convenons de noter  $P(c)$  ( $=0,55$ ) la probabilité à priori pour qu'un calcul soit cholestérolique (respectivement  $P(p)$  celle qu'il soit à priori pigmenté ( $=0,45$ )).

(ii) nous supposons également que les paramètres  $Q_1$  et  $Q_2$  sont décorrélés, et qu'ils sont distribués selon une loi de Gauss à deux variables de valeurs moyennes  $\overline{Q_{1i}}$  et  $\overline{Q_{2i}}$ , de variances  $\sigma_{1i}^2$  et  $\sigma_{2i}^2$  ( $i = c$  ou  $p$  selon que l'on considère respectivement des calculs cholestéroliques ou des calculs pigmentés). La densité de probabilité pour qu'une mesure réalisée sur un calcul de nature connue (cholestérolique ou pigmenté) conduise à des valeurs  $Q_1$  et  $Q_2$  est notée  $P_{i(i=c,p)}(Q_1, Q_2)$  et s'exprime :

$$(III.2.a) P_c(Q_1, Q_2) = \frac{1}{2\pi} \times \frac{1}{\sigma_{1c} \cdot \sigma_{2c}} \exp\left\{-\frac{(Q_1 - \overline{Q_{1c}})^2}{2 \cdot \sigma_{1c}^2}\right\} \cdot \exp\left\{-\frac{(Q_2 - \overline{Q_{2c}})^2}{2 \cdot \sigma_{2c}^2}\right\}$$

$$(III.2.b) P_p(Q_1, Q_2) = \frac{1}{2\pi} \times \frac{1}{\sigma_{1p} \cdot \sigma_{2p}} \exp\left\{-\frac{(Q_1 - \overline{Q_{1p}})^2}{2 \cdot \sigma_{1p}^2}\right\} \cdot \exp\left\{-\frac{(Q_2 - \overline{Q_{2p}})^2}{2 \cdot \sigma_{2p}^2}\right\}$$

En admettant la validité de nos hypothèses, nous pouvons, en appliquant le théorème de Bayes [20], estimer la probabilité  $P(Q_1, Q_2)$  pour que le calcul soit cholestérolique :

$$(III.3) P(Q_1, Q_2) = \frac{P(c) \times P_c(Q_1, Q_2)}{P(c) \times P_c(Q_1, Q_2) + P(p) \times P_p(Q_1, Q_2)}$$

---

\* Ainsi, aux U.S.A., il apparaît qu'environ 70% des lithiasés sont cholestéroliques et 30% sont pigmentées [12], alors que ces proportions peuvent atteindre en Orient 70% pour les calculs pigmentés contre 30% pour les calculs cholestéroliques [12].

