Thèse de doctorat



Université de Limoges

École Doctorale Sciences et Ingénierie pour l'Information, Mathématiques (ED 521)

Institut de Recherche Xlim, Limoges

Thèse pour obtenir le grade de

Docteur de l'Université de Limoges

Electronique des Hautes Fréquences, Photoniques et Systèmes

Présentée et soutenue par

Matthieu Chafer

Le 19 septembre 2018

Sources lasers innovantes à base de micro-capsules photoniques et par nano-structuration de milieux gazeux

Thèse dirigée par Fetah Benabid et co-encadrée par Frédéric Gérôme et Benoît Beaudou.

JURY :

Rapporteurs:

Mr. Eric Cormier, Professeur, Laboratoire CELIA, Université de Bordeaux. Mr. Guy Millot, Professeur, Laboratoire interdisciplinaire Carnot de Bourgogne, Université de Bourgogne Franche-Comté.

Examinateurs :

Mr. Benoît Beaudou, Ingénieur d'application-PhD, GLOphotonics.

Mr. Fetah Benabid, Directeur de recherche, Xlim-GPPMM, Université de Limoges. Mr. Vincent Couderc, Directeur de recherche CNRS, Xlim-Biophotonique, Université de Limoges.

Mr. Philippe Delaye, Directeur de recherhce CNRS, Institut d'Optique Graduate School.

Mr. Frédéric Gérôme, Chargé de recherche, Xlim-GPPMM, Université de Limoges.



Remerciements

J'aimerais remercier dans un premier temps mes trois directeurs de thèses ; Fetah Benabid pour ses discussions scientifiques et sa passion, Frédéric Gérôme pour sa bonne humeur, ses bons conseils et ses talents de chasseur de Pokémon, et Benoît Beaudou pour ses explications et de m'avoir laissé gagner au moins une fois aux fléchettes... De manière plus générale, merci de m'avoir accordé votre confiance et votre temps pour que je puisse réaliser ce projet.

Je tiens également à remercier Jérôme Alibert m'ayant permis d'être CIFRE avec GLOphotonics et pour sa bienveillance.

Un gros merci à l'équipe du GPPMM, Abhilaash l'homme curry, Mohammed d'une gentillesse extrême, Simon le buveur de thé, Ekaterina, Assaad l'épicurien, Aurélien le bordelais qui savait se faire entendre, Foued et ses fameux « puta de marde », Maxime le chti, Antoine, Jonas monsieur sourire, Mustafa, Aymeric le papa, Giaccomo le plus italien des italiens, petit Fred hyperactif naît à Xlim et ferrailleur, Dadoo le moins breton des bretons, petit Ben le plus sobre des gens en état d'ébriétées.

Merci également à l'équipe de GLOphotonics; Quentin monsieur pied pourri, petit Alex toujours en train de râler, Ando l'endo rmi, Jean Jean le grand chauve, Martin voisin de bureau béarnais-basque-landais-avironnais et Alex voisin tout court qui a fait toutes les choses les plus improbables.

Que ce soit les deux équipes, vous m'avez tous permis d'aller au labo tous les jours avec le sourire, plus que des collègues de vrais amis sur qui j'ai pu compter même dans les moments plus difficiles et passer des moments inoubliables.

Finalement, j'aimerais remercier mes amis et ma famille qui me soutiennent depuis toujours.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018





Liste des figures

Figure 1-1 : Zoologie des PCF
Figure 1-2 : Evolution des pertes des fibres HCPCF IC au cours des années
Figure 1-3 : (a) Comparaison schématique de la longueur d'interaction entre l'espace libre et une HCPCF. (b) Facteur de mérite en fonction du diamètre de cœur et des pertes des fibres à cœur creux avec leur image MEB
Figure 1-4 : (a) Définition schématique d'une fibre PCF. (b) Représentation schématique de la constante de propagation β et du vecteur d'onde <i>k</i> dans une fibre BIP à cœur creux. (c) schéma du contenu modal des trois mécanismes de guidage
Figure 1-5 : DOPS de (a) BIP à cœur creux (b) structure Kagomé (c) Structure tubulaire 34
Figure 1-6 : (a) Représentation schématique de l'analogie entre les modèles de la physique du solide et de la photonique (b) Courbes de dispersion du mode fondamental et du premier mode d'ordre élevé pour une tige de silice isolée et pour un réseau à une dimension de tiges de silice. (c) Diagramme d'intensité d'états simulé d'une BIP à maille triangulaire avec les différents champs proches des modes résonnants dans les trois types de résonateurs [23]38
Figure 1-7 : (a) Représentation schématique d'un état lié dans un continuum. (b) Densité d'états photonique d'une structure Kagomé (c) et (d). Nature des modes d'une fibre Kagomé pour différentes fréquences normalisées du diagramme des densités d'états. (e) Profil d'intensité d'un mode de cœur et de gaine au même n_{eff} . (f) évolution du cœur des HCPCF-IC
Figure 1-8 : (a) Evolution de l'indice effectif en fonction de la longueur d'onde pour un capillaire (courbe rouge), une HCPCF de type IC (courbe verte) et d'une HCPCF BIP. (b) Comparaison du n_{eff} , de la GVD et du spectre de transmission d'une BIP et des IC
Figure 1-9 : Seuil d'énergie nécessaire à la génération du Stokes de premier ordre vibrationnel en fonction de la largeur d'impulsion [11]
Figure 1-10 : (a) Image MEB de la première fibre à maille Kagomé et les champs lointains des Stokes générés [8]. (b) Génération en régime continu du Stokes du premier ordre rotationnel à la limite quantique [9]
Figure 1-11 : (a) Génération d'un peigne Raman sur 3 octave en régime d'impulsion ns pour une polarisation incidente linéaire et rotationnelle [10]. (b) Démonstration de la cohérence et l'auto-cohérence entre les composantes des peignes Raman [39]
Figure 1-12 : Peigne Raman généré sur plus de 5 octaves en régime ps [41]50
Figure 2-1 : Schéma de la méthode de fabrication par stack and draw
Figure 2-2 : Image MEB d'une fibre Kagomé typique indiquant les paramètres géométriques d'une maille Kagomé. (a) La taille du cœur R_{CO} et le pitch Λ (b) la courbure négative b . (c) l'épaisseur des ponts t
Figure 2-3 : (a) Définition de la courbure négative <i>b</i> . (b) Illustration géométrique du bénéfice de la courbure négative. (c) Evolution du nombre azimutal et du périmètre du contour de

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

cœur en fonction du paramètre b . (d) Evolution du contenu modal et des pertes par confinement avec le b
Figure 2-4 : (a) Pertes de confinement calculées pour un <i>b</i> =1 avec des <i>t</i> de 300 1400 nm par rapport à la fréquence normalisée. (b) Pertes de confinement par l'équation $t.\lambda^{4,3}$
Figure 2-5 : Spectres des pertes mesurées pour des fibres fabriquées avec des épaisseurs de ponts différentes. Images MEB du cœur et du contour de cœur indiquant les tailles de cœur et les valeurs de b des différentes fibres fabriquées
Figure 2-6 : Evolution du b des fibres fabriquées en fonction de l'épaisseur des ponts de silice. Pertes mesurées (courbe noire) et théoriques avec la structure des fibres fabriquées (courbe rouge) et fibres avec une structure idéale (courbe rouge pointillées)
Figure 2-7 : (a) Image du MEB de la fibre avec un zoom sur la courbure négative et l'épaisseur des ponts. (b) Transmission de la fibre record (courbe noir) et de l'ancien état de l'art (courbe en pointillée)
Figure 2-8 : (a) Pertes par courbure à 1030 nm théoriques (courbe pointillées) et expérimentales (courbe noire). (b) Evolution du PER en fonction de la longueur de la fibre. (c) S ² de la fibre
Figure 2-9 : (a) Image MEB du cœur avec un zoom sur la courbure négative et l'épaisseur des ponts. (b) Transmission de la fibre record (courbe noire) et celle de l'ancien état de l'art (courbe en pointillée)
Figure 2-10 : Image MEB de la fibre indiquant les paramètres géométriques clés d'une maille tubulaire : (a) La taille du cœur, le rayon du tube et le pitch (b) l'espacement entre les tubes δ (c) l'épaisseur des ponts <i>t</i>
Figure 2-11 : DOPS d'une fibre à maille tubulaire
Figure 2-12 : (a) Amplitude du profil 1 D le long d'une ligne d'espacement entre le centre de deux tubes adjacents pour des espacements variant de 2 à 8 μ m pour un arrangement triangulaire de tubes (b) et pour une fibre à un cœur creux avec une maille tubulaire
Figure 2-13 : (a) Distribution transverse de <i>prn</i> pour 4 fibres avec δ =2µm, 4 µm, 6 µm, 8 µm à deux longueurs d'onde : 530 nm (colonne de gauche) et 1200 nm (colonne de droite). (b) Distribution azimutale de <i>prn</i> sur le contour entourant la microstructure de la gaine. Les 8 tubes sont placés à 0° et aux multiples de 45°. La position des tubes le long du périmètre considéré est représentée par les cercles noirs
Figure 2-14 : (a) Pertes par confinement pour différents nombres de tubes (b) Rapport de pertes entre les modes <i>TE</i> 01 et <i>HE</i> 11. (c) Spectres des pertes en fonction de δ . (d) Pertes pour différentes épaisseurs de ponts
Figure 2-15 : Pertes en fonction de la longueur d'onde sur l'épaisseur avec les différents paramètres géométriques
Figure 2-16 : (a) Image MEB de la fibre fabriquée. (b) Transmission mesurée de 200 à 1750 nm. (c) Pertes mesurées de 400 à 1750 nm (courbe noire) et les pertes par confinement théoriques (courbe en pointillées bleus) et les pertes par diffusion de surface (courbe pointillées rouge)
Figure 2-17 : (a) Image MEB de la fibre. (b) Transmission mesurée de 200 à 1750 nm. (c) Pertes mesurées de 400 à 1750 nm (courbe noire), les pertes par confinement théoriques
Matthieu Chafer Thèse de doctorat Université de Limoges 2018 6

(courbe en pointillées bleus) et les pertes par diffusion de surface (courbe pointillées rouge).
Figure 2-18 : (a) Evolution du PER avec la longueur de la fibre. (b) S ² pour un tronçon de 5 et 15 m
Figure 2-19 : Evolution du diamètre externe de la fibre lors de la fabrication en fonction de la longueur étirée
Figure 2-20 : Photo du laser vert couplé dans un tronçon de 300 m
Figure 3-1 : (a) Procédure d'assemblage d'une PMC en utilisant l'He. (b) Photo d'une PMC toute fibrée
Figure 3-2 : (a) Vue d'une PMC opto-mécaniques (b) Photo de PMC opto-mécanique vendue par GLOphotonics
Figure 3-3 : (a) Photo de la PMC fabriquée. (b) Schéma du montage utilisé. (c) Comparaison des pics d'absorption entre la PMC et une cellule référence remplie d'I ₂ . (d) Mesure de la stabilité du laser avec la PMC comme référentiel
Figure 3-4 : Schéma du montage utilisé
Figure 3-5 : (a) Spectres fréquentiel et durée d'impulsion en sortie de fibre remplie d'air pour différentes énergies. (b) Compression optimale pour 70 cm de fibre remplie d'Argon à 15 bars. (c) Energie de l'impulsion en sortie en fonction de l'énergie du faisceau incident pour différentes longueurs de fibre remplies d'air et d'Argon à 15 bars
Figure 4-1 : (a)Croissance de l'intensité Stokes normalisée de la fluctuation quantique en fonction de la largeur de l'impulsion du laser de pompe $\tau 0\Gamma$ normalisé pour différentes valeurs de <i>gL</i> .[74](b) Zoom de 4-1(a) sur l'émission spontanée
Figure 4-2 : Facteur de réduction du gain R dans le régime transitoire en fonction de $\Gamma \tau$ pour un gain net Raman de G=1000 122
Figure 4-3 : Démonstration expérimentale de la dépendance des régimes DRS avec la durée d'impulsion de la pompe
Figure 4-4 : Description de l'évolution modale suivant les différents régimes d'amplification.
Figure 4-5 : (a) Processus de la génération Raman en cascade. (b) Intensité moyenne du Stokes et de l'anti-Stokes du premier ordre et l'anti-corrélation C en fonction du désaccord de phase[75]. (c) Peigne Raman généré sur 3 octaves.[10]
Figure 4-6 : (a) Diagramme énergétique de la molécule d'H2 avec l'illustration de la génération Raman hors résonnance. (b) Diagramme des transitions vibrationnelles et rotationnelles dans un niveau énergétique (c) Illustration de la molécule excitée en transition vibrationnelle (d) Illustration de la molécule excitée en transition rotationnelle
Figure 4-7 : (a) Dépendance du gain Raman du Stokes vibrationnel (courbe rouge) et du Stokes rotationnel (courbe verte) (b) Dépendance du gain Raman en fonction de la longueur d'onde
Figure 4-8 : (a) Pression $d'H_2$ dans un capillaire en silice et en aluminium en fonction du temps. (b) Schéma illustrant le problème de diffusion de gaz dans un solide
Figure 4-9 : CAO de la Combbox avec une vue de profil et une vue de dessus
Matthieu Chafer Thèse de doctorat Université de Limoges 2018 7

Figure 4-10 : (a) Photo du comblas réalisé (b) CAO illustrative de la Comblas
Figure 4-11 : Evolution des peignes Raman au cours du temps141
Figure 5-1 : (a) Transmission typique d'un super-continuum avec une photo d'un faisceau diffracté (b) Photo du premier prototype du Comblas avec son faisceau diffracté
Figure 5-2 : (a) Image MEB de la fibre. (b) Image MEB du cœur de la fibre. (c) Transmission sur 3,5 m de fibre (courbe rouge), transmission sur 30 m de fibre (courbe bleueu) et courbe des pertes de la fibre
Figure 5-3 : Photo du spectre généré avec sa détection à l'OSA149
Figure 5-4 : (a) Evolution de la largeur d'impulsion et de la puissance moyenne suivant la cadence du laser. (b) Energie de l'impulsion suivant le taux de répétition du laser (c) Evolution de la puissance en moyenne de la pompe et de la durée d'impulsion en fonction du courant fixé.
Figure 5-5 : Peignes Raman mesurés à l'OSA pour différentes longueurs de fibre 153
Figure 5-6 : (a) Evolution du spectre Raman mesuré à l'OSA pour différentes pressions à un taux de répétition de 50 kHz avec une durée d'impulsion de 8 ns. (b) Evolution du spectre Raman mesuré à l'OSA pour différentes pressions à un taux de répétition de 150 kHz avec une durée d'impulsion de 15 ns. (c) Evolution du spectre Raman mesuré à l'OSA pour différents taux de répétition du laser à 10 bar pour une durée d'impulsion de 12 ns pour 120 kHz, 15 ns pour 150 kHz, 17 ns pour 180 kHz, 20 ns pour 210 kHz, 21 ns pour 230 kHz, 22 ns pour 250 kHz et 25 ns pour 300 kHz
Figure 5-7 : (a) Evolution de la puissance moyenne du Stokes vibrationnel de premier ordre en fonction du taux de répétition du laser. (b) Evolution de la puissance moyenne de l'anti- Stokes vibrationnel de premier ordre en fonction du taux de répétition du laser
Figure 5-8 : Puissance moyenne maximum du Stokes vibrationnel de premier ordre en fonction de l'énergie des impulsions et le taux de répétition. Tau représente la durée de l'impulsion du laser pour ces valeurs
Figure 5-9 : (a) Evolution de la puissance moyenne du Stokes vibrationnel de premier ordre en fonction de la cadence du laser et de la pression d' H_2 . (b) Evolution de la puissance moyenne de l'anti-Stokes vibrationnel de premier ordre en fonction de la cadence du laser et de la pression d' H_2
Figure 5-10 : (a) Image MEB de la fibre utilisée. (b) Spectre des pertes de la fibre de 400 à 1000 nm avec la courbe des pertes due à la diffusion Rayleigh dans la silice
Figure 5-11 : Evolution du spectre de 250 à 1000 nm mesuré au spectrophotomètre pour différentes pressions pour une longueur de fibre de 1,8 m
Figure 5-12 : Photo du peigne diffusé avec un réseau de diffraction et l'évolution du spectre en fonction de la longueur de fibre pour une pression de 5 bars
Figure 5-13 : Spectres UV pour une longueur de fibre d'1,20 m et une pression de 5 bars. (a) Spectre dans l'UV proche (b) Zoom sur les lignes générées aux longueurs d'onde plus basses.
Figure 5-14 : Photo du peigne diffracté avec la mesure du spectre généré grâce à un spectrophotomètre pour une polarisation linéaire dans 60 cm de fibre remplie de 15 bars d'H ₂
Matthieu Chafer Thèse de doctorat Université de Limoges 2018

Figure 5-15 : Taux de transmission en sortie en fonction de la pression
Figure 5-16 : Sensibilité de la photodiode utilisée en fonction de la longueur d'onde168
Figure 6-1 : (a) Montage simplifié d'un cytomètre. (b) Système hydro-fluidique afin d'aligner les cellules
Figure 6-2 : (a) Système de lentille afin de récupérer la lumière provenant de la diffusion des cellules testées. (b) Comparaison de la diffusions avant (FSC) avec des cellules de taille différentes. (c) Comparaison de la diffusion de côté (SSC) pour des cellules de tailles différentes. 175
Figure 6-3 : Graphe de la diffusion avec des histogrammes uni dimensionnel pour une population de globules blancs
Figure 6-4 : (a) Comparaison de l'impulsion temporelle et de la diffusion entre une cellule et un agrégat de cellules passant à travers le faisceau laser. (b) Distinction des doublets des mono cellules grâce à la hauteur du FSC et la surface du FSC. Les doublets ont une surface plus grande et une hauteur similaire
Figure 6-5 : Peigne Raman généré avec la Combbox avec les longueurs d'onde absorptions (cercles rouges) et d'émissions (cercles bleus) de la famille des marqueurs Alexa Fluor 179
Figure 6-6 : Histogrammes de la fluorescence des cellules tumorales de souris avec et sans marqueur Alexa Fluor 647
Figure 6-7 : Disposition des PMTs dans la boîte à la fin du chemin optique
Figure 6-8 : (a) Montage utilisé avec le super-continuum et son spectre. (b) Montage investigué pour utiliser le peigne Raman. (c) Montage dans le cytomètre afin de superposer la ligne Raman au faisceau laser 488 nm
Figure 6-9 : Histogrammes de fluorescence obtenus par filtrage du super-continuum grâce à des filtres passe bande
Figure 6-10 : Evolution du coefficient de variation en fonction de la longueur d'onde 185
Figure 6-11 : Evolution des histogrammes de la fluorescence avec le laser de pompe à 532 nm avec le taux de répétition du laser
Figure 6-12 : Evolution de l'histogramme de fluorescence généré par l'anti-Stokes vibrationnel de premier ordre à 435 nm pour une pression de (a) 13 bars, (b) 15 bars, (c) et 18 bars d' H_2 dans la fibre
Figure 6-13 : (a) Coefficient de variation en fonction du taux de répétition de l'anti-Stokes vibrationnel de premier ordre à 435 nm pour différentes pressions d' $H_{2,i}$ (b) Comparaison du CV de l'anti-Stokes de premier ordre vibrationnel à 13 bars d' H_2 avec et sans filtre
Figure 7-1 : (a) Domaine fréquentiel (gauche) et temporel pour différents signaux en fonction du nombre de composantes. (b) Domaine fréquentiel (gauche) et temporel (droite) pour des signaux avec différentes phases et amplitudes
Figure 7-2 : Illustration des domaines fréquentielles pour la synthèse d'onde
Figure 7-3 : (a) schéma d'un montage typique de HHG (b) Illustration du processus se produisant lors de la HHG
Figure 7-4 : Schéma illustratif de la modulation par effet électro-optique

Figure 9-6 : Spectre RF du FS sur une gamme de 160 MHz pour une pression de 20 bars et une puissance d'entrée de 11 W avec la courbe de la limite Doppler pour 20 bars de pressions
Figure 9-7 : Balayage du spectre RF sur 4 MHz pour une pression de 20 bars d'H ₂ , 10 W de puissance de la pompe en entrée et $PFS = 3W$
Figure 9-8 : Mesure du spectre optique avec un OSA
Figure 9-9 : (a) Schéma expérimental. (b) Spectre mesuré en balayant le photo détecteur sur l'axe de projection des bandes latérales
Figure 10-1 : Schéma illustratif des puits de potentiel dans la direction de propagation de la fibre (z) et dans la direction radiale de la fibre
Figure 10-2 : Profil longitudinal du potentiel en fonction des différents niveaux de saturation. 246
Figure 10-3 : (a) Comparaison de la trace des spectres RF sur une gamme de 3 MHz dans le cas où la longueur de la SMF du bras de retard est égale à 0 km (courbe rouge) à 6 km (courbe bleue) et 20 km (courbe noire). (b) Comparaison de la trace des spectres RF sur une gamme 6 kHz dans le cas où la longueur de la SMF du bras de retard est égale à 0 km (courbe rouge) à 6 km (courbe (bleue) et 20 km (courbe noire)
Figure 10-4 : Largeur de bande en fonction du produit de la puissance en entrée et la pression pour le FS (points bleus) et le BS (points rouges) ainsi que la ligne représentant la fréquence sub-recul
Figure 10-5 : Evolution de la largeur de bande en fonction de la pression pour une puissance d'entrée de 10 W
Figure 10-6 : (a) Largeur de bande mesurée sur 3 MHz. (b) Largeur de bande mesurée sur une plage de 8 kHz







Liste des tableaux

Tableau 1-1 : Différences notoires entre les HCPCF BIP et les IC
Tableau 2-1 : Récapitulatif des lois d'échelles afin d'exacerber l'IC dans les fibres à maille Kagomé
Tableau 2-2 : Tableau récapitulatif des lois d'échelle afin d'exacerber l'IC dans les fibres à maille tubulaire. 81
Tableau 4-1 : Tableau de diverses molécules active Raman avec le décalage fréquentiel de la transition vibrationnelle et leur gain Raman.[64][67][68][69]
Tableau 4-2 : Dépendance de la polarisation du Stokes généré et du gain Raman à lapolarisation du faisceau incident.134
Tableau 5-1 : Comparaison des différents technologies générant un large spectre







Abréviations

BIP	Bande interdite photonique	MIR	Moyen infra-rouge
CAO	Conception assistée par ordinateur	NIR	Proche infra-rouge
CV	Coefficient de variation	MPI	Interférence multi-passage
CW	Régime continu	OPA	Amplificateur paramétrique optique
DFG	Génération de fréquence différence	OPO	Oscillateur paramétrique optique
DPSS	Laser solide pompé par diode	PER	Ratio d'extinction de polarisation
DRS	Diffusion Raman Stimulée	PMC	Micro cellule photonique
FOM	Facteur de mérite	PCF	Fibres à cristaux photoniques
FSC	Lumière diffusée à l'avant	RTI	Réflexion totale interne
GVD	Dispersion de vitesse de groupe	S ²	Contenu modal en imagerie résolu spectralement et spatialement
HC	Cœur creux	SFG	Génération de fréquence somme
HHG	Générations d'harmoniques élevées	SHG	Génération de la seconde harmonique
IC	Couplage inhibé	SMF	Fibre monomode
IR	Infra rouge	SNO M	Microscope optique à balayage de champ proche
LMA	Large aire modale	SSL	Lumière diffusée par la surface
LP	Polarisé linéairement	TSM	Modes spato-temporaux
MEB	Microscope à balayage électronique	UV	Ultra-violet
MFD	Diamètre de champ de mode	VIS	visible



Table des matières

Remerciements	
Liste des figures	
Liste des tableaux	
Abréviations	
Table des matières	
Chapitre 1. Sources Raman à base de fibres creuses.	
1. Introduction	24
2. Historique et principes physiques des HCPCF : nouveau regard sur le guidage optique	principe de 30
a) Le spectre modal d'une fibre micro-structurée	
b) Le modèle des états liés photoniques (PTBM)	
c) Etat lié ou quasi-lié dans un continuum	
d) Propriétés modales des HCPCF	
3. Génération de la diffusion Raman stimulée dans les HCPCF	
4. Etat de l'art du Raman dans HCPCF	
5. Objectifs de la thèse	50
a) Convertisseur de fréquence et source peigne à base de HCPCF	50
b) Vers un générateur de fonctions d'ondes optiques	51
6. Conclusion	51
Partie I	
Chapitre 2. Conception et réalisation de PCF à cœur creux.	55
1. Introduction	
2. Fabrication par la méthode Stack and draw	57
3. Fibres à couplage inhibé à maille Kagomé	
a) Outils conceptuels pour exacerber l'IC avec une maille Kagomé	59
b) Réalisation de Fibres à maille Kagomé	64
4. Fibres à couplage inhibé à maille tubulaire	72
a) Outils conceptuels	
b) Fabrication de fibres à structure tubulaire	

5.	Réalisation d'une HCPCF BIP	
6.	Conclusion	
Chap	pitre 3. Conception et réalisation de PMC.	97
1.	Introduction	
2.	Procédés de fabrication de PMC	
a	a) PMC intégralement fibrée	
ł	b) PMC opto-mécanique	101
3.	Réalisation d'une PMC I ₂	102
a	a) Processus de fabrication de la PMC	102
ł	b) Qualification de la PMC	103
4.	PMC opto-mécanique pour la compression d'impulsions ultra-brèves dans l'U	V 105
ĉ	a) Processus de montage de la PMC	106
ł	b) Résultats expérimentaux	106
5.	Conclusion	108
Part	tie II	111
Chap tech	pitre 4. Diffusion stimulée Raman dans les fibres creuses et les nologiques	limites
Char techi 1.	pitre 4. Diffusion stimulée Raman dans les fibres creuses et les nologiques Introduction	limites 113 114
Chap tech 1. 2.	pitre 4. Diffusion stimulée Raman dans les fibres creuses et les nologiques. Introduction. Régimes de génération et d'amplification Raman.	limites 113 114 115
Chap techi 1. 2.	pitre 4. Diffusion stimulée Raman dans les fibres creuses et les nologiques. Introduction. Régimes de génération et d'amplification Raman	limites 113 114 115 115
Chap techi 1. 2.	 pitre 4. Diffusion stimulée Raman dans les fibres creuses et les nologiques. Introduction. Régimes de génération et d'amplification Raman	limites 113 114 115 115 118
Chap techi 1. 2. a b	 pitre 4. Diffusion stimulée Raman dans les fibres creuses et les nologiques. Introduction. Régimes de génération et d'amplification Raman	limites 113 114 115 115 118 124
Chap techi 1. 2. k	 pitre 4. Diffusion stimulée Raman dans les fibres creuses et les nologiques. Introduction. Régimes de génération et d'amplification Raman	limites 113 114 115 115 118 124 127
Chap techi 1. 2. 8 8 0 0 3.	 pitre 4. Diffusion stimulée Raman dans les fibres creuses et les nologiques. Introduction. Régimes de génération et d'amplification Raman	limites 113 114 115 115 118 124 127 131
Chap techi 1. 2. 8 8 9 3. 2 3. 3.	 pitre 4. Diffusion stimulée Raman dans les fibres creuses et les nologiques. Introduction. Régimes de génération et d'amplification Raman a) Introduction. b) Régimes d'amplification Stokes dans la DRS impulsionnelle. c) Description modale du champ Stokes d) Peigne de fréquence par DRS transitoire . La molécule d'hydrogène. a) Dépendance du gain à la polarisation . 	limites 113 114 115 115 115 118 124 127 131 134
Chaj techi 1. 2. 8 3. 3.	 pitre 4. Diffusion stimulée Raman dans les fibres creuses et les nologiques. Introduction. Régimes de génération et d'amplification Raman	limites 113 114 115 115 115 118 124 127 131 134 134
Chay techu 1. 2. 8 8 3. 4.	 pitre 4. Diffusion stimulée Raman dans les fibres creuses et les nologiques. Introduction. Régimes de génération et d'amplification Raman a) Introduction. b) Régimes d'amplification Stokes dans la DRS impulsionnelle. c) Description modale du champ Stokes d) Peigne de fréquence par DRS transitoire La molécule d'hydrogène. a) Dépendance du gain à la polarisation b) Dépendance du gain à la pression d'H₂ et de la longueur d'onde PMC à long temps de vie. 	limites 113 114 115 115 115 118 124 124 127 131 134 134 134
Chap techi 1. 2. 4 3. 4. 4.	 pitre 4. Diffusion stimulée Raman dans les fibres creuses et les nologiques. Introduction. Régimes de génération et d'amplification Raman	limites 113 114 115 115 115 118 124 127 131 134 134 136 136
Chap techi 1. 2. 4 3. 4. 4.	 pitre 4. Diffusion stimulée Raman dans les fibres creuses et les nologiques. Introduction. Régimes de génération et d'amplification Raman	limites 113 114 115 115 115 118 124 127 131 134 134 136 138
Chap techi 1. 2. 4 3. 4. 4. 4.	pitre 4. Diffusion stimulée Raman dans les fibres creuses et les nologiques. Introduction. Régimes de génération et d'amplification Raman a) Introduction. b) Régimes d'amplification Stokes dans la DRS impulsionnelle. c) Description modale du champ Stokes d) Peigne de fréquence par DRS transitoire La molécule d'hydrogène a) Dépendance du gain à la polarisation b) Dépendance du gain à la pression d'H2 et de la longueur d'onde pMC à long temps de vie a) Diffusion de l'hydrogène à travers la silice b) Conception et réalisation d'un Comblas c) Qualification du temps de vie du produit	limites 113 114 115 115 115 118 124 127 131 134 134 136 138 140

Chapitre 5. Sources Peigne Raman dans les gammes spectrales du visi l'ultra-violet	ble et de 143
1. Introduction	
2. Pompage de la Combbox par un laser à 532 nm	
a) Définition de la fibre pour la DRS pompée à 532 nm	
b) Analyse du spectre en sortie du Comblas	
c) Peigne Raman vs cadence de la pompe	
d) Investigation de la longueur de fibre	
e) Evolution du peigne en fonction de la pression et du taux de répétition	
f) Puissance moyenne des transitions vibrationnelles	
3. PMC pompée par un micro-chip à 355 nm	
a) Fibre optimisée pour la génération de la DRS par un pompage à 355 nm	
b) Etudes systématiques de la génération du peigne dans l'UV	
4. Conclusion	
Chapitre 6. Application de la CombLas : étude cytométrique	
1. Introduction	
2. Introduction au cytomètre	
a) Caractérisation des particules par diffusion de la lumière	
b) Fluorescence dans la cytométrie	
c) Calibration et analyse des données du cytomètre	
3. Mesures cytométriques avec des sources diverses	
a) Schéma expérimental	
b) Histogrammes mesurés avec un super-continuum	
c) Histogrammes mesurés avec le DPSS seul	
d) Histogrammes mesurés avec l'anti-Stokes de premier ordre (435,6 nm)	
4. Conclusion	
Partie III	191
Chapitre 7. Vers la synthèse d'ondes optiques par voie Raman	
1. Introduction : principe de synthèse d'ondes optiques	
2. Les différentes voies pour la synthèse d'ondes optiques	
a) Voies impulsionnelles	

b)	Voies en régime continu	202
----	-------------------------	-----

Chapitre 8. Radiation Stokes à haute puissance et à largeur de raie sub-recul par nano-structuration de gaz et DRS dans un régime Lamb-Dicke : modèle théorique. 207

1	•	Introduction	208			
2. La structure microscopique de la cohérence Raman avec un champ Stokes co et contra-propageant						
	a)	Modèle théorique et équations de Bloch du système	209			
	b)	Expressions microscopiques du gain et du potentiel Raman	211			
	c)	Signatures spectrales du système	217			
3. Simulations numériques des équations de propagation de la DRS couplées avec les équations de Bloch						
4	•	Force opto-mécanique suivant la direction de la fibre	224			
5	•	Conclusion	226			
Chapitre 9. Radiation Stokes à haute puissance et à largeur de raie sub-recul par nanostructuration de gaz et DRS dans un régime Lamb-Dicke : résultats expérimentaux						
1	•	Introduction	230			
2	•	Montage optique	230			
3	•	Largeurs de bande	233			
4		Signature du Rabi splitting et du mélange à 4 ondes	235			
5		Signature des bandes relatives au piégeage dans l'axe transverse et longitudinal	237			
6	•	Conclusion	240			
Chapitre 10. Exacerbation du rétrécissement de la largeur de raie Stokes par optimisation de la longueur de fibre et pression du gaz						
1	•	Introduction	242			
2	•	Rétrécissement Lamb-Dicke	242			
3	•	Dispositif et résultats expérimentaux	246			
	a)	Montage optique	246			
	b)	Résultats expérimentaux	248			
4	•	Perspectives	250			
	a)	Structure physique du réseau nano structuré	251			
	b)	Appareils photoniques basés sur le réseau auto-assemblé	252			

c) Refroidissement moléculaire de la nanostructure auto-ass	emblée et sa radiation. 253			
5. Conclusion				
Bibliographie25				
Contributions Scientifiques268				











Chapitre 1. Sources Raman à base de fibres creuses.

Le chapitre premier revoit le contexte scientifique et technologique des travaux de cette thèse. Il rapporte les résultats majeurs concernant les fibres à cristal photonique (PCF) et leur impact ces dernières années dans l'optique nonlinéaire et les lasers. Une attention particulière est portée sur les fibres PCF à cœur creux (HCPCF) et leur rôle dans l'émergence de la photonique des gaz. Puis, le chapitre donne un état des lieux des principes physiques des mécanismes de guidage optique suite aux avancées réalisées ces dernières années dans le domaine de la PCF en général, et dans le domaine des HCPCF en particulier. Ensuite, un tableau est dressé sur les générations de la diffusion Raman stimulée dans les fibres creuses remplie de gaz. Le chapitre se conclut par une description de l'objectif dual de mes travaux de thèse. Le premier consiste à développer des sources laser peignes Raman émettant dans la gamme spectrale du visible et ultraviolet pour des applications industrielles. Le deuxième consiste à générer et caractériser une radiation Stokes en excitation continue émise dans un régime Lamb-Dicke. Le dernier est un des jalons majeurs vers la réalisation d'un générateur de fonction photonique à base de peignes Raman.



1. Introduction

Durant ces deux dernières décennies, le domaine de la photonique a connu un essor considérable et multiple. Parmi les exemples de cet essor, on peut citer la maturité technologique des lasers qui sont aujourd'hui un élément important aussi bien dans les secteurs industriels que dans le domaine de la recherche scientifique. Un autre exemple important est celui de l'avènement des fibres à cristal photonique (PCF) dont l'ampleur de son impact scientifique et technologique ne cesse de grandir. En effet, la PCF s'est révélée être une plateforme exceptionnelle pour comprendre les mécanismes physiques derrière le contrôle de la lumière dans des diélectriques micro-structurées. Elle a notamment permis de déboucher sur de nouveaux concepts tels que le guidage par bande interdite photonique (BIP) ou par Couplage Inhibé (IC). Ces notions physiques qui étaient jusqu'ici limitées à la mécanique quantique ou la physique de la matière condensée, ont pris une forme intéressante et nouvelle à travers l'extension de leur application au photon suite aux travaux pionniers de John [1] et Yablonovitch [2].

La PCF est également devenue un vecteur moteur dans plusieurs développements dans le domaine des lasers ou de l'optique non linéaire. Parmi ceux-ci on compte le laser blanc, ou super-continuum, qui doit sa réalisation à la très petite aire modale et au fort contraste d'indice de certaines PCF [3]. A l'inverse la PCF à large aire modale (LMA-PCF) a permis le développement du laser à fibre à très forte puissance tout en présentant un guidage monomode [4]. Cette dernière propriété démontre la possibilité de concevoir et réaliser une micro-structuration de la gaine afin d'assurer une guidage optique monomodal indépendamment de la longueur d'onde et malgré des cœurs de fibres ayant un très large diamètre [5]. Ces exemples loin d'être exhaustifs, illustrent à la fois l'impact de ces fibres et la versatilité dans leur réalisation. Aussi, la Figure 1-1 présente schématiquement des fibres représentatives de la famille des PCF qui ont été réalisées depuis l'idée originale proposée par P.Russell [6].





Figure 1-1: Zoologie des PCF.

Aujourd'hui les PCF peuvent se décliner par leur mécanisme de guidage, par l'architecture de leur gaine et de son cœur, par les matériaux constitutifs, par une propriété optique spécifique ou par les applications qu'elles adressent.