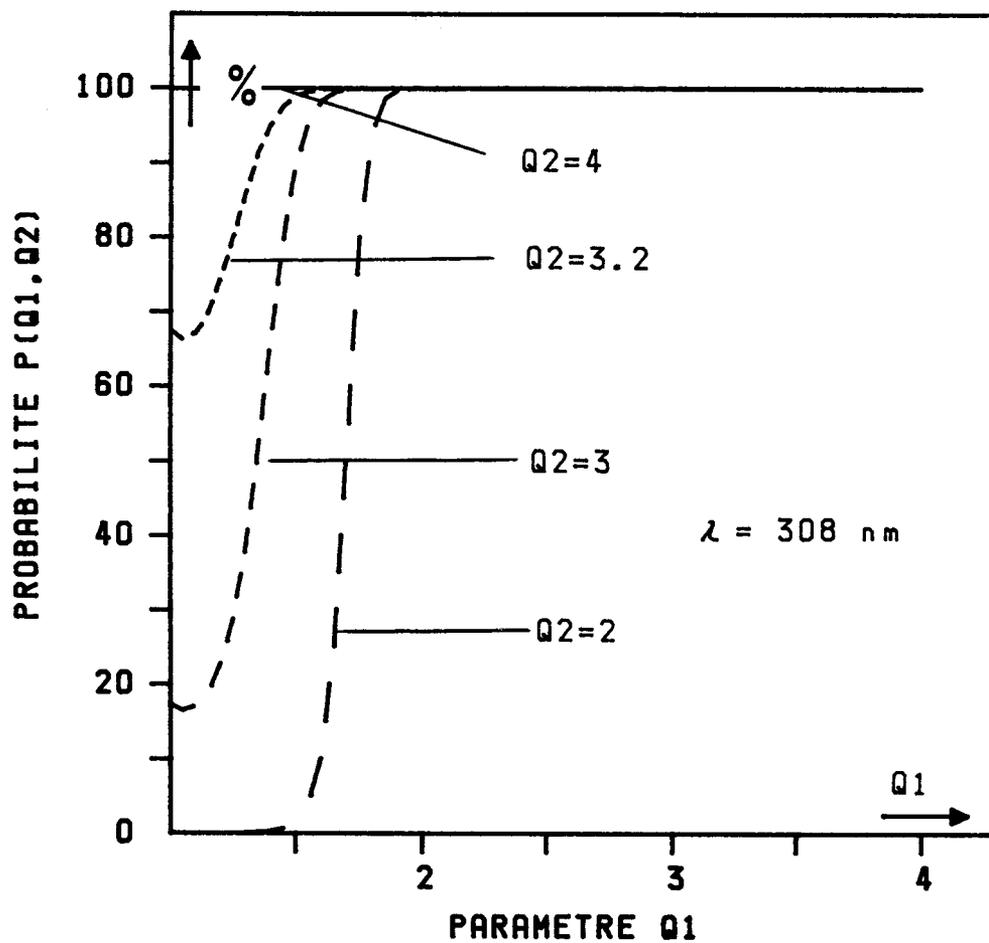


Figure III.10 - Evolution de la probabilité  $P(Q_1, Q_2)$  en fonction du paramètre  $Q_1$ , pour diverses valeurs du paramètre  $Q_2$ .

Les abaques représentant l'évolution de P en fonction de la variable  $Q_1$  (paramètre  $Q_2$ ), sont reportées sur la figure (III.10) ( $\lambda_p = 308$  nm). Ces courbes peuvent servir d'aide à la décision thérapeutique si les intensités de fluorescence sont mesurées aux longueurs d'onde  $\lambda_1$ ,  $\lambda_2$  et  $\lambda_{max}$ . Prenons l'exemple d'un calcul pour lequel les mesures des paramètres  $Q_1$  et  $Q_2$  conduisent aux valeurs respectives 3 et 6 pour  $\lambda_p = 308$  nm. De la figure (III.10) nous déduisons que la probabilité pour que le calcul soit à forte teneur en cholestérol est égale à environ 99%. Prenant en compte cet élément, le médecin traitant peut, selon la pathologie, prendre par exemple une décision de traitement médicamenteux. Si, par contre, nous obtenons des valeurs de  $Q_1$  et  $Q_2$  égales à 1 et 2, la probabilité pour que le calcul soit cholestérolique est alors égale à  $6 \cdot 10^{-4}$ . Dans ce cas, le traitement par dissolution n'est pas envisageable.

Bien que les calculs de palmitate de calcium et de calcite n'appartiennent pas à la population étudiée (composée de calculs cholestéroliques ou de calculs pigmentés de bilirubinate de calcium), il est intéressant d'introduire dans la relation (III.3) les valeurs des paramètres  $Q_1$  et  $Q_2$ , déduites des spectres de fluorescence. A la longueur d'onde excitatrice  $\lambda_p = 308$  nm, la probabilité P est égale à 0,22 pour le calcul de palmitate, et à  $6 \cdot 10^{-3}$  pour le calcul de calcite. Ce résultat traduit simplement l'observation selon laquelle les spectres de fluorescence associés à ces deux lithiases sont assez dissemblables du spectre caractéristique d'un calcul cholestérolique.

Si nous admettons que les spectres de fluorescence de calculs provenant de lithiases rares, absentes de notre échantillonnage de départ, sont eux aussi distincts du spectre caractéristique des calculs cholestéroliques, nous pouvons arbitrairement formuler un critère permettant de

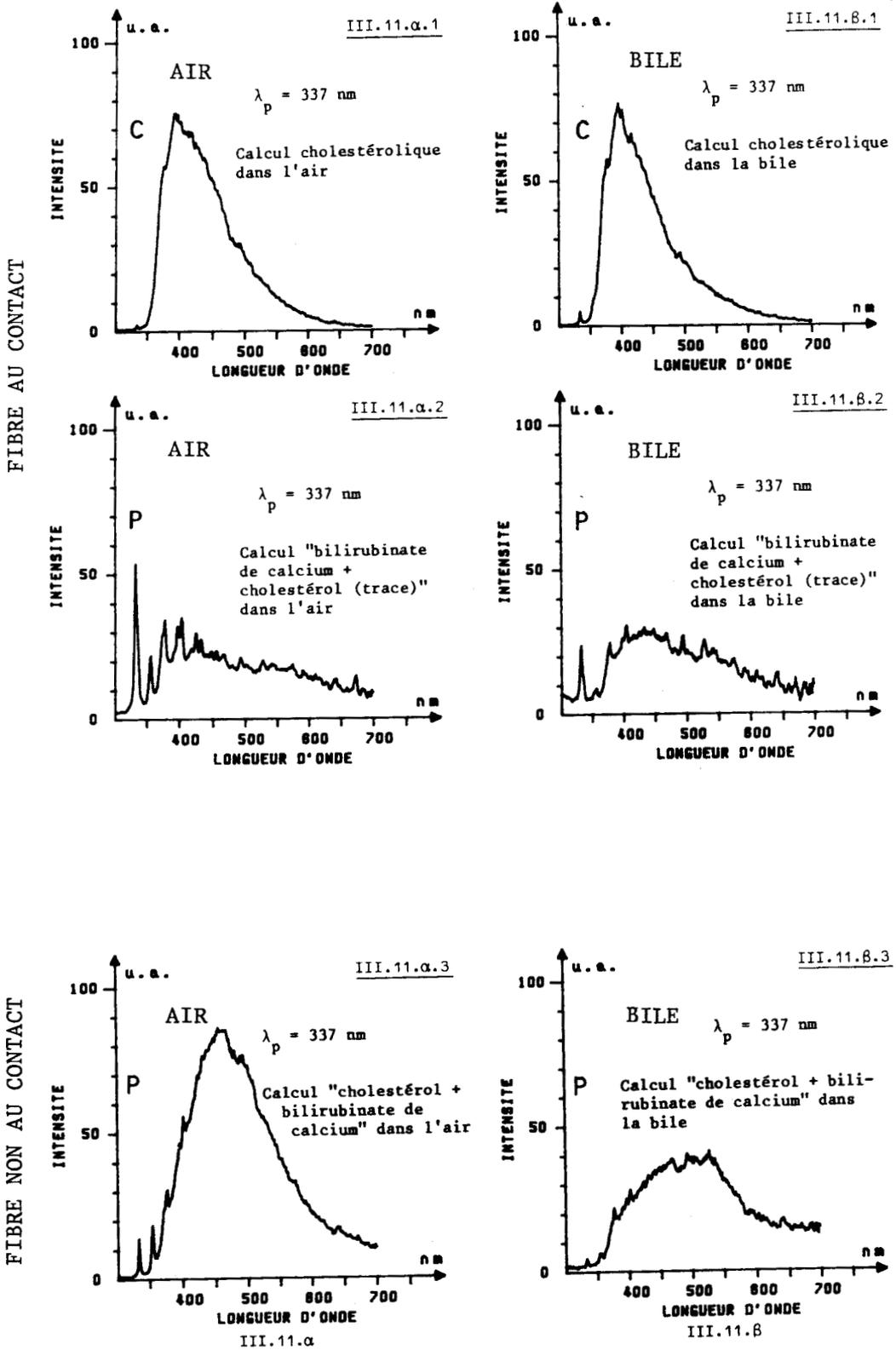


Figure III.11 - Spectres de fluorescence de calculs excitée par la longueur d'onde 337 nm  
III.11.α : les calculs sont placés à l'air libre ;  
III.11.β : les mêmes calculs sont placés dans la bile  
C : calcul cholestérolique ;  
P : calcul pigmenté.

classer un calcul d'origine inconnue dans la catégorie cholestérolique ou dans la catégorie pigmentée au sens le plus large du terme (c'est-à-dire renfermant toutes les lithiases autres que cholestéroliques [12]).