Un type de PCF qui se distingue particulièrement dans cette nouvelle catégorie de fibres optiques est celui des fibres à cristal photonique à cœur creux (HCPCF) [7]. En effet, le guidage de la lumière dans un cœur creux ne peut s'obtenir par le seul mécanisme de guidage optique connu jusqu'alors, à savoir la réflexion totale interne (RTI). Le développement de la HCPCF a alors été une aventure à la fois conceptuelle et technologique où de nouveaux concepts ont vu le jour suite à la réalisation d'architectures originales dans la gaine. Nous pouvons citer comme exemple la Kagomé HCPCF [8] qui a permis de fixer les bases conceptuelles du guidage IC. Aussi, le concept de BIP a été le moteur premier dans le développement de nouveaux procédés de fabrication et de nouvelles architectures de fibres optiques micro- et nano-structurées. Aujourd'hui, et à l'image des PCF à cœur solide, la HCPCF se décline en plusieurs types de fibres. Le chapitre 2 passera en revue les différentes Matthieu Chafer [Thèse de doctorat] Université de Limoges [2018

notions clés des HCPCF, et comment les concepts cités ci-dessus sont exploités comme outil de conception et de fabrication des fibres creuses développées lors de mon travail doctoral, et contribuant à dessiner un nouvel état de l'art. La figure 2 montre schématiquement l'évolution historique des performances expérimentales de transmission des HCPCF guidant par BIP et IC. Les pertes de transmission des HCPCF sont passées de quelques dB/m pour les premières fibres apparues en 2000 à quelques dB/km seulement pour les HCPCF d'aujourd'hui.



Figure 1-2 : Evolution des pertes des fibres HCPCF IC au cours des années.

En plus de la réduction considérable des pertes linéiques de ces fibres et dont le potentiel peut en faire la fibre optique des télécommunications de demain, le fait que le cœur de la HCPCF soit creux permet de le remplir avec un milieu gazeux ou liquide afin de la fonctionnaliser pour un large champ d'applications. Cette capacité [9] a été démontrée tout au long de ces dernières années à travers plusieurs résultats capitaux. Parmi ces derniers nous pouvons citer l'optique non linéaire, où la diffusion Raman stimulée (DRS) a été générée à très faible seuil de pompe dans une HCPCF remplie de dihydrogène (H₂) [8]–[12]. L'optique cohérente où la transparence électromagnétique induite dans des fibres remplies d'acétylène ou de rubidium a été

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

réalisée [13][14]. Puis, l'optique ultra-rapide et à fort champ optique comme la compression d'impulsions femto secondes ultra-énergétiques [15][16] et la génération d'harmoniques élevées (HHG) [17]. Enfin, nous pouvons également noter comme exemple, la physique des plasmas avec la génération de micro-plasma confiné dans le cœur d'une HCPCF [18].

Ces performances s'expliquent principalement par l'exacerbation de l'interaction entre le gaz et la lumière. Cette exacerbation est due à la très petite aire modale de la lumière guidée dans une HCPCF et la grande longueur d'interaction qui se résume par la figure de mérite (FOM) suivante :

$$FOM = \frac{L_{int}.\lambda}{A_{eff}}$$
 Eq. 1-1

Le terme λ est la longueur d'onde, A_{eff} est le rayon du cœur et L_{int} la longueur d'interaction. La figure 1-3 trace la FOM pour le cas d'une propagation d'un faisceau gaussien dans l'espace libre, d'un capillaire et des HCPCF avec différents diamètres de cœur. On constate que la FOM peut atteindre 10⁷ pour des HCPCF avec un diamètre de cœur de 10 µm et des pertes de 10 dB/km. Ces valeurs sont supérieures de plusieurs ordres de grandeur comparé à lorsqu'on se situe en espace libre ou dans un capillaire pour un même diamètre de cœur. Les différentes zones pleines sur le graphe représentent les FOM pour les différentes HCPCF. Les zones remplies en rouge et vert représentent les FOM des fibres IC fabriquées lors de cette thèse. Nous pouvons constater que ces valeurs atteignent celles des fibres BIP à 7 défauts de cœur grâce à leurs faibles pertes. Par rapport à l'état de l'art précédent des HCPCF, un ordre de grandeur a quasiment été gagné. Nous verrons comment un tel niveau de perte a pu être atteint dans le chapitre 2.





HCPCF. (b) Facteur de mérite en fonction du diamètre de cœur et des pertes des fibres à cœur creux avec leur image MEB.

La richesse et l'impact de ces résultats ont suscité un intérêt scientifique et technologique grandissant. Une situation qui prélude à l'émergence d'un nouveau thème de recherche, qu'on pourrait intituler « photonique des gaz » (Gas-photonics en anglais). Cette thématique se distingue par un micro-confinement de milieux

dilués dans des microstructures diélectriques et des activités de recherche à la frontière de la photonique guidée, l'optique non linéaire, la physique atomique et moléculaire, la spectroscopie et l'optique cohérente et quantique.

Les travaux de cette thèse s'inscrivent dans ce paysage en devenir, et a pour objectif de réaliser des sources de lumière exotiques à base des HCPCF et de PMC. Le sujet de cette thèse est dual dans le sens où les travaux présentés dans ce manuscrit se déclinent en deux axes. L'un a une coloration technologique avec l'objectif de développer des sources laser « peigne » à base de (DRS) pour des applications biophotoniques. Il a pour but de remplir un cahier de charges de niveau industriel en termes de robustesse et temps de vie. L'autre axe est de nature plus fondamentale. Son objectif à long terme est de réaliser un générateur de fonctions optiques « universel » ayant la capacité de synthétiser des ondes optiques avec le même degré de contrôle qu'on observe aujourd'hui en électronique pour des fréquences de moins de 1 GHz. Les deux axes, cependant, se reposent sur un même socle technologique et scientifique. Ce dernier est composé de la technologie des HCPCF et l'assemblage des PMC, combiné au phénomène de DRS dans les gaz.

Dans ce chapitre, ce socle technologique et scientifique sur lequel repose mes travaux est introduit. Dans le paragraphe suivant, le principe physique des HCPCF et leurs propriétés saillantes sont mis en évidence en listant un historique de leur développement, ainsi que leurs propriétés modales. Puis, les différents résultats réalisés dans la génération de DRS dans les HCPCF remplies de gaz sont présentés. Nous verrons que la nécessité de lasers très intenses pour induire ce phénomène en espace libre n'en est plus une grâce au confinement du gaz à des échelles modales micrométriques sur de grandes longueurs d'interaction. Comme en témoigne l'état de l'art, l'amélioration des performances de telles fibres a permis d'exacerber la conversion Raman. Le troisième paragraphe résume l'objectif des travaux de thèse présentés. Enfin, le chapitre conclut par une présentation de la structure du manuscrit.



2. Historique et principes physiques des HCPCF : nouveau regard sur le principe de guidage optique

L'avènement des HCPCF a été à la fois une promesse technologique et une révolution scientifique. En effet, guider la lumière dans un cœur creux, c'est-à-dire dans un milieu dilué (ici l'air), implique que les pertes par diffusion Rayleigh devraient baisser relativement à celui des fibres conventionnelles à base de cœur de silice. Ce facteur de réduction devrait être comparable au ratio entre la densité de la silice et l'air. Cette perspective a suscité l'engouement d'industriels comme Corning. En effet, la fibre optique conventionnelle a connu un des plus beau progrès technologique du 20ième siècle illustré par le prix Nobel décerné à Kao [19], et une réduction de ces pertes de transmission jusqu'à une limite fondamentale qui est celle de la diffusion Rayleigh. Cette limite est induite par la fluctuation locale de la densité du verre lors de son étirage [20]. Ce progrès a été à la fois continu et significatif pendant 30 années ; commençant dans les années 70 avec des pertes de transmission de 16 dB/km, jusqu'à des pertes de 0.15 dB/km à 1550 nm en 1987. Cette figure de pertes est aujourd'hui marginalement améliorées (0.142 dB/km ont été reportées en 2017 par Tamura et al. [21]). Cette quasi-stagnation dans les performances du guidage est due à la limite fondamentale de la diffusion Rayleigh de la silice. Ce phénomène impose une dépendance des pertes d'un facteur $1/\lambda^4$. Ainsi, si nous voulons nous affranchir de cette limitation il est nécessaire de guider la lumière dans un milieu autre présentant une diffusion Rayleigh beaucoup plus basse. Dans ce contexte, l'air est un choix privilégié en sachant en plus que le seuil d'apparition d'effets non linéaires sera augmenté, la dispersion réduite, le seuil de dommage amélioré et le problème du photo-blanchissement lors du guidage de l'UV potentiellement adressé. De nouveaux mécanismes de guidage ont donc été développés afin de pouvoir guider la lumière de manière efficace dans un cœur creux.

a) Le spectre modal d'une fibre micro-structurée

Guider la lumière par BIP ou IC a été un vecteur d'une transformation paradigmatique concernant notre compréhension physique du phénomène de



guidage optique. Le résultat de cette transformation conceptuelle est résumé dans la figure 1-4.



Figure 1-4 : (a) Définition schématique d'une fibre PCF. (b) Représentation schématique de la constante de propagation $\vec{\beta}$ et du vecteur d'onde \vec{k} dans une fibre BIP à cœur creux. (c) schéma du contenu modal des trois mécanismes de guidage.

La figure résume schématiquement les trois mécanismes de guidage de fibre qu'on peut recenser aujourd'hui, à savoir la RTI, la BIP et l'IC, et comment ces derniers sont principalement déterminés par la structure modale de la gaine. Cette représentation puise ses ressorts plus au travers des notions de la mécanique quantique ou de la physique des solides que de l'optique guidée.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

CC BY-NC-ND

Dans cette perspective, une fibre optique est représentée par un réseau 2D de diélectriques transparents et uniformes le long de la direction *z* (i.e. cristal photonique) où un défaut est introduit dans lequel la lumière est guidée dans la direction *z* (Figure 1-4(a)). Ce défaut formera le cœur de la fibre, alors que le réseau formera la gaine. A l'instar d'un semi-conducteur dopé, la lumière ou longueur d'onde d'intérêt est confinée dans le cœur en s'assurant qu'elle ne peut pas être couplée dans la gaine. Cette interdiction de couplage de la lumière du cœur vers la gaine est assurée, dans le cas d'un guidage BIP, par le fait que la gaine ne supporte pas de modes à l'indice effectif et fréquence du mode guidé dans le cœur. Dans le cas de guidage IC, la gaine conçue ne montre pas nécessairement de BIP, mais un contenu modal peuplé par des modes (qui peut prendre la forme d'un continuum de mode) dont l'intégrale de recouvrement avec le mode de cœur d'intérêt (c.à.d. produit scalaire des fonctions d'ondes des modes) est fortement réduit.

A noter ici, que le spectre modal de la gaine concerne celui des modes se propageant suivant la direction *z*, à savoir les modes dont le champ électrique est de la forme $\propto e^{i\beta z}$. En d'autre terme, l'espace d'Hilbert (c.à.d. l'espace fréquence-vecteur d'onde (ω, \vec{k})) à cartographier pour déterminer le spectre modal est un sous-espace de (ω, \vec{k}) , à savoir (ω, β) , où $\vec{\beta}$ est la composante de \vec{k} le long de la direction *z*, souvent appelée constante de propagation. Ce spectre modal est construit grâce à la résolution de l'équation vectorielle de Maxwell-Helmholtz définie par :

$$(\nabla^2 + k^2 n^2)h + \nabla(\ln n^2) \times (\nabla \times h) = \beta^2 h$$
 Eq. 1-2

où *h* est la composante transverse du champ magnétique et *n* est la fonction diélectrique de la structure de la gaine dans le plan transverse. Depuis, les travaux pionniers de John [1] et Yablonovitch [2], cette équation est calculée comme un problème à « valeur propre », tel l'équation de Schrödinger, d'où le choix du champ magnétique au lieu de l'électrique qui assure un opérateur Hermitien. Aussi, pour des raisons pratiques, la gaine est traitée comme une structure infinie afin d'exploiter le théorème de Floquet-Bloch dans le cas de structures périodiques [22].

La résolution de cette équation prend la forme d'un diagramme montrant la densité des modes se propageant le long z de la microstructure diélectrique dans l'espace

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

 (ω, β) , ou (ω, n_{eff}) . Ici n_{eff} est appelé l'indice effectif du mode, et est relié à la constante de propagation par $\beta = n_{eff}$. k. Ce diagramme contient le spectre modal de la structure, appelé densité d'état photonique (DOPS), et dont le paysage est principalement dicté par l'indice et la géométrie de la gaine. Cependant, pour le moment, consacrons-nous à analyser la figure 1-4(c) en travaillant à une longueur d'onde fixe.

Pour une gaine micro-structurée, le spectre modal peut être fortement différent d'un diélectrique à indice uniforme, exhibant des bandes photoniques « pleines » et des bandes photoniques « vides », dites interdites. La nature des modes et leur genèse ont été clarifiées par le modèle des états photoniques liés (voir section ci-dessous). Cependant, sans recourir à des calculs élaborés nous pouvons déduire que tout mode se propageant le long de z dans un milieu d'indice n_g a son indice effectif tel que $n_{\text{eff}} <$ $n_{\rm g}$. Autrement dit, le milieu ne peut supporter des modes ayant $n_{\rm eff} > n_{\rm g}$, et donc, pour notre fréquence optique de travail, l'espace des indices effectifs $n_{\text{eff}} > n_{\text{g}}$ est une BIP. La structure modale de la gaine des fibres RTI est composée d'un continuum de modes en dessous de l'indice de la gaine (ici le verre). Au-dessus de cet indice effectif (n_{eff}) aucun mode de gaine ne peut être guidé. Il existe donc une bande interdite dans la structure modale de la gaine pour tout n_{eff} au-dessus de l'indice de réfraction du matériau de la gaine. Ainsi en insérant un défaut avec un n_{eff} plus grand, les modes de cœur peuvent être guidés dans la bande interdite de la gaine évitant tout couplage avec les modes de cette dernière. La condition nécessaire pour un guidage par RTI est donc $n_{coeur} > n_{gaine}$.

Dans le contexte de cette thèse, l'exemple pris pour les fibres à BIP est une HCPCF. La gaine est une micro-structuration de trous d'air et de silice entraînant une ouverture du continuum de modes de gaine avec l'apparition de bandes autorisées et de bandes interdites. Comme dit précédemment, les bandes interdites sont des régions (ω , n_{eff}) où les modes de gaines ne peuvent se propager. Grâce à ce type de micro structuration il est possible d'obtenir de telles bandes à des indices effectifs inférieurs à celui de l'air. L'insertion d'un défaut d'air permet ainsi de guider les modes de cœur à un indice inférieur à celui de l'air.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

Pour récapituler, dans le cas de ces deux mécanismes les modes de cœur peuvent être guidés avec de faibles pertes grâce à des régions dans l'espace (ω , n_{eff}) où aucun mode de gaine ne peut être guidé et donc se coupler avec le mode de cœur.

A contrario l'IC n'a pas besoin de ces bandes interdites afin de guider les modes de cœur avec de faibles pertes. En effet, lorsque nous regardons la structure modale pour ce type de mécanisme, les modes de gaine et de cœur coexistent au même indice effectif avec une interaction minime d'où l'appellation de couplage inhibé. Ceci est possible grâce à un désaccord de la phase transverse entre le mode de cœur et de la gaine permettant de découpler ces derniers. Nous détaillons les paramètres physiques qui permettent un tel guidage ci-dessous (section 2.a)iii).

Ainsi, ci-dessus nous nous sommes limités à analyser le contenu modal à une fréquence fixe pour les besoins de la démonstration des principes derrière le guidage optique par RTI, BIP et IC. Nous avons notamment remarqué que le guidage RTI est un cas particulier de BIP. Aussi, le contenu et la structure modale dépendent de la fréquence de l'onde optique à cause de la dispersion des ondes électromagnétiques. Dans la pratique, le contenu modal décrit qualitativement ci-dessus est déterminé sur un large intervalle spectral. La figure 1-5 montre le DOPS, qui n'est que le spectre modal pour une gaine infinie, pour les HCPCF les plus représentatives. Nous pouvons constater que le DOPS de la Kagomé (figure 1-5(b)) et de la tubulaire (figure 1-5(c)) sont très similaires. En effet, aucun espace (n_{eff} , $k\Lambda$) n'exhibe une densité d'états nulle contrairement à la maille triangulaire présentant une BIP (zone blanche de la figure 1-5 (a).



Figure 1-5 : DOPS de (a) BIP à cœur creux (b) structure Kagomé (c) Structure tubulaire.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

b) Le modèle des états liés photoniques (PTBM)

Suite aux travaux de John [1] et Yablonovitch [2] en 1987, il est devenu évident qu'on peut traiter un photon dans une microstructure diélectrique comme il est coutume de le faire pour une fonction d'onde électronique dans un semi-conducteur ou un cristal. Aussi, des notions, jusqu'ici limitées à la mécanique quantique ou à la physique de la matière condensée telle que la bande interdite, la densité d'état ou encore l'utilisation du théorème de Floquet-Bloch ont vu le jour en optique. Parmi ce travail de transfert conceptuel, on note le modèle des états liés photoniques pour expliquer la naissance des BIP dans les fibres, développé par F. Benabid [12].

L'approche des états liés a l'avantage de donner une description intuitive sur la formation des bandes permises, et par conséquent des bandes interdites. Cette dernière est plus communément utilisée dans la physique du solide pour calculer les bandes électroniques. Elles sont créées lors du rapprochement des sites atomiques isolés et identiques formant le solide. Le modèle considère un atome isolé avec ses niveaux d'énergie discrets. Lorsqu'un atome se rapproche d'un autre atome identique, les orbitales atomiques se recouvrent, et les niveaux électroniques discrets et dégénérés se scindent alors en deux sous leur interaction réciproque. Si un nombre infini N d'atomes sont présents et très proches, des bandes continues d'énergie sont formées. Ces bandes de niveaux d'énergie ont des fonctions d'ondes délocalisées décrivant les états quantiques des électrons, appelées fonctions d'ondes Bloch. Aussi, entre ces bandes des « gaps » sont formés, ce sont les bandes interdites (voir Fig. 6 (a)). Si un défaut (e.x. un dopant) est introduit dans ce réseau de N atomes ayant un niveau d'énergie correspond à une bande interdite du réseau, la fonction d'onde électronique de niveau d'énergie du défaut ne peut se coupler avec ceux du réseau. Transposer au cristal photonique 2D d'une PCF, revient à remplacer les atomes par des guides d'onde à haut indice et les niveaux d'énergie électroniques par la constante de propagation. La distance inter-atomique devient alors la distance entre deux guides d'ondes de haut indice appelé « pitch » et noté Λ . Lorsque les guides d'ondes sont assez proches, les champs des guides d'ondes se recouvrent induisant une séparation des modes formant les bandes permises de la structure de la gaine (ou simplement modes de gaine). Cette analogie faite entre la physique du solide et la photonique est illustrée sur la figure 1-6(a).