A la longueur d'onde excitatrice  $\lambda_p = 308$  nm, le calcul sera classé dans la catégorie cholestérolique si les valeurs des paramètres  $Q_1$  et  $Q_2$  vérifient simultanément les inégalités :

$$\begin{aligned} & 2,1 < Q_1 < 4 \\ \text{(III.4)} & & 3,6 < Q_2 < 10,4 \end{aligned}$$

### III.3.3 - Introduction de paramètres expérimentaux nouveaux à des fins d'application in-vivo.

Jusqu'à présent nous avons considéré des conditions expérimentales sensiblement éloignées de la réalité opératoire. Nous avons en effet effectué nos expériences sur des calculs placés à l'air libre. Il semble, à ce stade, intéressant d'estimer la sensibilité de la méthode lorsqu'elle est appliquée dans des conditions expérimentales plus proches de la réalité clinique. Nous avons donc procédé à des relevés de spectres de fluorescence de calculs immergés dans de la bile d'origine humaine. Les courbes présentées sur la figure (III.11) correspondent à six enregistrements de spectres de fluorescence excitée par le laser à azote ( $\lambda_p = 337$  nm). Les spectres de la figure (III.11. $\alpha$ ) ont été obtenus avec des calculs placés dans l'air, alors que ceux de la figure (III.11. $\beta$ ) ont été enregistrés avec ces mêmes calculs plongés dans la bile.

Deux conditions expérimentales ont été considérées :

(i) la fibre est placée au contact du calcul (figures (III.11.1) et (III.11.2)). Les figures (III.11. $\alpha$ .1) et

(III.11.β.1) correspondent aux spectres de fluorescence d'un calcul de type cholestérolique, alors que les figures (III.11.α.2) et (III.11.β.2) ont été obtenues à partir d'un calcul pigmenté. Dans les deux cas il apparaît que la présence du milieu extérieur ne modifie sensiblement pas les aspects des spectres de fluorescence ;

(ii) la fibre est placée à quelques millimètres du calcul (figures (III.11.3)). L'aspect du spectre de fluorescence du calcul plongé dans la bile (figure (III.11.β.3)) diffère notablement de celui enregistré avec ce même calcul placé à l'air libre (figure (III.11.α.3)). Dans ces conditions, le spectre enregistré n'est plus caractéristique du calcul, mais constitue plutôt une "signature" de la bile entourant le calcul.

Ces remarques devront être prises en compte dans un développement ultérieur de cette méthode d'analyse chimique.

#### III.4 - CONCLUSION

Notre étude montre que les spectres de fluorescence des calculs apparaissent suffisamment différents en fonction de leur composition chimique, pour permettre leur classification dans la catégorie cholestérolique ou pigmentée. Notre méthode de diagnostic permet une analyse locale de la constitution chimique du calcul avec une résolution spatiale fixée par les dimensions du diamètre de coeur de fibre. Bien que l'analyse spectrale porte sur la fluorescence des constituants de l'enveloppe du calcul, une corrélation nette a été mise en évidence entre la classification qui se déduit par cette méthode, et celle établie par analyse spectrométrique d'absorption infrarouge effectuée à partir d'échantillons prélevés dans la masse du calcul. Pour établir de