Une simulation est présentée sur la figure 1-6(b) afin d'avoir une meilleure appréciation de la formation des bandes d'énergie dans le cas d'une PCF. Pour cela les courbes de dispersion de l'état fondamental LP01 et du second mode d'ordre élevé LP_{11} dans un tube de silice isolé de diamètre *d* sont représentés. Le couplage entre ces tubes identiques formant un arrangement 1D est considéré suivant leur interdistance. La figure montre les courbes calculées pour un diamètre d = 0.45. A où Λ et l'espacement entre chaque tubes. Le calcul est effectué pour un arrangement de 1000 tubes de silice. Les courbes montrent que les fréquences discrètes permises pour un tube de silice isolé s'élargissent en bandes permises pour un arrangement de 1000 tubes de silice. Cet élargissement est d'autant plus important que la fréquence normalisée (k, Λ) diminue. La conséquence du rapprochement des tubes est donc une interaction plus forte entre les modes des tubes. A l'inverse, lorsque l'espacement entre les tubes de silice est important ($\Lambda > \lambda$) les bandes photoniques restent étroites. Cette simulation met également en avant la possibilité d'insérer un cœur creux pour confiner la lumière grâce à une BIP s'étendant en-dessous de la ligne d'air. Enfin, le mode fondamental est le mode le plus confiné et le moins énergétique comme en électronique.

Pour former cette BIP différents éléments de la structure de ce type de fibre rentrent en jeu. La figure 1-6(c) montre la densité d'état photonique calculée numériquement. Comme dans l'exemple vu précédemment, des bandes permises résident autour de la BIP dont la largeur rétrécit ou augmente suivant $k\Lambda$. Cette figure permet de définir les courbes de dispersion limitant la BIP. Celle à basse fréquence est représentée en rouge. Sur cette figure nous pouvons également observer le champ proche, pour un vecteur d'onde normalisé représentatif, confirmant le guidage de la lumière dans les plots de silice (figure 1-6(c)(B)). A plus haute fréquence la nature des modes est moins évidente due au recouvrement entre plusieurs BIP. Cette hybridation a pour conséquence la formation d'un bord de bande avec une combinaison de modes de gaines de symétrie différentes. Ces derniers sont surlignés en bleu et représentent la courbe de dispersion des ponts de silice (figure 1-6(c)(C)). En vert sont ceux des
cœurs d'air de la gaine avec leur champ proche respectif (figure 1-6(c)(D)). A des fréquences en dessous de kA=16,9, les modes des trous d'airs sont prédominants. Audessus de cette valeur ce sont les ponts de silice. Ils forment ainsi la frontière entre la BIP et la bande permise à plus haute fréquence. Expérimentalement, ces résultats ont été validés en excitant chacun de ces modes grâce à un super-continuum et en les visualisant avec un microscope optique permettant le balayage du champ proche (SNOM) [23].

Trois types de guides optiques sont mis en avant : les plots de silice, les ponts de silice et le cœur d'air. Chacun a son rôle à jouer sur la largeur de bande de transmission de la lumière. Afin de l'optimiser, il est possible d'augmenter la fraction d'air de la gaine. Elle est définie par le ratio entre le diamètre du trou d'air à l'espacement Λ . En accroissant la fraction d'air de 90 à 100% la BIP s'élargit considérablement et se décale vers des fréquences plus hautes [12].





(b)



(c)





Figure 1-6 : (a) Représentation schématique de l'analogie entre les modèles de la physique du solide et de la photonique (b) Courbes de dispersion du mode fondamental et du premier mode d'ordre élevé pour une tige de silice isolée et pour un réseau à une dimension de tiges de silice. (c) Diagramme d'intensité d'états simulé d'une BIP à maille triangulaire avec les différents champs proches des modes résonnants dans les trois types de résonateurs [23].

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018



c) Etat lié ou quasi-lié dans un continuum

Un état lié est assimilé à un atome confiné dans un puit de potentiel n'existant que pour des valeurs en dessous de la barrière de potentiel (E=0). En 1929, Van Neumann et Wigner [24] démontrent qu'un état lié peut également exister dans un continuum, c'est-à-dire au-dessus de la barrière de potentiel comme illustré sur la figure 1-7(a). Sur cette figure, le spectre de fréquence est constitué d'un continuum d'états étendus, et des niveaux discrets d'états liés. L'état lié est localisé spatialement soit par le confinement dû à la structure ou par un puit de potentiel. Un état situé dans le spectre du continuum se couple aux états étendus provoquant des fuites par résonnance. Les états liés dans un continuum résident dans ce continuum en restant localisés sans radiation [25]. La première investigation d'un état lié dans un continuum a été revendiquée par Capasso *et al.* [26] dans un semi- conducteur hétéro-structuré pour la première fois. D'autres manifestations de ce phénomène ont été rapportées en mécanique, électronique et dans les cristaux photoniques.

En photonique cette manifestation est rapportée pour la première fois par Couny et al. en 2007 [10] dans une PCF à maille Kagomé. Ici, la lumière guidée est piégée dans le cœur de la fibre et se comporte comme un état quasi-lié dans un continuum d'états. En effet, les ponts de silice supportent un continuum de modes avec une oscillation rapide de la phase transverse. Cette dernière est définie par le nombre azimutal *m*, plus il est important plus les oscillations de la phase transverse sont rapides. Cela induit une incompatibilité entre la phase transverse de la gaine (oscillation rapide) et celle du cœur (oscillation lente) et donc un recouvrement quasi nul. Ceci peut être exprimé par le produit scalaire de la phase transverse du mode de cœur et celui du mode de gaine qui tend vers 0 ($\langle \varphi_{core} | \Delta n^2 | \varphi_{clad} \rangle \rightarrow 0$) où Δn est le profil d'indice transverse. Ainsi, afin d'exacerber l'inhibition du couplage entre les modes de gaine et de cœur il faut jouer sur les champs de ces derniers dans le but d'augmenter le désaccord de la phase transverse et réduire leur recouvrement optique. Une autre manifestation de ce phénomène dans ces structures apparaît lorsque la symétrie est brisée par une perturbation (défaut dans la structure). Cette dernière fournit une voie de couplage entre les modes discrets et des modes du continuum induisant une résonnance Fano [27].

Dans les HCPCF une structuration particulière de la maille est requise. La maille Kagomé rapportée pour la première fois en 2002 [8] possède cette fonction. Ainsi la très large bande de transmission associée à des pertes linéiques aussi faibles intriguent en vue des modèles existants. En effet, ces derniers ne peuvent expliquer de si faibles pertes ou décrire le contenu modal de la gaine. Comme dit précédemment, ce n'est qu'en 2007 [10] que le concept du IC est apparu grâce à une analogie faite avec la théorie de Van Neumann et Wigner dans le contexte de la mécanique quantique [24]. La particularité de ce mécanisme étant la possibilité de guider un mode de cœur avec le même indice effectif que les modes de gaine grâce à un désaccord de la phase transverse. Des arrangements de la micro structure en carré ou encore en nid d'abeilles comme les BIP à cœur creux permettent également de guider sur de larges plages fréquentielles grâce à l'IC [28]. Ce régime s'appelle régime large pitch où une cellule élémentaire suffit pour décrire le spectre modal de la gaine. En se basant sur la compréhension de ce mécanisme, un cœur hypocycloïdal a été introduit en 2010 [29] dans la structure des Kagomé afin d'exacerber l'inhibition du couplage entre les modes de cœur et de gaine. A partir de cette architecture, une réduction drastique des pertes est rapportée avec de nouveaux records sur une large gamme fréquentielle passant de valeur de 1000 dB/km [8] à 17 dB/km en 2013 à 1030 nm [30]. La dépendance des pertes à la courbure négative démontrée de manière théorique et expérimentale est un fort indicateur physique du découplage entre les modes de cœur et de gaine de l'IC. Une structure découlant de l'introduction du contour hypocycloïdal, et alternative à la maille Kagomé montrant à la fois un contour de cœur hypocycloïdal et une forte réduction des nœuds, est la maille tubulaire [31]. La première fabrication d'une fibre creuse à gaine tubulaire a été publiée par Pryamikov et al. en 2011 [32]. Dans ce cas l'arrangement de la maille est composée de tubes de silice isolés (nommé ici maille tubulaire). Le profil étudié est un arrangement de 8 tubes adjacents de silice très épais (4,3 µm) dans le but de guider dans le moyen IR avec des pertes inférieures à celle de la silice dans cette gamme spectrale. Par la suite de nombreux groupes de recherche ont investigué ce type de structure avec un nombre différent de tubes, d'épaisseurs de silice, de taille de cœur et même de forme de tube de manchonnage. De faibles pertes dans le NIR et le MIR ont alors été démontrées. Kolyadin et al. ont ainsi fabriqué une fibre avec 8

tubes obtenant des pertes de 50 dB/km entre 3 et 4 μ m [33]. De même, en 2014 Wang *et al.* [34] obtiennent des valeurs à 100 dB/km à 3,1 μ m pour une structure à 10 tubes. Puis, Uebel *et al.* développent une fibre à 6 tubes tenus par une forme de tube de manchonnage hexagonale lui permettant d'obtenir des pertes de 180 dB/km à 1600 nm. En 2016, Michieletto *et al.* [35] rapportent 30 dB/km à 1090 nm avec une gaine à 7 tubes puis Hayes, la même année, 25 dB/km à 1200 nm. Nous pouvons noter que l'évolution des performances des HCPCF IC est liée à celle du contour du cœur (figure 1-7(f)). Lors de cette thèse de telles fibres ont été conçues et réalisées pour atteindre des valeurs records dans l'UV-VIS. Ces travaux sont décrits dans le prochain chapitre.







Figure 1-7 : (a) Représentation schématique d'un état lié dans un continuum. (b) Densité d'états photonique d'une structure Kagomé (c) et (d). Nature des modes d'une fibre Kagomé pour différentes fréquences normalisées du diagramme des densités d'états. (e) Profil d'intensité d'un mode de cœur et de gaine au même n_{eff}. (f) évolution du cœur des HCPCF-IC

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

d) Propriétés modales des HCPCF

Ci-dessus nous avons discuté des propriétés de la gaine des fibres micro-structurées, et comment un dessin judicieux de ces microstructures permettait de structurer le spectre modal de la gaine. Elle détermine le mécanisme de guidage et influe directement sur les propriétés modales du cœur. Dans cette section nous nous focalisons sur ces dernières.

Tout d'abord, les modes de cœur des HCPCF guidant par BIP ou IC sont similaires à celui d'un capillaire [36] vis-à-vis de la distribution du champ dans le cœur et de l'évolution de l'indice effectif du mode. Cependant, comme nous pouvons voir sur la figure 1-8(a) cette évolution dans le cas de la HCPCF BIP diffère particulièrement sur les bords de la bande de transmission formant un S caractéristique. Ceci est la conséquence de l'anti-croisement entre le mode de cœur HE₁₁ et les modes de surface ou de gaine dont nous avons parlé lors de la description de la gaine de la BIP. Cette hybridation proche d'un anti-croisement induit un couplage d'une fraction du mode de cœur dans la silice plus élevée. Dans le cas des HCPCF IC, une discontinuité existe aux fréquences où les modes longitudinaux du mode de cœur couplent aux modes de gaine.

D'autres différences modales résident entre ces mécanismes de guidage. La première est directement reliée au n_{eff}, la GVD, qui est de l'ordre de 100 fois supérieure dans le cas d'une BIP par rapport à l'IC comme nous pouvons le voir sur la figure 1-8(b). Le contenu modal pour une BIP est monomode grâce à son faible MFD situé entre 4 et 15 μ m typiquement mais perturbé par des modes de surface alors que pour une IC ces modes de surface n'existent pas et le contenu modal est quasi-monomode. Il est important de noter qu'en augmentant la longueur de ce type de PCF un nettoyage modal s'effectue améliorant le caractère monomode de la fibre [37].

Le dernier aspect, et non des moindres, est le recouvrement optique entre le mode de cœur et la gaine définie par le terme *F* donné par l'équation suivante :

$$F = \left(\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}\right)^{\frac{1}{2}} \frac{\oint dl \, |E|^2}{\oint dA \, E * H^* \cdot \hat{z}}$$
 Eq. 1-3

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

BY-NC-ND





Figure 1-8 : (a) Evolution de l'indice effectif en fonction de la longueur d'onde pour un capillaire (courbe rouge), une HCPCF de type IC (courbe verte) et d'une HCPCF BIP. (b) Comparaison du n_{eff}, de la GVD et du spectre de transmission d'une BIP et des IC.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

BY-NC-ND

Où ε_0 est la permittivité diélectrique du vide, μ_0 est la perméabilité du vide, E et H sont la distribution du champ électrique et magnétique du mode fondamental, et \hat{z} est le vecteur d'unité le long de la fibre. Pour les HCPCF BIP ce recouvrement (F) est compris entre 0,1 et 1%. Cette dépendance est proportionnelle à $1/\lambda^3$ due à la diffusion de la lumière par les inhomogénéités à toutes les échelles de longueurs limitant les performances de pertes de ces fibres [38]. Le découplage entre les modes de gaine et de cœur dans le cas de l'IC induit des recouvrements optiques aussi bas que quelques ppm surmontant théoriquement la limite des BIP quant à la réduction des pertes [15]. Par la même occasion, ce faible recouvrement ouvre la voie à des applications utilisant de hautes énergies.

Les fibres IC semblent avoir des propriétés plus avantageuses que celles de la BIP. Cependant, comme nous allons le voir au cours de cette thèse, suivant le type de conversion Raman voulu ces deux HCPCF exhibent des avantages et des désavantages. Les différentes propriétés des HCPCF BIP et IC sont synthétisées dans le tableau 1-1.

	BIP	IC	
MFD (µm)	4-15	15-95	
Contenu modal	Quasi monomode + modes de surfaces Quelques modes		
F	0,1 à 1 %	1 ppm	
GVD (ps/km/nm)	-250 < x < 250	-2,5 < x < 2,5 (typiquement 1 ps/km/nm)	
Largeur de bande de	Mono-bande	Multi-bande	
transmission (THz)	70	1000	

Tableau 1-1 : Différences notoires entre les HCPCF BIP et les IC.



3. Génération de la diffusion Raman stimulée dans les HCPCF

La diffusion Raman est définie comme une diffusion inélastique à deux photons d'un faisceau laser par l'excitation moléculaire du milieu Raman. Il en résulte une fréquence décalée de la fréquence Raman du milieu (ω_R) vers le rouge nommée fréquence Stokes (ω_s) et une décalée vers la fréquence bleue, l'anti-Stokes (ω_{as}). Ce phénomène étant cumulatif, sa génération sera d'autant plus importante que la distance d'interaction est longue, d'où l'intérêt des HCPCF.

En témoigne les résultats présentés dans le graphique 1-9 où est tracé le seuil d'énergie nécessaire est tracé pour la génération du premier Stokes en fonction de la largeur temporelle d'impulsion dans une fibre HCPCF. En pointillés rouge est représenté le seuil théorique d'énergie pour l'état transitoire et en pointillé noir celui de l'état stationnaire. Les points noirs représentent les résultats expérimentaux. A partir d'une largeur d'impulsion de 13 ns le gain Raman bascule en régime stationnaire. Un autre point à noter est le besoin d'augmenter l'énergie lorsque l'impulsion s'élargit pour générer le premier Stokes comme prédit par la théorie.



Figure 1-9 : Seuil d'énergie nécessaire à la génération du Stokes de premier ordre vibrationnel en fonction de la largeur d'impulsion [11].

Enfin, comme remarqué précédemment, un état transitoire ou stationnaire Raman dans une fibre à cœur creux peut être généré à des seuils d'énergie ultra-bas grâce à

l'augmentation de la longueur d'interaction et son confinement sur des surfaces micrométriques. En effet, dans une configuration conventionnelle la puissance nécessaire est de l'ordre du MW avec des durées d'impulsions en ps. Avec les fibres à cœur creux il est possible d'être en régime transitoire pour des durées d'impulsion beaucoup plus longues avec des puissances bien plus faibles, une énergie de moins de 100 nJ suffit typiquement pour générer le Stokes.

Les nombreux résultats saillants de la prochaine section corroborent le différenciant qu'offre les HCPCF pour la DRS.

4. Etat de l'art du Raman dans HCPCF

Comme nous avons pu voir, les fibres à cœur creux permettent d'exacerber l'interaction laser-gaz grâce au confinement du gaz sur de petites aires effectives et sur de longues distances. Les fibres BIP offrent une conversion de fréquence sur des plages de fréquence étroites permettant de filtrer les transitions vibrationnelles. A contrario, la large fenêtre de transmission des fibres à IC en font un outil de choix pour générer des peignes de fréquences.

La première démonstration de la génération de diffusion Raman stimulée à seuil ultra-bas a été faite dans la première fibre Kagomé publiée en 2002 par Benabid *et al.* [8] illustrée par la figure 1-10(a). La fibre remplie d'hydrogène a été pompée à une longueur d'onde de 532 nm avec une durée d'impulsion de 6 ns. Son seuil de génération Raman était en dessous du micro-Joule et l'efficacité de conversion atteinte était de 30%. La fibre à cœur creux est alors devenue depuis ces travaux pionniers une plateforme pour obtenir des effets non-linéaires à basse énergie.

Avec un laser à 1061 nm et une durée d'impulsion de 0,8 ns, l'efficacité de conversion de la pompe au Stokes rotationnel du premier ordre atteint 92% en 2004 [39].





Figure 1-10 : (a) Image MEB de la première fibre à maille Kagomé et les champs lointains des Stokes générés [8]. (b) Génération en régime continu du Stokes du premier ordre rotationnel à la limite quantique [9].

L'année suivante, l'observation expérimentale du passage du régime transitoire au régime établi avec une impulsion aussi large que 14 ns est faite dans une fibre BIP remplie d'H₂ pour une énergie de 150 nJ [11].

En 2007, Couny et al. [9] démontre un seuil de génération Raman sub-Watt dans une HCPCF BIP remplie d'H₂ en régime continu. De plus, la limite quantique de conversion Raman est atteinte (99,99%) comme nous pouvons le voir sur la figure 1-10 (b).

Un laser avec une durée d'impulsion de 12 ns à 1061 nm injecté dans une fibre Kagomé toujours remplie d'H₂ a permis à Couny et al. en 2007 [10] de générer un peigne Raman sur 3 octaves couvrant la plage spectrale de 332 nm à 2,3 µm (voir figure 1-11 (a)).

Grâce à ce peigne, Wang et al. [40] démontre en 2010 l'auto-cohérence et la cohérence mutuelle des composantes spectrales de ce dernier (voir figure 11(b)). Cette démonstration a été faite en générant un peigne dans chaque bras d'un système interférométrique Mach-Zender permettant d'observer les interférences des différentes lignes Raman séparément et entre elles. Ces travaux montrent qu'une forte auto-cohérence existe et donc qu'un seul mode spatio-temporel est sélectionné du champ multimode du vide (voir [41] pour plus de détails). La génération d'un

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

peigne optique ultra large dans ces fibres ouvre la voie aux impulsions dans le régime atto-seconde avec des propriétés non classiques ou encore à la synthèse d'onde.