façon quantitative cette classification, nous avons mené une étude statistique portant sur les valeurs des paramètres  $Q_1$  et  $Q_2$  calculées à partir des spectres de fluorescence, excités par les quatre longueurs d'onde de pompe retenues dans les expériences. Bien que cette étude ait été réalisée sur un nombre restreint d'échantillons, il apparaît que les différences observées entre les paramètres  $Q_i$  ( $i=1,2$ ) des calculs pigmentés et cholestéroliques ne sont significatives qu'aux longueurs d'onde de pompe ultraviolettes. En admettant les hypothèses selon lesquelles les paramètres  $Q_1$  et  $Q_2$  sont d'une part décorrélés et d'autre part distribués selon une loi de Gauss à deux variables, nous avons pu, à partir des valeurs de  $Q_1$  et  $Q_2$ , exprimer la probabilité  $P$  pour qu'un calcul soit cholestérolique ou non. La possibilité d'établir la catégorie à laquelle appartient le calcul à partir des intensités spectrales mesurées à trois longueurs d'onde semble particulièrement attractive. En effet la chaîne de détection constituée par l'analyseur optique multicanal (appareillage relativement coûteux) peut être remplacé par un système moins onéreux de détection comportant trois filtres optiques passe-bandes centrés sur les longueurs d'onde  $\lambda_1$ ,  $\lambda_2$  et  $\lambda_{max}$ , placés devant trois détecteurs.

Cependant, avant d'envisager un développement ultérieur de la méthode, il est nécessaire de compléter notre travail par une étude statistique portant sur un plus grand nombre d'échantillons. Cette nouvelle étude pourrait permettre une analyse plus fine de la composition des calculs. Par exemple, nous n'avons pas été en mesure d'établir de corrélation entre les proportions relatives des constituants (cholestérol et bilirubinate de calcium) composant un même calcul, et les spectres de fluorescence. D'autre part, nous avons étudié deux échantillons appartenant à deux catégories de calculs pour lesquelles les fréquences relatives d'apparition se révèlent faibles. Les spectres de fluorescence de

ces calculs (figure III.7) apparaissent différents entre eux et différents des spectres des calculs cholestéroliques et pigmentés à base de bilirubinate de calcium. Cependant nous n'avons pu réaliser aucune étude statistique sur ces types de calcul, faute d'échantillons supplémentaires. Un plus grand nombre d'échantillons permettrait sans doute de préciser la présence de composants particuliers au sein d'un même calcul. Les essais réalisés dans un milieu extérieur différent de l'air, ici de la bile, se sont avérés positifs dans la mesure où les aspects des spectres de fluorescence se sont révélés peu affectés par la présence du milieu. Enfin, il est à noter que cette méthode pourrait être appliquée à d'autres matériaux biologiques, tels que la bile ou les calculs urinaires.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES DU CHAPITRE III

- [1] J.T. FERRUCCI  
Biliary lithotripsy : What will the issue be ?  
Am. J. of Rad., vol. 149, pp. 227-231, 1987.
- [2] N.S. NISHIOKA, P.C. LEVINS, S.C. MURRAY, J.A. PARRISH,  
R.R. ANDERSON  
Fragmentation of biliary calculi with tunable dye lasers  
Gastroenterology, vol. 93, pp. 250-255, 1987.
- [3] R. WROBEL, P. BERNAGE, P. NIAY, C. DESCAMPS,  
J.P. HUVENNE, B. LACROIX, J.M. BRUNETAUD, S. MORDON  
XeCl laser in biliary calculus fragmentation : fluence  
threshold and ablation products  
IEEE J. of Biomedical Engineering, vol. 36, n° 12,  
pp. 1202-1209, 1989.
- [4] M.J. ALLEN, T.J. BORODY, T.F. BUGLIOSI, G.R. MAY,  
N.F. LARUSSO, J.L. THISTLE  
Rapid dissolution of gallstones by methyl tert-butyl  
ether  
The New England Journal of Medicine, vol. 312, n° 4,  
pp. 217-220, 1985.
- [5] I. BAUCHIER  
Gallstone dissolving agents  
Br. Med. J., vol. 286, pp. 778-780, 1983.