(a)



Figure 1-11 : (a) Génération d'un peigne Raman sur 3 octave en régime d'impulsion ns pour une polarisation incidente linéaire et rotationnelle [10]. (b) Démonstration de la cohérence et l'auto-cohérence entre les composantes des peignes Raman [40].

Enfin, en 2015, Benoît *et al.* [42] utilise un laser pico-seconde (27 ps) avec un haut taux de répétition (1 MHz) afin d'augmenter la filtration des modes temporels (voir [43] pour plus de détails). Le peigne généré couvre alors la gamme de longueur d'onde de 321 nm à 12,5 µm représentant 5 octaves (voir figure 12).

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018



Figure 1-12 : Peigne Raman généré sur plus de 5 octaves en régime ps [42].

La chronologie de ces résultats est liée à l'amélioration des performances des lasers mais également à celle des fibres. En effet, nous avons vu que le facteur de mérite dépend de la longueur effective de l'interaction laser-gaz elle-même déterminée par les pertes par transmission.

5. Objectifs de la thèse

Les travaux de thèse puisent dans l'état de l'art décrit ci-dessus. Ils se déclinent en deux axes afin d'exploiter la capacité des fibres creuses pour développer des sources : performantes, versatiles et/ou exotiques pour l'industrie et la recherche.

a) Convertisseur de fréquence et source peigne à base de HCPCF

Le premier de ces deux axes concerne le développement de sources laser à multiples lignes d'émission dans la gamme spectrale du visible et de l'ultraviolet, et remplissant le cahier des charges nécessaire pour une commercialisation. Ces sources sont basées sur la production d'un peigne de fréquence optique via la génération de DRS dans une HCPCF remplie d'un gaz Raman. Cet axe est la continuité des travaux précédents initiés au sein du groupe de recherche GPPMM et la société GLOphotonics, qui ont démontré la faisabilité de la génération d'un peigne Raman pompé avec un laser compact émettant à 532 nm.

b) Vers un générateur de fonctions d'ondes optiques

Le deuxième axe porte sur une nouvelle source qui révolutionnerait le monde de la photonique, une source permettant de générer n'importe qu'elle forme d'onde optique de manière similaire à l'électronique. Dans ce but, un peigne Raman en régime CW serait idéal et réalisable grâce aux HCPCF. Le premier jalon majeur vers l'avènement de ce synthétiseur est traité avec l'obtention d'un laser Stokes à haute puissance et faible largeur de bande. Une physique riche et dense découle de la génération de ce Stokes que nous passerons en revue tant sur le plan théorique qu'expérimental.

6. Conclusion

Mon manuscrit de thèse sera organisé en trois parties majeures sous divisés en chapitre dont le contenu est résumé ci-dessous :

La première partie sera dédiée à la conception et au développement de nouvelles fibres avec des performances à l'état de l'art, plus particulièrement des fibres IC avec une maille tubulaire. Nous verrons que la théorie des fibres à IC a permis de dégager une boîte à outil permettant de concevoir et de fabriquer des fibres avec des performances record du proche IR à l'UV. En effet, des pertes aussi basses que la limite de la diffusion Rayleigh de la silice sont atteintes dans le vert et l'UV. L'étirage d'une telle fibre sur 1 km de longueur a démontré la stabilité de notre procédé. Afin de conclure sur cette première partie. Un dernier chapitre conclura sur la manière et l'intérêt de fonctionnaliser de telles fibres en PMC avec deux exemples représentatifs réalisés lors de cette thèse.

La deuxième partie traitera justement de la fonctionnalisation de ces fibres afin de réaliser un convertisseur de fréquence pour l'industrie. Ce développement diffère des autres PMC vue que la silice est perméable à l'H₂ utilisé comme gaz actif Raman. Un travail d'ingénierie sera effectué afin de confiner le gaz dans la fibre afin

d'augmenter le temps de vie d'un tel composant. Le but étant de transférer cette technologie si prometteuse en laboratoire à l'industrie. Deux fibres et micro-chips différents seront utilisés afin de générer des peignes dans l'UV et dans le visible. Enfin, une autre pompe à fréquence réglable sera utilisée afin d'obtenir un peigne dans le visible. Cette configuration amène au dernier chapitre où une étude systématique sera faite avec un cytomètre.

La troisième et dernière partie portera sur un travail plus en amont vers la réalisation d'un synthétiseur d'onde optique à base de HCPCF remplie d'H₂. Le premier étage d'un tel synthétiseur consiste en la conversion de fréquence au Stokes rotationnel du premier ordre afin de conduire le processus de modulation moléculaire dans un second étage. A cet effet, un laser CW sera utilisé comme pompe pour une stabilité accrue du synthétiseur. De cette conversion découlera une nouvelle dynamique où la DRS est conduite en régime Lamb-Dicke. Cette dernière ouvre la voie à une nouvelle plateforme technologique pour la recherche fondamentale.



Partie I











Chapitre 2. Conception et réalisation de PCF à cœur creux.

Dans ce second chapitre nous allons étudier l'influence des divers paramètres géométriques de l'architecture des fibres HCPCF à IC sur les performances de guidage. Les lois d'échelles déterminées lors de cette description permettront de concevoir et réaliser des fibres à maille Kagomé et tubulaire avec des pertes record dans l'UV-VIS et proche IR. Nous verrons également la limite actuelle afin de continuer à réduire ces valeurs de pertes.



1. Introduction

Ce chapitre a pour objectif de présenter les différents travaux de conception et de fabrications des HCPCF. Lors de cette thèse, trois designs de fibres creuses ont été réalisés.

Une première étape a consisté à optimiser les fibres HCPCF à maille Kagomé. La compréhension théorique de son mécanisme de guidage par IC depuis 2007 [10] a permis de réduire drastiquement les pertes de transmission de celle-ci jusqu'à 17 dB/km [37] en 2013. Un meilleur contrôle du procédé de fabrication et un ajustement fin de l'architecture du diélectrique de la gaine ont permis lors de cette thèse de développer une fibre Kagomé présentant des pertes record de 8.5 dB/km à 1030 nm [44]. Une campagne de caractérisation linéaire complète (pertes, contenu modal par S2, comportement en polarisation) a été conduite et sera présentée dans ce chapitre.

Dans un second temps, une part importante de ces travaux de thèse a porté sur le développement d'un nouveau type de fibre à cœur creux dicté par le même principe de guidage, basé sur une maille « tubulaire » [32]. Cette configuration présente l'intérêt majeur de conserver un contour de cœur hypocycloïdal avec une forte courbure tout en supprimant les zones d'attaches entre les tubes, qui est préjudiciable dans l'efficacité du confinement du mode de cœur guidé (ces nœuds de silice étant porteurs de modes avec un faible nombre azimutal) [37]. Un travail théorique a été mené afin de dégager les paramètres géométriques clés pour obtenir un guidage le plus efficace, à savoir un comportement le plus monomode possible avec des pertes de transmission les plus basses. Une étude expérimentale systématique a été réalisée confirmant les lois d'échelle dégagées lors de la partie théorique. Ces travaux ont débouché sur la réalisation de la première fibre à cœur creux tubulaire avec 8 tubes avec des pertes de propagation passant sous la barre des 10 dB/km autour de 780 nm. Ce design a permis de tendre à des pertes de transmission efficaces sur un domaine spectral d'intérêt, l'UV-VIS pour certains travaux de cette thèse à savoir la conversion de fréquence par DRS. Une seconde fibre « large bande » présentant des pertes de 21 dB/km sur 1 octave a été fabriquée.



Puis, une fibre basée sur une gaine à 9 tubes a été étirée sur une longueur atteignant 1 km mettant en évidence la stabilité de notre processus de fabrication. De plus, des pertes de transmission record dans le vert et l'UV sont obtenues.

Enfin, une fibre HCPCF BIP a été réalisée afin de mener les expériences de CW Raman présentés dans la dernière partie (partie III) de ce manuscrit. Nous ne reviendrons par sur les lois d'échelles de ce type de fibre déjà bien renseignées dans la littérature et présenterons uniquement la fabrication et les caractéristiques linéaires de cette fibre.

2. Fabrication par la méthode Stack and draw

Toutes les fibres présentées dans ce chapitre reposent sur une méthode de fabrication dite par « Stack-and-draw » ou « assemblage-étirage » décrite par la figure 2–1. Dans un premier temps, des capillaires sont étirés à partir de tubes de silice pure dont l'épaisseur est choisie en fonction du ratio final air-silice désiré. De premiers capillaires sont assemblés pour former la structure de la gaine et du cœur sur un banc dédié à cet effet. Une fois cet assemblage fait, la structure composée de capillaires est insérée dans un tube de manchonnage préalablement choisi. Suivant le nombre de défauts de cœur voulu (1, 7 ou 19 capillaires) le ou les capillaires du centre sont retirés sur une certaine distance. Enfin, d'autres capillaires de plus faibles dimensions servant de cales sont introduits entre la structure assemblée et le tube de manchonnage pour venir stabiliser l'ensemble.

Cette préforme dite primaire est étirée en « cannes » d'environ 3,5 mm de diamètre et d'un mètre de long. La dernière étape consiste à retirer ces cannes re-manchonnées dans un tube appelé « jacket » permettant de rajouter de la silice et de les tirer en fibre de quelques centaines de µm de diamètre. Lors de cette procédure, une gestion de gaz et de vide est nécessaire. En effet, la gaine et le cœur sont pressurisés de manière indépendante afin de contrôler au mieux ces paramètres et de donner au contour du cœur la forme voulue. Le vide est fait entre le tube et la canne afin de supprimer la zone d'air.





Figure 2-1 : Schéma de la méthode de fabrication par stack and draw.

3. Fibres à couplage inhibé à maille Kagomé

La maille élémentaire d'une fibre Kagomé est formée de deux triangles reliés par leur sommet respectif. Contrairement aux fibres BIP les nœuds reliant la microstructure ne sont pas constitués de larges plots de silice et le pitch est beaucoup plus grand (typiquement autour de 20 μ m). Les différentes photos MEB sur la figure 2-2 présentent la géométrie typique d'une fibre Kagomé hypocycloïdale et illustrent les différents paramètres clés : le rayon du cœur (*R*_{CO}), le pitch (Λ), la courbure du contour du cœur (b), l'épaisseur des ponts (t), le nombre d'anneaux constituant la gaine.



Figure 2-2 : Image MEB d'une fibre Kagomé typique indiquant les paramètres géométriques d'une maille Kagomé. (a) La taille du cœur R_{CO} et le pitch Λ (b) la courbure négative b. (c) l'épaisseur des ponts t.

Nous allons maintenant voir comment architecturer la micro structure de ces fibres

pour répondre au mieux aux critères du IC.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

CC BY-NC-ND

Pour cela, nous allons jouer sur les différents paramètres clés. Leur influence théorique est décrite dans cette section.

a) Outils conceptuels pour exacerber l'IC avec une maille Kagomé

i. Forme du contour de cœur

La compréhension du principe du IC appliquée aux fibres a permis d'introduire en 2010 [45] un contour de cœur hypocycloïdal (ou encore dit à courbure négative) aux fibres Kagomé afin de diminuer le recouvrement entre les modes de gaine et de cœur. Cette forme peut être obtenue lors de l'étirage par un jeu de pression adéquat entre le cœur et la gaine.

Dans un premier temps définissons la courbure négative. Comme présenté précédemment, le contour du cœur résulte de 7 cellules manquantes (dans cet exemple) dans l'arrangement triangulaire des tubes de silice. Ainsi, le contour de cœur se distingue par une alternance de deux types d'arcs (voir figure 2-3(a)). Deux cercles peuvent être définis à partir de ces arcs étant plus ou moins avancés vers le centre de la structure, un avec un rayon *R*_{in} tangent avec les 6 arcs les plus avancés et un cercle de plus grand diamètre avec un rayon R_{out} tangent avec les 6 arcs les plus reculés. La courbure négative est définie par le paramètre *b* déterminé comme le ratio entre la hauteur *d*, définie par la distance de la perpendiculaire entre la ligne reliant deux nœuds de connexion et le sommet du dôme tangent avec R_{in} , et la moitié de la longueur de cette ligne r. Lorsque b = 0, les arcs sont donc des droites et le contour du cœur présentant une forme polygonale. Ce contour est caractéristique des premières fibres Kagomé développées dans la littérature [46]. Pour un b = 1, un contour hypocycloïdal apparaît, les arcs rentrants prenant une forme elliptique et les arcs les plus en retrait ayant une forme circulaire. Il est important de noter qu'il est en pratique compliqué d'obtenir un b > 1.

L'influence de ce *b* est illustrée sur la figure 2-3(b) où une fibre Kagomé avec une gaine à 3 couches et un défaut de 7 cellules avec un b=1 est comparé schématiquement avec une fibre identique mis à part la forme du cœur qui est polygonale.





Figure 2-3 : (a) Définition de la courbure négative *b*. (b) Illustration géométrique du bénéfice de la courbure négative. (c) Evolution du nombre azimutal et du périmètre du contour de cœur en fonction du paramètre *b*. (d) Evolution du contenu modal et des pertes par confinement avec le *b*.

Le premier bénéfice porté par le contour à courbure négative est une réduction du recouvrement spatial entre le mode de cœur et le contour de silice. En effet, avec un pourtour polygonal le mode de cœur recouvre quasiment tout le périmètre de silice. A l'inverse, le contour hypocycloïdal réduit l'intersection du champ du mode HE11 avec le contour du cœur à 6 zones tangentielles. Deuxièmement, en regardant la zone (1) caractérisant le profil du mode du contour de cœur, de grands arcs permettent d'augmenter le périmètre de silice et donc *m*. Ainsi, l'intégrale de recouvrement entre les modes de gaine et de cœur est atténuée. Enfin, la zone (2) met en avant le fait que les nœuds de connections porteurs d'un faible *m*, et donc source de couplage avec le mode de cœur, sont repoussés loin du mode de cœur guidé.

Avant les travaux de cette thèse, le groupe de recherche GPPMM a mené une étude systématique expérimentale et théorique afin de mieux comprendre et quantifier l'importance de la courbure de ces arcs entourant le cœur sur le IC [37].

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

L'oscillation de la phase transverse des modes quantifiée par le nombre azimutal m représenté sur la figure 2-3(c). Les courbes démontrent qu'en augmentant la courbure négative, la phase transverse du mode de la silice oscille de plus en plus rapidement.

$$m = n_{eff} \left(\frac{l}{\lambda}\right) \left(1 - \pi \left(\frac{t}{l}\right)\right)$$
 Eq. 2-1

Avec n_{eff} l'indice effectif, λ la longueur d'onde, t l'épaisseur des ponts et l le périmètre du contour de cœur. Le paramètre clé de cette augmentation est le périmètre du contour du cœur, plus ce périmètre croît plus le m (défini par l'équation 2-1) est important. La conséquence est une exacerbation de l'inhibition entre le mode de gaine et de cœur avec donc une diminution des pertes par confinement. Les pertes pour différentes valeurs de courbure négative ont été calculées numériquement et mesurées expérimentalement [37]. Comme il est possible de voir sur la figure 2-3(d), qui considère les pertes à 1500 nm, les simulations prédisent une décroissance exponentielle pour une fibre idéale passant de 1000 dB/km pour un b = 0 à des valeurs de pertes proches de celles des télécoms pour un b = 1 avec 1 dB/km.

Un autre avantage saillant de l'augmentation de la courbure négative est la plus forte suppression de modes d'ordre élevé lors de la propagation dans la fibre par discrimination des valeurs de pertes en comparaison avec le mode fondamental. La figure 2-3(d) illustre ce comportement en montrant l'évolution de pertes des différents modes numériquement calculée à une longueur d'onde fixe de 1 μ m pour différents *b*. En effet, contrairement au mode fondamental qui voit une diminution de ses pertes par confinement en augmentant le *b*, les quatre premiers modes d'ordre supérieur (les deux polarisations du mode HE₂₁, TE₀₁ et TM₀₁) voient une augmentation des pertes pour des *b* supérieurs à 0,5. Le ratio d'extinction entre le mode fondamental et les modes d'ordres élevés passe alors de 0 dB pour un *b* inférieur à 0,5 à 7 dB pour un *b* égal à 1.

Maintenant que l'importance de la courbure négative dans la réduction des pertes a été démontrée, nous allons regarder l'influence de l'épaisseur des ponts.

ii. Epaisseur des ponts de silice

Comme nous avons pu le voir l'épaisseur des ponts (*t*) joue un rôle primordial quant aux fréquences guidées par la fibre par simple effet de résonance. Elle a aussi une influence sur les pertes par confinement de la fibre. En effet, plus les ponts sont fins plus le recouvrement optique entre la silice et le mode de cœur diminue par l'augmentation de *m* comme le montre l'équation 2-1. Cela conduit à la réduction des pertes par confinement.

Les fibres IC ayant plusieurs fenêtres de transmission, elles présentent donc différentes fréquences de coupures définies par :

$$\lambda_l = \frac{2t}{(l-1)}\sqrt{n^2 - 1}$$
 Eq. 2-2

Avec *l* représentant l'ordre de la bande, *t* l'épaisseur de pont, *c* la vitesse de la lumière et *n* l'indice de réfraction de la silice. La largeur des bandes de transmission s'exprime par l'équation suivante :

$$\Delta v = \frac{c}{2t\sqrt{n^2 - 1}}$$
 Eq. 2-3

Avec ν la fréquence optique, Nous pouvons constater qu'en diminuant l'épaisseur des ponts nous avons la capacité d'accroître la largeur de la fenêtre spectrale utile. Les pertes par confinement ont été calculées numériquement grâce au solveur modal utilisé dans [47] pour différentes épaisseurs pour une fibre Kagomé présentant un diamètre de cœur de 45 µm et un *b* égal à 1. Ces pertes sont présentées sur la figure 2-4(a) en fonction de la fréquence normalisée *F* définie par ;

$$F = 2t\sqrt{n^2 - 1}$$
 Eq. 2-4

Nous observons une forte réduction des pertes par confinement lorsque l'épaisseur des ponts est réduite de 1400 à 300 nm. En effet, elle diminue de plus de 4 ordres de grandeurs.