- [6] R.M. GIRARD, G. LEGROS  
Retained and recurrent bile duct stones : surgical or nonsurgical removal ?  
Ann. Surg., vol. 193, pp. 150-154, 1981.
- [7] K. KUTZ, S.E. MIEDERER, G. PAUMGARTNER  
Chenodeoxycholic acid therapy of intrahepatic radiolucent gallstones in a patient with Caroli's syndrome  
Hepatogastroenterology, vol. 25, pp. 398-401, 1978.
- [8] E. VANSONNENBERG, A.F. HOFMANN, J. NEOPTOLEMUS,  
G.R. WITTICH, R.A. PRINCETHAL, S.W. WILSON  
Gallstone dissolution with methyl tert-butyl ether via percutaneous cholecystectomy : success and caveats  
Am. J. Rad., vol. 146, pp. 865-867, 1986.
- [9] B.W. TROTMAN, J.D. OSTROW, R.D. SOLOWAY  
Pigment vs cholesterol cholelithiasis : comparison of stone and bile composition  
Digestive Diseases, vol. 19, n° 7, pp. 585-590, 1974.
- [10] M.S. HICKMAN, W.H. SCHWESINGER, J.D. BOVA, W.E. KURTIN  
Computed tomographic analysis of gallstones  
Arch. Surg., vol. 121, pp. 289-291, 1986.
- [11] S.M. DOLGIN, J.D. SCHWARTEZ, H.Y. KRESSEL, R.D. SOLOWAY,  
W.T. MILLER, B.W. TROTMAN, A.S. SOLOWAY, L.J. GOOD  
Identification of patients with cholesterol or pigment gallstones by discriminant analysis of radiographic features  
The New England Journal of Medicine, vol. 304, n° 14, pp. 809-811, 1981
- [12] R.D. SOLOWAY, B.W. TROTMAN, J.D. OSTROW  
Pigment gallstones  
Gastroenterology, vol. 72, pp. 167-182, 1977

- [13] F. BROUCQSAULT  
Etude comparative de deux techniques d'analyse des lithiases : la méthode chimique et la spectrophotométrie infrarouge  
Thèse de Pharmacie, Lille II, 1984.
- [14] J.P. HENICHART, J.L. BERNIER, M. ROMAN, P. ROUSSEL  
Identification of calcium palmitate in gallstones by infrared spectroscopy  
Clinica Chimica Acta, vol. 118, pp. 279-287, 1982.
- [15] D. JUNE SUTER, L.I. WILKIE  
The crystalline salts of calcium bilirubinate in human gallstones  
Clinical Science and Molecular Medicine, vol. 53, pp. 101-103, 1977.
- [16] F.H. LONG, N.S. NISHIOKA, T.F. DEUTSCH  
Measurement of the optical and thermal properties of biliary calculi using pulsed photothermal radiometry  
Lasers in Surgery and Medicine, vol. 7, pp. 461-466, 1987.
- [17] P. NIAY, Travaux Pratiques "Eclairage", 1971.
- [18] P. FLEURY et J.P. MATHIEU  
Chaleur, Thermodynamique, Etats de la Matière  
Eyrolles éditeur, Paris, 1954.
- [19] J. VIALAR  
Calcul des probabilités et statistique  
Publication du Secrétariat d'Etat auprès du Ministre de l'Equipement, Août 1977.

- [20] Mc GEE  
Principes de statistiqueus  
Approche Bayesienne  
Ed. Vuibert, 1974
- [21] K.R. BEEBE, B.R. KOWALSKI  
An introduction to multivariate calibration and analysis  
Analytical Chemistry, vol. 59, n° 17, pp. 1007A-1017A,  
1987.

**LISTE DES FIGURES ET TABLEAUX DU CHAPITRE III**

Figure III.1 - Exemples de spectres caractéristiques d'absorption infrarouge correspondant à :

III.1.a - calcul pigmenté

III.1.b - calcul cholestérolique

Figure III.2 - Schéma du dispositif expérimental utilisé pour exciter et analyser la fluorescence des calculs biliaires induite par laser

Figure III.3 - Distribution temporelle de l'énergie atteignant le détecteur positionné en sortie de la fibre de départ ( $\lambda = 308 \text{ nm}$ )