Sur la figure 2-4(b), ces pertes ont été approximées pour extraire une loi d'échelle de l'évolution des pertes par confinement en fonction de l'épaisseur t, de b et de la

longueur d'onde. Les pertes par confinement ont été normalisées par $t.\lambda^{4,3}$ et tracées comme $\alpha_{CL}/(A.t.\lambda^{4,3}.b^{-2})^{-1}$ en fonction de *F* pour un *b* égal à 1. *A* est une constante de normalisation définie par $(1/800) \times (1/1750)^{4.3}$. Les courbes se superposent de manière identique à 20% près démontrant que les pertes par confinement sont proportionnelles à $t.\lambda^{4,3}$.

Ainsi plus l'épaisseur est fine, plus les pertes par confinement sont faibles. Cependant, la fluctuation de l'épaisseur relative pour des petites épaisseurs est plus importante impliquant un élargissement spectral des zones de fortes pertes et donc une réduction de la fenêtre spectrale de transmission.

Il est également important de noter que plus l'épaisseur sera fine plus il sera compliqué d'obtenir des *b* se rapprochant de 1 due à une tension de surface plus élevée lors de l'étirage de la fibre, comme nous allons le voir dans la section suivante.







Figure 2-4 : (a) Pertes par confinement calculées pour un *b*=1 avec des *t* de 300-1400 nm par rapport à la fréquence normalisée. (b) Pertes par confinement normalisées par l'équation $t.\lambda^{4,3}$.

b) Réalisation de Fibres à maille Kagomé

i. Etude systématique

Les pertes de transmission record du précédent état de l'art se situent sur une bande étroite (50 nm de largeur) pouvant être un frein à certaines applications naissantes [46]. Cette faible largeur de bande résulte du fait que le guidage à 1 μ m pour cette fibre se fait dans une bande d'ordre élevée, les ponts de silice étant relativement épais (1,4 μ m pour rappel). Une étude systématique expérimentale a donc été menée lors de ces travaux de thèse afin d'élargir la bande de guidage tout en essayant d'améliorer les pertes. Comme nous avons pu observer précédemment plusieurs conditions sont nécessaires pour tendre vers des fibres plus performantes :

- Affiner les ponts de silice du contour du cœur et de la gaine.
- Obtenir une courbure négative du contour du cœur proche de 1.

Le défi est donc ici d'affiner les ponts de silice tout en maintenant une forte courbure négative ce qui fait face à des limites rhéologiques lors du fibrage. En effet, plus les ponts sont fins plus la tension de surface est importante, d'où la difficulté de les gonfler. Six fibres ont été fabriquées avec des *t* variant de 800 à 300 nm avec un pas de 100 nm. Pour chaque fibre une mesure de pertes par cut-back a été effectuée sur

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

100 m de fibre. Les pertes déduites sont tracées sur la figure 2-5. La courbe noire représente la bande de transmission fondamentale et la courbe grise celle de la première bande d'ordre élevée. Lorsque le *t* des ponts est affinée nous observons le décalage des bandes vers le bleu. La conséquence est une bande de transmission élargie avec des pertes réduites au-dessus de 1 μ m. En effet, nous pouvons voir que les pertes augmentent lorsque ces bandes sont décalées vers le bleu. Cette tendance provient des rugosités de surface induites lors du fibrage provoquant des sources de fuites de lumière. Comme nous pouvons le constater, l'accroissement de ces pertes est exponentiel lorsque la longueur d'onde diminue. Nous pouvons retrouver dans la littérature une évolution en $1/\lambda^4$ [48].



Figure 2-5 : Spectres des pertes mesurées pour des fibres fabriquées avec des épaisseurs de ponts différentes. Images MEB du cœur et du contour de cœur indiquant les tailles de cœur et les valeurs de b des différentes fibres fabriquées.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018



Figure 2-6 : Evolution du *b* des fibres fabriquées en fonction de l'épaisseur des ponts de silice. Pertes mesurées (courbe noire) et théoriques avec la structure des fibres fabriquées (courbe rouge) et fibres avec une structure idéale (courbe rouge pointillées).

Concernant la bande fondamentale, pour un *t* de 600 nm les pertes sont de 50 dB/km à 1600 nm et de 25 dB/km à 800 nm faisant de cette fibre une excellente candidate pour des applications utilisant un laser Ti:Sa. En réduisant *t* jusqu'à 300 nm, ces pertes descendent à 30 dB/km à 780 nm et des pertes en dessous 100 dB/km sur une gamme spectrale étendue (de 700 à 1200 nm). La fibre présentant les meilleures pertes est celle dont la courbure négative est la plus importante, c'est-à-dire celle avec des ponts de 800 nm. En effet, les pertes sont de 8,5 dB/km à 1 μ m sur 225 nm de largeur spectrale à 3 dB/km près. Excepté les pertes par diffusion, les différences de performances de ces différentes fibres peuvent également s'expliquer par la dégradation de la géométrie du contour du cœur (i.e. le *b* décroît) lorsque les ponts sont plus fins.

Sur la droite de la figure 2-5, les photos prises au MEB afin de mesurer le *b* de chaque fibre sont montrées. Bien qu'une attention particulière a été portée pour obtenir un *b* important, ce dernier décroît lors de la diminution de l'épaisseur des ponts de silice. L'évolution du *b* est tracée en fonction de l'épaisseur des ponts sur la figure 2-6. Le *b*

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

passe d'une valeur de 0,95 pour un t de 800 nm à 0,45 pour une épaisseur de 310 nm. Les pertes minimales de la bande fondamentale mesurées et simulées numériquement sont également représentées en fonction de t. La comparaison de ces deux courbes démontre qu'au-dessus de 600 nm d'épaisseur de ponts les pertes mesurées sont très similaires aux pertes par confinement simulées. La source dominante d'atténuation dans cette gamme spectrale est donc les pertes par confinement. Pour des épaisseurs en dessous de 400 nm les pertes mesurées sont approximativement plus de 10 fois plus élevées que les pertes simulées. Ce décalage est causé par les pertes par diffusion. La troisième courbe montre les pertes par confinement théorique pour une fibre présentant un b de 1 pour les différentes épaisseurs. L'impact de l'abaissement du b est clairement démontré ici où nous pouvons observer des pertes par confinement 2 fois plus élevées que les pertes théoriques pour une épaisseur de 700 nm et plus de 100 fois plus élevées pour une épaisseur de 300 nm.

La limitation est définie ici par une tension de surface plus élevée au niveau des nœuds. La répercussion est l'aplatissement des ponts de silice formant le pourtour du cœur due à une attraction de ces ponts vers les nœuds de connexion et donc un gradient de l'épaisseur de pont. Cette attraction ne peut pas toujours être compensée par une plus grande sur-pressurisation dans la gaine.

ii. Fibres au nouvel état de l'art

Nous pouvons faire ressortir de l'étude systématique présentée dans la section cidessus deux fibres fixant un nouvel état de l'art.

a. Fibre avec des pertes de 8,5 dB/km à 1030 nm

La première fibre démontrant des performances notables est celle dont l'épaisseur des ponts de silice est de 800nm. Son diamètre extérieur est de 320 μ m, son pitch est de 24 μ m et le diamètre de cœur de 59 μ m (voir la photo MEB de la fig.2-7(a)). Afin d'illustrer l'amélioration des propriétés optiques de cette fibre par rapport à l'ancien état de l'art, leurs courbes de pertes ont été superposées sur la figure 2-7(b) autour de 1 μ m. On remarque très clairement un élargissement de la fenêtre spectrale avec de





faibles pertes d'une dizaine de nanomètres à 225 nm. Un zoom sur les pertes est montré sur la figure 2-7(b).

Elle présente des pertes record de 8,5 dB/km à 1 μ m et une bande définie à moins de 3 dB/km de la valeur minimale sur 225 nm de large. Cette fibre dépasse les performances de l'ancien état de l'art grâce à une épaisseur de pont presque deux fois plus fine et à son *b* proche de 1.



Figure 2-7 : (a) Image du MEB de la fibre avec un zoom sur la courbure négative et l'épaisseur des ponts. (b) Transmission de la fibre record (courbe noir) et de l'ancien état de l'art (courbe en pointillée).

Une caractérisation linéaire plus complète de cette fibre a donc été menée.

Ses pertes aux courbures ont d'abord été mesurées sur un tronçon de 10 m couplé à la source super-continuum utilisée pour les différents cut-backs. Différents rayons de courbures sont appliqués allant de 20 à 2 cm. Pour chaque rayon de courbure, un nombre de tour différent est effectué de sorte à avoir une sensibilité aux courbures assez grande pour pouvoir discriminer sur l'analyseur les différentes courbes de transmission. Les pertes par courbure varient de 0,2 dB/tour pour un rayon de



courbure de 20 cm à 2,5 dB/tour pour 2,5 cm. Une délocalisation du mode transverse est observée pour des rayons de courbure plus petits.

Le contenu modal de cette fibre a été plus profondément quantifié grâce à deux techniques de caractérisation différentes, le rapport d'extinction de polarisation (PER) et le S² pour « spatially and spectrally resolved imaging of modal content » [49].

Le PER est calculé comme le ratio entre les puissances optiques sur chaque axe de polarisation et s'exprime par l'équation suivante :

$$PER = 10 \log_{10} \left(\frac{P_1}{P_2}\right)$$
Eq. 2-5

Avec P_1 la puissance sur l'axe rapide et P_2 la puissance sur l'axe lent. Pour le calcul de ce PER, un laser micro-chip à 1061 nm suivi d'une lame demi-onde est injecté dans la fibre. Une seconde lame demi-onde et un cube séparateur polarisé sont placés en sortie de fibre. La puissance de la lumière est mesurée par un puissance mètre aux niveaux des deux ports du cube.

Initialement les deux lames demi-onde sont tournées afin d'optimiser le ratio d'extinction de polarisation. Cette mesure a été reproduite tous les mètres sur un tronçon de 20 m (figure 2-8(b)). Le PER maximal obtenu est de 26 dB pour une courte longueur de fibre. Cette valeur se dégrade avec la longueur de manière linéaire avec une variation de 0,6 dB/m.

La deuxième technique utilisée est la technique du S². Cette technique consiste à mesurer une interférence spectrale grâce à la différence du délai de groupe ainsi que l'interférence spatiale entre les modes d'ordre élevés et le mode fondamentale se propageant dans la fibre.

L'étude a été faite en collaboration avec le CEA Cestas à Bordeaux. Le banc optique consiste en un laser réglable allant de 1010 nm à 1060 nm avec un pas de 40 pm. Il est suivi d'un atténuateur, et d'une lentille afin de coupler dans la fibre sous test. En sortie de la fibre on trouve une lame demi-onde, un cube polariseur ainsi qu'une caméra haute résolution. Le rayon de courbure de la fibre pour cette caractérisation a été fixé à 25 cm.



Figure 2-8 : (a) Pertes par courbure à 1030 nm théoriques (courbe pointillées) et expérimentales (courbe noire). (b) Evolution du PER en fonction de la longueur de la fibre. (c) S² de la fibre.

Les résultats sont présentés sur la figure 2-8(c) où la transformée de Fourier est tracée en fonction du délai de groupe. Cela permet de déterminer le multi path interference (MPI) correspondant à l'interférence entre le mode fondamental et les modes d'ordres élevés causée par leur trajet optique différent. Le mode LP₁₁ a un MPI de 20,2 dB de contraste d'extinction par rapport au mode fondamental. Le mode LP₀₂ a quant à lui un MPI de 14,3 dB. Ce mode peut être quasiment éteint en diminuant le rayon de courbure à 7,5 cm tout en gardant le MPI du LP₁₁ intact.

b. Fibre avec de faibles pertes sur une large bande

Nous nous intéressons ici à la fibre de la section 3b)i dont l'épaisseur des ponts est de 300 nm. Le diamètre du cœur est cette fois ci de 51 µm et le pitch est de 18 µm comme

montré sur la photo MEB de la figure 2-9(a). Comme précédemment les pertes sont superposées à l'ancien état de l'art. Nous pouvons constater l'amélioration des performances à 800 nm où les pertes sont 10 fois inférieures à la fibre précédente. De plus, la largeur de bande avec de faibles pertes qu'offre cette fibre va de 690 à 1300 nm, due à la combinaison de son épaisseur très fine et de son *b* élevé pour ce type d'épaisseur. Cette fibre présente des pertes de 30 dB/km à 700 nm et des pertes de moins de 150 dB/km de 690 à 1300 nm. La bande de transmission couvre une plage spectrale allant de 670 nm à une longueur d'onde dépassant la plage couverte par l'analyseur de spectre optique (figure 2-9(b)).



Figure 2-9 : (a) Image MEB du cœur avec un zoom sur la courbure négative et l'épaisseur des ponts. (b) Transmission de la fibre record (courbe noire) et celle de l'ancien état de l'art (courbe en pointillée).

La même campagne de caractérisation que la fibre de la précédente section a été effectuée. Concernant les pertes par courbure la même tendance est observée mise à part qu'elles sont plus basses (de 0,1 à 1,5 dB/tour). Nous pouvons expliquer cela par le fait que la bande de transmission étudiée est la bande fondamentale. Le PER est quant à lui de 14 dB. Concernant le S², le mode LP₁₁ a un MPI de 26 dB de contraste Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018 71

d'extinction par rapport au mode fondamental. A l'instar de la fibre précédente le mode LP_{02} a quant à lui un MPI de 13 dB.

En conclusion de cette étude systématique, nous avons pu voir l'influence de la courbure négative et l'épaisseur des ponts sur les pertes, ainsi que les limitations rhéologiques (tension de surface qui augment lorsque *t* diminue) lors de la fabrication de ces fibres. Elle permet de valider les outils conceptuels pour exacerber le IC dans les fibres à maille Kagomé déterminés dans la section précédente. Deux fibres découlent de cette étude systématique avec des performances permettant de fixer un nouvel état de l'art. Cependant, nous avons pu voir la difficulté rencontrée afin d'obtenir le même niveau de faibles pertes dans le visible avec une maille Kagomé. Le tableau 2-1 synthétise l'influence des différents paramètres géométriques clés.

	Paramètres géométriques	Lois d'échelles	Limitations
Coeur	Rayon du cœur (R _{CO})	Large Rco 7 IC	Si <i>Rco</i> trop grand guidage multimode
Gaine	Courbure négative (b)	b 🛪 IC	Limitations rhéologiques
	Epaisseur des ponts (t)	Diminution t	Rugosité de surface

Tableau 2-1 : Récapitulatif des lois d'échelles afin d'exacerber l'IC dans les fibres à maille Kagomé.

Nous allons voir dans la section suivante comment une autre structure de gaine basée sur une maille tubulaire va permettre d'améliorer les performances de guidage principalement aux courtes longueurs d'onde.

4. Fibres à couplage inhibé à maille tubulaire

Un important pan de cette thèse a porté sur le développement d'une nouvelle génération de fibres à cœur creux à couplage inhibé.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018


La structure de la fibre développée et présentée dans cette section est composée d'un anneau de tubes de silice isolés tenus par une jacket de silice (figure 2-10(a)). Ainsi les plots de connections entre les capillaires sont supprimés contrairement à la structure Kagomé. Les tubes garantissent une courbure négative parfaite et le périmètre de silice au contour de cœur est agrandi grâce à la grande surface des tubes. Les différents paramètres géométriques sont représentés sur les photos MEB de la figure 2-10. Nous pouvons les lister comme le rayon du cœur (R_{CO}), le pitch (A), le rayon des tubes de la gaine (R_t), la distance inter-tube (δ), l'épaisseur des ponts (t), et le nombre de tube (N).



Figure 2-10 : Image MEB de la fibre indiquant les paramètres géométriques clés d'une maille tubulaire : (a) La taille du cœur, le rayon du tube et le pitch (b) l'espacement entre les tubes δ (c) l'épaisseur des ponts *t*.

Nous allons développer dans la prochaine section le mécanisme de guidage d'une telle structure de fibres, définir l'influence de ces paramètres géométriques sur le guidage, et déterminer les paramètres optimaux pour la fabrication de ces fibres.

a) Outils conceptuels

Le DOPS typique d'une maille tubulaire est présenté dans la figure 2-11. Nous pouvons constater qu'il est comparable à celui d'une maille Kagomé avec un quasi continuum de mode de gaine indiquant un guidage via IC. Une étude a été faite sur l'agencement des tubes de la gaine sur la structure du DOPS [50] indiquant une très faible influence sur ce dernier. En effet, nous travaillons ici dans le régime « large pitch » ($\lambda \ll \Lambda$) [51].





Figure 2-11 : DOPS d'une fibre à maille tubulaire.

Divers paramètres géométriques peuvent être finement contrôlés dans le but d'obtenir une fibre idéale pour répondre au mieux aux « règles d'or » du IC. Le premier est la taille du cœur R_{co} . L'augmentation de ce rayon permet de diminuer les pertes par confinement, ces dernières étant proportionnelles à R_{co}^{-4} . Cependant, si ce rayon devient trop grand nous perdons le caractère monomode de la fibre. Il est donc essentiel de trouver le bon compromis entre R_{co} et R_t .

Concernant la gaine, il existe quatre paramètres différents. Le premier est le rayon de tube R_t . Plus le rayon du tube est important plus son périmètre est grand. Comme nous avons pu le voir précédemment cela induit une augmentation du nombre m et donc une inhibition entre les modes de silice et de cœur exacerbée. La limitation de ce paramètre est un couplage entre les modes de cœur et les modes d'air des tubes plus important si un bon ratio entre R_{co} et R_t n'est pas respecté. Une autre limitation est d'ordre rhéologique lors de la fabrication de la fibre. En effet, plus les tubes sont gonflés plus il est difficile de garder une forme circulaire et un point d'attache des tubes avec la jacket restreint. Une autre grandeur de la gaine ayant un rôle important est l'épaisseur de pont des tubes. Nous avons vu qu'avec des ponts plus fins le seuil de pertes diminue. Théoriquement, il est donc préférable de fabriquer une fibre

tubulaire avec des ponts les plus fins possible. En revanche, en terme de fabrication, la diminution de l'épaisseur de ces ponts peut engendrer une augmentation des effets de rugosités de surface provocant des pertes plus conséquentes. Les deux derniers paramètres de la gaine sont le nombre de tube constituant la gaine N, et la distance δ entre deux tubes adjacents. Ces deux paramètres et leur influence sur le guidage par IC sont étudiés plus en détails ci-dessous grâce à des calculs numériques.

i. Influence de la distance entre les tubes δ

La figure 2-12(a) montre l'évolution de la magnitude du champ électrique en fonction de δ d'un mode de silice représentatif $EH_{9,2}$ à 700 nm pour un t de 400 nm et R_t de 7 µm. La ligne reliant le centre de deux tubes adjacents (désignée par z) permet d'observer la diminution de l'amplitude du champ par un facteur 10 en passant d'un δ de 2 µm à un δ de 8 µm. Ceci résulte d'un plus grand confinement du champ dans la silice vu que l'augmentation de cette distance diminue le n_{eff} du mode EH_{9,2} de 1,00062 à 0,99993.

Aussi, l'évolution du mode de cœur en fonction de cette distance *z* a également été examinée. Le champ du mode de cœur HE_{11} est représenté sur la figure 2-12(b) pour les mêmes δ que précédemment. L'amplitude du champ le long de la ligne reliant deux tubes adjacents augmente considérablement. Le mode de cœur va donc plus facilement fuir vers la gaine lorsque δ augmente. La théorie montre que l'augmentation de cette distance jusqu'à 8 µm implique une augmentation du rayon de champ de mode de 6%.





Figure 2-12 : (a) Amplitude du profil 1 D le long d'une ligne d'espacement entre le centre de deux tubes adjacents pour des espacements variant de 2 à 8 μm pour un arrangement triangulaire de tubes (b) et pour une fibre à un cœur creux avec une maille tubulaire.

Une autre manière de cibler et quantifier les zones de fuites du mode de cœur en fonction de δ a été utilisée en calculant le flux de puissance dans les directions radiales et transversales de la fibre en utilisant le vecteur de Poynting. Dans la direction radiale, la densité de puissance est exprimée par :

$$p_r = \frac{1}{2} \overrightarrow{E} \times \overrightarrow{H} \cdot \hat{r}$$
 Eq. 2-6

 \vec{E} et \vec{H} sont les champs électrique et magnétique du mode, \hat{r} est le vecteur d'unité radiale. p_r décrit la densité de puissance modale se propageant le long de la direction radiale. L'intégration de cette densité de puissance le long d'un cercle *l* encerclant la région micro-structurée de la fibre donne la puissance qui fuit par unité de distance :

$$P_r = \oint_l p_r dl.$$
 Eq. 2-7

Cette valeur peut ainsi nous permettre de quantifier la fuite modale lorsque la distance inter-tube varie. Elle permet également d'analyser la distribution azimutale des pertes par confinement. La puissance du profil transverse est normalisée comme suit :

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

$$p_{r_n} = \frac{p_r}{p_{z_{max}}}$$
 Eq. 2-8

 $p_{z_{max}}$ est la valeur maximale de la composante longitudinale du vecteur de Poynting. Quatre fibres avec des valeurs de δ différentes (2, 4, 6 et 8 µm) ont été simulées pour deux longueurs d'ondes 530 et 1200 nm. La première correspondant au minimum de pertes par confinement dans la bande fondamentale et la seconde au minimum de pertes dans la première bande d'ordre élevée. La distribution transverse de la composante radiale normalisée du vecteur de Poynting p_{r_n} est représentée sur la figure 2-13(a).

La figure 2-13(b) montre l'évolution la distribution angulaire de p_{r_n} en fonction de la distribution azimutale. Pour une distance δ de 2 µm la lumière fuite de manière dominante au niveau des connections entre les tubes et la silice environnante. Pour un δ de 6,0 µm et plus, des fuites importantes apparaissent dans les zones entre les tubes adjacents. Les points de connections entre les tubes de silice correspondent aux angles de 0 et 45 ° avec ses multiples. Le maximum de pertes pour ces dernières dépend peu de δ . Des valeurs plus petites sont trouvées à 530 nm ainsi qu'à 1200 nm, en accord avec les pertes par confinement. Inversement, les pertes inter-tubes sont fortement dépendantes de δ . Plus la longueur d'onde est courte plus cette distance inter-tube est critique. Elles peuvent atteindre des valeurs de 30 dB à 530 nm et d'une vingtaine pour 1200.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

CC BY-NC-ND

(a)

90

100

110





Figure 2-13 : (a) Distribution transverse de p_{r_n} pour 4 fibres avec δ =2µm, 4 µm, 6 µm, 8 µm à deux longueurs d'onde : 530 nm (colonne de gauche) et 1200 nm (colonne de droite). (b) Distribution azimutale de p_{r_n} sur le contour entourant la microstructure de la gaine. Les 8 tubes sont placés à 0° et aux multiples de 45°. La position des tubes le long du périmètre considéré est représentée par les cercles noirs.

Il ressort de ces comparaisons qu'il existe un compromis à trouver entre une distance inter-tube trop petite avant pour effet un couplage entre les modes de silice des tubes (et donc source de pertes pour le mode de cœur fondamental) et une distance trop grande avant comme impact l'établissement d'un fort canal de fuite pour le mode de cœur.

ii. Influence du nombre de tubes de la gaine

Les pertes par confinement ont été simulées en fonction du nombre de tubes N allant de 5 à 9 tubes et sont tracées en fonction de la longueur d'onde sur la figure 2-14(a). Les paramètres suivant ont été fixés pour les différentes fibres : t = 400nm, $R_t = 8 \mu m$ et $\delta = 5 \ \mu m$. Les pertes sont normalisées par rapport au rayon du cœur ($\alpha_{CL} R_{CO}^4$) afin de ne montrer que l'influence du nombre de tubes. Ces dernières subissent une diminution drastique en passant de 5 à 6 tubes. De 6 à 8 tubes les pertes diminuent de manière importante puis de 8 à 9 la diminution est minime suivant λ . Ceci est dû à

une résonnance entre les modes de cœur et les modes d'air des tubes [32][52]. La figure 2-14(b) donne des informations quant au caractère monomode des fibres par le calcul du ratio entre le mode d'ordre élevé TE_{01} et le mode fondamental HE_{11} se propageant dans le cœur de la fibre. Plus N est petit plus il est aisé de guider de manière monomode. De ces deux figures résulte un compromis à trouver entre de faibles pertes par confinement qui préconise un nombre de tubes important et la qualité modale de la fibre nécessitant un plus faible N. Les pertes par courbure sont également diminuées si le rayon du cœur est petit, et donc si N petit.

Nous avons donc choisi dans la suite de ces travaux de travailler sur une fibre présentant 8 tubes qui ressort dans un premier temps comme étant le meilleur compromis pour tendre à la réalisation d'une fibre quasi monomode à faibles pertes. La figure 2-14(c) montre l'évolution des pertes par confinement en fonction de δ à 530 nm et 1550 nm (correspondant aux longueurs d'onde où la bande fondamentale et la première bande d'ordre supérieur présentent leur minimum de pertes). Ces courbes montrent que la distance inter-tube optimale se situe entre 2 et 6 µm comme vu précédemment.

Par la suite, les pertes par confinement ont été calculées pour des *t* de 200, 400 et 500 nm sur la figure 2-14(d) en fonction de la longueur d'onde. Les paramètres de la fibre simulées sont N = 8, $R_t = 8 \ \mu m$ et $\delta = 2,5 \ \mu m$. Pour un $t = 200 \ nm$, la fibre montre une large transmission de 400 à 1750 nm avec un minimum de pertes à 600 nm de 1 dB/km. Avec un *t* de 400 nm, le spectre a deux bandes de transmission séparées par une zone de fortes pertes à 800 nm. Le minimum de pertes est de 0,5 dB/km à une longueur d'onde de 500 nm. Enfin, pour un *t* de 500 nm, trois bandes de transmission apparaissent. Ici, le minimum de pertes descend à 0,3 dB/km à une longueur d'onde de 480 nm.





Figure 2-14 : (a) Pertes par confinement pour différents nombres de tubes (b) Rapport de pertes entre les modes TE_{01} et HE_{11} . (c) Spectres des pertes en fonction de δ . (d) Pertes pour différentes épaisseurs de ponts.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

BY-NC-ND

Le tableau 2-2 synthétise les différentes lois d'échelles à respecter afin d'exacerber le IC des HCPCF tubulaires.

	Paramètres géométriques	Lois d'échelles	Limitations
Coeur	Rayon du cœur (R _{CO})	Large R_{co} 7 IC (Pertes ~ R_{co}^4)	Ratio entre <i>Rco</i> and <i>Rt</i> pour opération monomode
Gaine	Rayon du tube (R _t)	R_t 7 IC	 Trop large: Couplage mode tube et mode coeur Garder forme circulaire du tube
	Epaisseur des tubes (t)	t 🛪 IC	Rugosité de surface
	Espace inter-tubes (δ)	Grand : couplage entre deux tubes adjacents évité	Si trop grand augmentation des pertes par confinement
	Nombre de tubes (N)	N 7 confinement	Limitations sur la taille du cœur

Tableau 2-2 : Tableau récapitulatif des lois d'échelle afin d'exacerber l'IC dans les fibres à maille tubulaire.

b) Fabrication de fibres à structure tubulaire

i. Etude systématique

Pour cette étude expérimentale, quatre fibres ont été fabriquées avec différentes valeurs de δ en essayant de garder un rayon de cœur et de tube ainsi qu'une épaisseur de pont aussi constants que possible. La figure 2-15 récapitule les différentes images MEB de chaque fibre fabriquée avec leurs propriétés physiques. La distance entre deux tubes adjacents varie de 2,7 µm à 8,0 µm. Le rayon du cœur R_{CO} varie 13,75 à 18,50 µm correspondant à une différence relative de 20%. Cette différence se retrouve également pour le rayon des tubes allant de 5,10 à 6,15 µm et l'épaisseur des ponts compris entre 415 et 580 nm. Sur la figure 2-15 sont présentées les différentes courbes de pertes en fonction de λ/t avec λ compris entre 400 et 1750 nm. Trois bandes de transmission sont observables sur cette gamme spectrale. La Matthieu Chafer | Thèse de doctora | Université de Limoges | 2018

bande fondamentale est dans la région située à $\lambda/t > 2$, la première bande d'ordre élevé correspond à $1 < \lambda/t < 2$ et la seconde bande d'ordre élevée à $\lambda/t < 1$. Concernant la bande fondamentale, la réduction de δ permet de passer de pertes de 1200 dB/km pour un $\delta = 8 \ \mu m$ à 100 dB/km pour un $\delta = 2,7 \ \mu m$. La même tendance est observée pour la première bande d'ordre élevé avec un maximum de pertes de l'ordre du dB/m à 15 dB/km pour le δ le plus petit. La seconde bande d'ordre élevé voit elle ses pertes diminuer lorsque δ passe de 8 à 6 μ m et ré-augmenter lorsque cette distance est plus grande correspondant à des épaisseurs de tubes inférieures à 500 nm.



Figure 2-15 : Pertes en fonction de la longueur d'onde sur l'épaisseur avec les différents paramètres géométriques.

ii. Fibre tubulaire avec des pertes records à 750 nm

Lors de cette campagne de fabrication deux fibres ont été étirées en prenant en compte les différentes études préliminaires menées et présentées ci-dessus. Le δ ciblé est ainsi de 2,5 µm. La première a pour objectif d'avoir des pertes les plus basses possibles dans la région proche IR-VIS. La deuxième est d'obtenir de faibles pertes sur une large gamme spectrale sur la bande fondamentale, donc avec des ponts de silice les plus fins possible.

L'image MEB de la première fibre fabriquée est présentée sur la figure 2-16(a). Son δ moyen est de 2,5 µm, son cœur a un rayon R_{co} de 20,5 µm et l'épaisseur de ses ponts t est de 545 nm. Le spectre de la transmission sur un tronçon de 10 m est montré sur la figure 2-16(b) où trois bandes de transmission sont clairement visibles ; la bande fondamentale pour des longueurs d'ondes supérieures à 1150 nm, la première bande d'ordre élevée allant de 600 à 950 nm et la seconde de 430 à 545 nm. L'autre élément important à noter est les bandes de transmission observables dans l'UV. En effet, trois bandes de transmission de 220 à 380 nm sont distinguées. Les pertes de transmission mesurées par cut-back sont montrées sur la figure 2-16(c). Il a été fait pour une longueur de 293 à 10 m et démontre des pertes ultra-basses de 7,7 dB/km à 750 nm. Comme il est possible de le voir sur la figure 2-16(c), cela ne représente qu'un écart d'un facteur deux comparé à la limite de Rayleigh de la silice. Ces résultats ont été publiés dans le journal Optica [30].

Afin de connaître la source prédominante de pertes dans cette fibre, les pertes par confinement et par diffusion de surface ont été ajoutées aux pertes expérimentales.

Pour la bande fondamentale, située dans l'IR, les pertes expérimentales sont très proches des pertes par confinement calculées. Pour la bande de premier ordre et de second ordre élevé cette tendance s'inverse. Les pertes par diffusion de surface sont le facteur dominant, cela étant d'autant plus vrai que les longueurs d'onde diminuent. A noter que pour la seconde bande d'ordre élevé les pertes expérimentales et théoriques concordent moins bien. Ceci peut s'expliquer par l'approximation faite d'une surface lisse de la fibre lors des calculs des pertes par confinement. En effet, plus la longueur d'onde est courte plus elle sera sujette à être diffusée par la surface du cœur.



Figure 2-16 : (a) Image MEB de la fibre fabriquée. (b) Transmission mesurée de 200 à 1750 nm. (c) Pertes mesurées de 400 à 1750 nm (courbe noire) et les pertes par confinement théoriques (courbe en pointillées bleus) et les pertes par diffusion de surface (courbe pointillées rouge).

iii. Fibre avec des pertes records sur une large fenêtre spectrale

Afin d'obtenir de faibles pertes sur une large gamme spectrale une fibre présentant des ponts de silice affinés est nécessaire. Or, plus les ponts sont fins plus il est difficile durant la fabrication de garder la forme circulaire des tubes. La fibre fabriquée et présentée ici a des ponts de silice de 227 nm d'épaisseur. L'image MEB de la fibre est montrée sur la figure 2-17(a). La figure 2-17(b) trace la transmission Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018 mesurée sur une longueur de 13 m de fibre et la figure 2-17(c) ses pertes par transmission. La courbe présente des pertes entre 10 et 21 dB/km sur une large plage spectrale allant de 600 nm à 1200 nm représentant un nouvel état de l'art pour les HCPCF. Nous pouvons voir qu'elle montre également une bande de transmission dans l'UV allant de 300 à 420 nm.



Figure 2-17 : (a) Image MEB de la fibre. (b) Transmission mesurée de 200 à 1750 nm. (c) Pertes mesurées de 400 à 1750 nm (courbe noire), les pertes par confinement théoriques (courbe en pointillées bleus) et les pertes par diffusion de surface (courbe pointillées rouge).



Concernant la source des pertes, la même tendance est observée que pour la fibre précédente. Au-dessus de 1 μ m les pertes par confinement sont prépondérantes, en dessous ce sont les pertes par diffusion de surface qui dominent.

L'évolution du PER de cette fibre a été mesurée sur 16 m de fibre et est présentée sur la figure 2-18(a). On observe une diminution du PER jusqu'à 12 m avec une valeur minimale de 12 dB puis une ré-augmentation jusqu'à 15 dB pour 16 m. L'encart de cette figure montre les puissances aux deux ports du cube polariseur en fonction de l'angle de la lame demi-onde. Le mode de la polarisation dominante est le mode HE_{11} et celui de la polarisation croisée est le LP_{11} . L'évolution du PER et le contenu modal à 16 m laissent penser que la lumière est recouplée sur les modes du cœur après la diffusion par la surface du contour intérieur du cœur. En effet, le recouvrement spatial entre les modes d'ordre élevé et le contour de cœur est plus fort que pour le mode fondamental. Ainsi, la lumière rétro-diffusée du contour de cœur a de grande chance de se retrouver dans les modes d'ordre élevé tel le mode LP_{11} .



Figure 2-18 : (a) Evolution du PER avec la longueur de la fibre. (b) S² pour un tronçon de 5 et 15 m.

Comme pour la fibre Kagomé présentée précédemment, le S2 a été mesuré sur des longueurs de fibre de 5 et 15 m (voir figure 2-18(b)). Le mode LP_{11} possède un MPI de 21,4 dB correspondant à un guidage quasi monomode dans le cas d'une longueur de 5 m. Cette valeur augmente à 23,9 dB pour une longueur de 15 m.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

iv. Fibre tubulaire avec 9 tubes

En se basant sur les études théoriques présentées sur la figure 2-14(a), nous pouvons voir qu'une gaine avec 9 tubes permet de réduire les pertes par confinement avec une potentielle diminution d'un facteur 2 à la longueur d'onde de 540 nm. Afin d'investiguer ces résultats de simulation, nous avons développé et étiré une telle fibre tubulaire.

a. Etirage d'une fibre d'1 km de long

La fibre a été étirée à un diamètre extérieur de 230 μ m et un diamètre de cœur de 42 μ m. L'espacement entre les tubes varie de 2,5 μ m à 5,7 μ m avec une valeur moyenne de 4,6 μ m. Le diamètre des tubes de la gaine mesure en moyenne 15,1 μ m.

Grâce à la gestion de tous les paramètres de fibrage nous avons réussi à étirer une fibre tubulaire à 9 tubes sur une distance d'un km, constituant un record pour ce type de fibre. Le diamètre externe de la fibre lors du fibrage a été enregistré et tracé sur la figure 2-19. La période de stabilisation a été enlevée de la courbe afin de ne présenter que le km de la section stable du fibrage. Une photo faite au MEB a été prise pour les différentes longueurs où la fibre a été coupée afin de mesurer la transmission et en déduire les pertes.



Figure 2-19 : Evolution du diamètre externe de la fibre lors de la fabrication en fonction de la longueur étirée.



Cinq pics majeurs sont recensés à 174, 217, 255, 345 et 792 m menant à une variation de \pm 0,6 % du diamètre externe sur le km de fibre. Si ces pics ne sont pas considérés la variation passe à \pm 0,3%. Cette courbe permet de démontrer la stabilité de notre procédé de fabrication et l'augmentation du rendement lors des fibrages HCPCF. Nous allons maintenant voir l'influence de cette stabilité sur les propriétés optiques de la fibre.

b. Caractérisation de la fibre

Le kilomètre de fibre fabriqué a été déroulé en faisant une boucle de 200 cm de longueur et 70 cm de largeur, afin d'atténuer au maximum les effets de pertes aux courbures sur la mesure. Le fait remarquable sur la transmission obtenue à l'extrémité du km de fibre est la présence de lumière sur la première bande d'ordre élevé de 700 à 1000 nm mais surtout dans la deuxième bande d'ordre élevé de 500 à 580 nm. En effet, nous avons vu que plus la longueur d'onde diminue plus la lumière est susceptible de se coupler à des défauts structurels de la fibre comme des points diffusants. Nous pouvons en conclure que cette fibre comprend très peu de ces défauts en accord avec la stabilité du diamètre externe que nous avons vu précédemment.



Figure 2-20 : Photo du laser vert couplé dans un tronçon de 300 m.