Figure III.4 - Distribution temporelle des signaux atteignant le détecteur

Figure III.5 - Réponses spectrales des montages utilisés avec chaque source laser

Figure III.6 - Spectres de fluorescence, non corrigés de la réponse spectrale de la chaîne de mesures, de calculs biliaires, excitée pour les longueurs d'onde :

III.6.a -  $\lambda_p = 308 \text{ nm}$

III.6.b -  $\lambda_p = 337 \text{ nm}$

III.6.c -  $\lambda_p = 423 \text{ nm}$

III.6.d -  $\lambda_p = 469 \text{ nm}$

Figure III.7 - Spectres de fluorescence (excitée par  $\lambda_p = 308 \text{ nm}$ ), de calculs appartenant à des catégories de lithiases de fréquence d'apparition faible

Figure III.8 - Spectres de fluorescence corrigés de la réponse spectrale de la chaîne de mesures

Figure III.9 - Représentation graphique des valeurs des moyennes et intervalles de confiance (à 95%) des moyennes des paramètres  $Q_1$  et  $Q_2$  déterminés aux quatre longueurs d'onde laser

Figure III.10 - Evolution de la probabilité  $P(Q_1, Q_2)$  en fonction du paramètre  $Q_1$  pour diverses valeurs du paramètre  $Q_2$

Tableau III.1 - Caractéristiques d'émission des sources lasers et de la transmission spectrale des éléments optiques

Tableau III.2 - Valeurs moyennes et intervalles de confiance (à 95%) des moyennes des paramètres  $Q_1$  et  $Q_2$  déterminés aux quatre longueurs d'onde laser

**C O N C L U S I O N**



## C O N C L U S I O N

Dans ce mémoire, nous nous sommes placés du point de vue du physicien pour examiner l'adéquation du laser à XeCl à la lithotripsie des calculs biliaires par laser. Nous avons tout d'abord montré que la transmission d'impulsions ultraviolettes de forte fluence dans des fibres optiques pose des problèmes d'ordre pratique non encore complètement résolus. En effet, la fracture optique survenant sur la face d'entrée de la fibre limite l'énergie par impulsion qu'il est possible de transmettre depuis le laser jusqu'à la cible. En comparant des fibres à saut d'indice à gaine en silice avec des fibres à gaine en polymère ou en silicone, nous avons montré que les fibres à coeur et à gaine en silice sont les moins sensibles à cette limitation. Nous avons par ailleurs établi que les fibres à gaine en silice sont mieux adaptées à un usage intensif que les autres types de fibres. Il faut donc les utiliser de préférence à toute autre si l'on se propose de transmettre des impulsions U.V. intenses pendant des temps d'intervention longs.

Nous avons démontré la faisabilité de destruction in-vitro de calculs biliaires par laser à XeCl. Sous l'effet des tirs laser, le calcul se divise en fragments de petites dimensions. L'analyse de la composition chimique des gaz formés au cours de l'irradiation nous permet de conclure à un faible risque de toxicité. Cependant, l'étude de destruction in-vivo ne peut être envisagée qu'à la condition de disposer en extrémité de fibre d'une puissance moyenne et d'une énergie par impulsion plus grandes que celles que nous

avons obtenues dans nos expériences. Des modifications des caractéristiques des lasers à XeCl (augmentation de la durée d'impulsion et de la cadence des tirs, amélioration de l'homogénéité du faisceau), en cours de réalisation à l'heure présente chez la plupart des constructeurs, laissent espérer que cette limitation technique pourra bientôt être franchie.

Nous avons établi que, dans l'état actuel de la technologie, le couple laser à XeCl-fibre est par contre bien adapté pour déterminer la nature chimique des calculs biliaires. Nous décrivons en effet une méthode nouvelle d'aide à la décision thérapeutique qui permet de classer les calculs biliaires en deux catégories (cholestérolique ou pigmentée). Cette méthode, basée sur l'analyse spectroscopique de la fluorescence d'un calcul excitée par des impulsions ultraviolettes de faible fluence, a fait l'objet d'essais in-vitro prometteurs qui incitent à poursuivre son développement.