Les pertes linéiques de la fibre ont été caractérisées à l'aide du même banc de caractérisation que dans les parties précédentes de 400 à 1750 nm par la méthode de cut-back. La fibre a été coupée de 945 m à 500 m, puis à 200 m et enfin à 5 m afin de corroborer les valeurs mais également de voir l'influence de défauts éventuels affectant les pertes de la fibre sur des sections particulières.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

Les mesures de transmission effectuées sur l'OSA sont tracées sur la figure 2-21(a). Nous pouvons observer pour une longueur de 5 m, le début de la bande fondamentale correspond à 1300 nm. La première bande d'ordre élevé guide de 650 nm à 1100 nm, enfin la deuxième bande d'ordre élevée transmet de 420 nm à 600 nm.

(a)



Figure 2-21 : (a) Transmission pour les différentes longueurs de fibre : 945 m de fibre (courbe bleue), 500 m (courbe rouge), 200 m (courbe verte) et 5 m (courbe orange). (b) Zoom sur les pertes de 480 à 590 nm pour trois cut-back différents de 945 à 5 m (courbe bleue), de 500 à 5 m (courbe noire) et de 200 à 5 m (courbe rouge).



Les pertes déduites des mesures de transmission démontrent des valeurs de l'ordre de 90 dB/km à 1,7 μ m et de l'ordre de 10 dB/km à 1 μ m (figure 2-21(b)). La deuxième bande d'ordre élevé a des pertes de l'ordre de 15 dB/km tendant vers des pertes proches des pertes dues à la limite de diffusion Rayleigh de la silice. Un zoom sur cette région est présenté sur la figure 2-21 (b).Le minimum de pertes pour le cut-back de 945 m de fibre à 5 m est de 18,5 dB/km. De 500 à 5 m il est de 16,5 dB/km et de 13,8 dB/km de 200 à 5 m à 539 nm. Cette dernière valeur est équivalente aux pertes dues à la limite fondamentale de la diffusion Rayleigh de la silice représentée par la surface grise sous la ligne en pointillée. La diminution de ces pertes en réduisant la longueur s'explique par la soustraction des pertes dues aux micros défauts mais également dues aux pertes par courbure.

Cette fibre possède également deux bandes dans l'UV (figure 2-22(a)), une couvrant de 339 à 420 nm et l'autre de 276 à 320 nm. Une mesure des pertes par cut-back a été faite sur un tronçon de 30 m en injectant un laser micro-chip à 355 nm et un laser à 343 nm (figure 2-22(b)). Les pertes mesurées sont de 75 dB/km et 150 dB/km respectivement ouvrant la voie à la compression d'impulsions d'un laser femto seconde à 343 nm que nous verrons dans le prochain chapitre.





Figure 2-22 : (a) Transmission de la fibre à 9 tubes de 200 à 1750 nm. (b) Pertes mesurées par cut-back de 200 à 1750 nm.

Enfin, les pertes par courbure ont été mesurées et sont représentées avec un zoom sur chaque bande de la gamme spectrale 400-1750 nm (figure 2-23). Un tronçon de 20 m de fibre couplé au super-continuum a été utilisé pour réaliser cette mesure. Les rayons de courbure sont de 20, 15, 10, 7,5 et 5 cm. Sans surprise, nous observons une plus grande sensibilité des courtes longueurs d'ondes aux courbures. Cette sensibilité est d'autant plus importante que les bandes de transmission sont d'ordre élevé, et donc plus étroites. Ainsi, pour un rayon de courbure de 20 cm, la région située dans

le vert a des valeurs de pertes entre 0,1 et 0,2 dB/tour alors qu'elle est de l'ordre de 0,01 dB/tour pour les autres bandes d'ordre moins élevé. Dans le cas d'un rayon de courbure extrême de 5 cm, les pertes de la bande fondamentale atteignent 0,1 dB/tour, la première bande d'ordre élevée voit sa largeur de transmission fortement diminuée due aux fortes pertes par courbure mais reste à 0,2 dB/ tour aux alentours d'1 μm. Pour la deuxième bande d'ordre élevée la transmission est perdue.



Figure 2-23 : Pertes par courbure mesurées pour 5 rayons de courbures différents de 400 à 1750 nm. Les coupures de bande sont représentées par les zones grises.

Pour un bon fonctionnement dans cette gamme de longueurs d'onde, un rayon de courbure de 15 cm est donc préconisé.

Nous avons vu qu'en contrôlant les outils conceptuels déterminés par des simulations dans le premier chapitre nous avons réussi à fabriquer des fibres avec des pertes linéiques fixant un nouvel état de l'art.

5. Réalisation d'une HCPCF BIP

Une HCPCF BIP a été fabriquée afin de mener à bien les travaux de conversion de fréquence de pompe à 1061 nm au premier Stokes rotationnel à 1135 nm, présentée dans la dernière partie de ce manuscrit. Le cahier des charges est de réaliser un petit cœur d'air afin d'obtenir un facteur de mérite élevé lors de l'interaction gaz/laser. La

plage fréquentielle doit comprendre la longueur d'onde de la pompe (1061 nm) et filtrer la génération de l'anti stokes (1000 nm) et du Stokes de second ordre (situé à 1212 nm). Cette faible largeur de transmission permettra de supprimer le SRS vibrationnel naturellement prédominant permettant une conversion vers la fréquence Stokes rotationnel comme démontré en 2004 par Benabid *et al.* [39].

Une HCPCF BIP a donc été étirée grâce à la technique « stack and draw » afin de guider la pompe et le premier Stokes rotationnel.



(b)

Figure 2-24 : (a) Image MEB de la fibre HCPCF BIP fabriquée. (b) Transmission sur 2 et 200 m (courbe rouge et noire). (c) Pertes mesurées par cut-back.

Le diamètre du cœur de la fibre conçue fait 7 μ m et l'espacement entre deux trous d'air adjacents est de 2,5 μ m (figure 2-24(a)). Les pertes ont été mesurées en effectuant un cut-back de 200 à 2 m de fibre en utilisant un super-continuum. Les

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

transmissions sont représentées sur la figure 2-24(b) avec la transmission pour 200 m de fibre en noir et 2 m en rouge. Des pertes de l'ordre de 90 dB/km à 1061 nm et de 110 dB/km pour le premier Stokes rotationnel ont pu être mesurées. La bande transmise est comprise entre 1000 nm et 1175 nm annihilant toute autre génération Stokes lors de la conversion Raman.

6. Conclusion

En conclusion, les différents paramètres géométriques des HCPCF IC ont été décrits avec leur influence respective sur les performances optiques fournissant des lois d'échelles pour exacerber l'IC. A partir de ces outils conceptuels, différentes fibres ont été fabriquées avec des performances surpassant l'état de l'art aussi bien dans l'UV-VIS que dans le proche IR. Pour récapituler :

- L'épaisseur des ponts de fibre Kagomé a été diminuée avec un fort *b* permettant d'atteindre des pertes record de 8,5 dB/km et une fibre large bande avec des pertes en dessous de 100 dB/km de 700 à 1200 nm. Un compromis est à faire entre l'épaisseur des ponts et la courbure négative.
- Des fibres avec une maille tubulaire à 8 tubes ont été développées avec des espacements inter-tubes en dessous de 6 µm permettant d'atteindre des pertes record de 7,7 dB/km à 780 nm. Lorsque les ponts sont affinés des pertes oscillantes entre 10 et 20 dB/km sur 1 octave (entre 600 et 1200 nm) sont obtenues. Ces fibres présentent notamment des bandes de transmission dans l'UV. Les fibres tubulaires ouvrent la voie pour de faibles pertes dans le domaine du visible grâce à l'absence de nœuds sur le pourtour du cœur et une forte courbure négative assurée par les tubes.
- Une maille à 9 tubes a permis de réduire les pertes et atteindre la limite fondamentale de Rayleigh de la silice à 539 nm avec des pertes de 13,8 dB/km mais également à 355 nm avec des pertes de 75 dB/km. De plus, on notera la performance d'étirer 1 km d'un même tronçon sans défauts notables.

Ces différentes performances laissent à penser que dans un avenir proche les pertes des HCPCF IC pourraient symboliquement franchir la limite de diffusion Rayleigh de la silice comme espéré au début des années 2000. Enfin, même si les pertes par Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018 94 courbure, la polarisation ou encore le post traitement de ce type de fibre sont encore des points à adresser, ces performances records de transmission ont permis de développer des PMC des plus pertinentes pour diverses applications comme nous allons voir par la suite.







Chapitre 3. Conception et réalisation de PMC.

Nous avons vu dans le chapitre précédent comment il est possible de structurer la silice afin d'améliorer les performances optiques des fibres à cœur creux. Dans ce dernier chapitre de la première partie, nous allons voir comment contrôler la phase gazeuse dans ces fibres permet d'atteindre l'interaction laser-gaz voulue. Cette fonctionnalisation, en effet, prend différentes formes suivant l'application ciblée et nécessite donc des procédés divers. Une fois cette description effectuée nous verrons deux exemples de ces procédés démontrant la versatilité de cette plateforme technologique.



1. Introduction

L'acronyme PMC signifie « photonic micro-cell » et consiste en une fibre creuse sous vide ou remplie d'un gaz connectorisée via une terminaison spécifique à ses deux extrémités afin de la rendre hermétique [12].

La fibre peut ainsi être remplie d'une phase liquide ou d'une phase gazeuse suivant l'interaction voulue. Comme nous avons vu dans le chapitre 1, l'efficacité de cette interaction est définie par le facteur de mérite qui s'écrit comme suit :

$$FOM = \frac{L_{int}.\lambda}{A_{eff}}$$
 Eq. 3-1

 L_{int} est l'interaction effective, elle est inversement proportionnelle aux pertes linéiques α^{-1} , λ est la longueur d'onde de pompe et A_{eff} l'aire effective. Par comparaison, dans les expériences en espace libre, l'interaction est maximisée en focalisant le faisceau en un point. La longueur d'interaction est alors de $L_{int} = 2\pi\omega_0^2/\lambda$ correspondant à deux fois la longueur de Rayleigh limitant fortement le facteur de mérite. L'autre alternative est l'utilisation d'un capillaire creux. Les pertes sont cependant de l'ordre de 0,13 dB/m pour 1 mm de rayon avec une longueur d'interaction limitée à ~1 m [36]. La technologie des fibres à cœur creux est ainsi la plus appropriée afin d'exacerber l'interaction laser-gaz. Le facteur de mérite ajusté pour ce type de fibre est exprimé par :

$$FOM_{HC-PCF} = \frac{\lambda}{a^2 \alpha \pi}$$
 Eq. 3-2

Où α est l'atténuation de la fibre en m⁻¹ et *a* le rayon du cœur. Nous avons vu dans le chapitre 1 l'accroissement d'un facteur de plus de 10⁷ pour certaines HCPCF comparé à un simple capillaire grâce à la petite taille du cœur et/ou de faibles pertes.

De tels FOM permettent de nombreuses applications dans l'optique non-linéaire, la métrologie, le plasma [18] ou encore le déport de puissance [15]. En effet, ces fibres ont permis de réduire le seuil d'apparition d'effets non linéaires de plusieurs ordre de grandeurs avec des rendements de conversion sans précédent [9]. Un autre

exemple concerne la métrologie où des effets cohérents comme la transparence induite électro-magnétiquement et l'absorption saturée ont été démontrés [13][53].

Une des clés de cette interaction est la gestion du gaz dans le cœur de la fibre. A cet effet des cellules de gaz permettant de gérer la densité d'atomes ou de molécules sont utilisées. Ces densités vont de l'ultra vide à plusieurs bars de pression. Suivant ce critère ainsi que l'énergie couplée dans la PMC finale, différentes méthodes de scellages de la fibre sont possibles comme nous allons le voir dans la première section de ce chapitre. Dans un deuxième temps, deux réalisations effectuées durant cette thèse sont mises en évidence afin de démontrer la versatilité de cette plateforme technologique. La première est une PMC remplie d'I₂ toute fibrée afin d'obtenir une fréquence étalon. La deuxième est une PMC opto-mécanique pour la compression d'impulsion fs dans l'UV.

2. Procédés de fabrication de PMC

a) PMC intégralement fibrée

Une PMC entièrement fibrée est légitime pour des énergies sous le seuil d'endommagement de la silice sous peine d'abîmer la terminaison des fibres et pour des basses pressions. Ce type de PMC est donc privilégié pour des vapeurs atomiques ou une faible densité de molécules, typiquement pour des applications de métrologie. Toute contamination par l'air ou autre molécule est donc indésirable.

i. Fusion d'une HCPCF

Le défi majeur afin de réaliser une soudure sur les HCPCF est d'éviter la déformation de la micro structure de la fibre. Ce défi est d'autant plus important pour des ponts de silice fins. Ce problème est pallié grâce à un calibrage fin des paramètres de fusions. Aujourd'hui, il existe 4 sortes de soudeuses utilisant des méthodes de fusion différentes ; la flamme, l'arc électrique ou plasma, le filament et le laser CO₂. Parmi les 4, les 3 premiers reposent sur le principe du rayonnement/diffusion chauffant la fibre de manière plus ou moins locale. Au sein du laboratoire nous avons la possibilité d'utiliser une soudeuse à plasma (3SAE) ou à filament (Vytran).

(a)



(b)

Figure 3-1 : (a) Procédure d'assemblage d'une PMC en utilisant l'He. (b) Photo d'une PMC toute fibrée.

Le procédé débute par un nettoyage de la fibre des impuretés pouvant être présentes en son cœur en la chauffant et en effectuant le vide. Puis, la fibre est introduite dans des cellules spécialement conçues pour le vide. Elle est alors pompée plus ou moins longtemps suivant la taille de son cœur et de sa longueur. Le procédé d'assemblage d'une PMC intégralement fibrée typique est illustrée dans la figure 3-1(a). La jauge représente la pression d'hélium dans la fibre. La fibre est d'abord scellée d'un côté afin de n'avoir plus qu'un côté à étanchéifier. Une fois le pompage effectué, la fibre est chargée du gaz choisi jusqu'à la pression voulue. La gestion fine de la pression du fluide est effectuée optiquement grâce à la largeur de bande et le contraste de la ligne d'absorption. Afin de fermer hermétiquement la fibre et rester à la pression ciblée, de l'hélium est inséré à plusieurs bars. Ce gaz sert à créer une zone tampon lors de la soudure puis se diffuse à travers la silice. Une fois les deux extrémités scellées, les soudure sinduisent généralement des pertes de l'ordre d'1 dB. Une photo d'un

exemple d'une PMC intégralement fibrée est présentée dans la figure 3-1(b). Une allumette a été disposée à côté afin d'apprécier la compacité du système [54].

b) PMC opto-mécanique

Un autre cas se porte sur les cellules opto-mécaniques qui sont utilisées pour une pression ou une énergie élevée ou les deux. Ces cellules permettent l'incorporation de la fibre d'une manière étanche avec un niveau de contrainte sur la fibre négligeable de façon à n'engendrer aucune perturbation modale. Comme nous pouvons voir sur le schéma (figure 3-2(a)) elles sont composées d'une fenêtre avec un revêtement anti-reflet, d'une valve permettant d'insérer et gérer la pression du gaz et d'un support pour le maintien de la fibre. La photo montre un système complet vendu par l'entreprise GLOphotonics (figure 3-2(b)).

(a)

(b)



Figure 3-2 : (a) Vue d'une PMC opto-mécaniques (b) Photo de PMC opto-mécanique vendue par GLOphotonics.

i. Haute pression

Dans le cas d'une utilisation à haute pression, la fibre est d'abord insérée dans un barreau faisant office de support puis clivée. Ce dernier est ensuite mis dans une



cellule en métal avec une fenêtre permettant de coupler ou récupérer la lumière de la fibre. La cellule comporte également une entrée gaz pour remplir la cellule, in fine dans la fibre. La pression est contrôlée grâce à des jauges de pression. L'équilibre se fait dans la fibre plus ou moins rapidement suivant la taille de cœur de la fibre ainsi que de sa longueur. Afin d'améliorer l'intégration de ce système dans le cas de faibles énergies il est possible de sceller un embout en fibré et d'encapsuler l'autre embout dans une cellule de gaz dans le but d'injecter ce dernier à haute pression.

ii. Haute énergie

Dans le cas d'utilisation à hautes énergies les soudures ne tiendront pas aux flux ou peuvent induire des effets non linéaires indésirables. Il est donc nécessaire d'encapsuler les fibres dans les cellules opto-mécaniques. Les fenêtres sont évidemment prévues à cet effet avec des revêtements anti reflets à la longueur d'onde de travail. Les taux de transmission sont typiquement de plus de 90% sur quelques mètres de fibre.

3. Réalisation d'une PMC I₂

Une des applications de ces PMC est l'utilisation de références fréquentielles grâce aux lignes d'absorption de gaz moléculaires. L'iode moléculaire est une excellente référence comme elle possède de nombreuses lignes d'absorption à de multiples longueurs d'onde qui s'affinent en réduisant la longueur d'onde [55]. Son encapsulation dans une HCPCF permet d'améliorer l'intégrabilité d'un tel système et devrait permettre d'obtenir des traces d'absorption à température ambiante. En effet, les cellules actuelles sont généralement des tubes de verre de quelques centimètres avec un diamètre de l'ordre du centimètre. De plus, il est nécessaire de la chauffer afin de dégazer l'iode moléculaire pour obtenir une forte absorption [56]. Dans ce but une PMC toute fibrée a été conçue et fabriquée durant cette thèse dans le cadre d'un projet de développement avec un collaborateur. L'objectif final est d'utiliser cette PMC comme fréquence étalon pour asservir un laser à 633 nm.

a) Processus de fabrication de la PMC

La fibre utilisée est une HCPCF composée d'une gaine à 8 tubes avec des pertes de 20 dB/km à 633 nm. L'I₂ est achetée sous forme de chips, il est nécessaire de la sublimer

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

BY-NC-ND

en faisant le vide. De plus, cette molécule réagit violemment avec les pièces en métal. Un revêtement sur les pièces métalliques a été appliqué afin de palier à cette limitation. La pompe à vide est protégée de l'I2 par un piège à vide. Concernant la fibre, elle mesure 5 m, elle est soudée à une fibre solide par laquelle la lumière est injectée, l'autre extrémité est introduite dans la chambre afin de charger le diiode et la fermer dans une deuxième étape. Le chargement est contrôlé optiquement grâce à un photodétecteur relié à un oscilloscope. Pour fermer la PMC nous avons utilisé la technique de l'injection de l'hélium afin de créer une zone tampon. Cependant, nous n'avons jamais pu observer une trace d'absorption une fois soudée. Plusieurs explications sont envisageables. Soit le temps mis pour fusionner est trop long, soit l'injection d'He condense l'I₂. Une autre méthode a donc été employée. Nous avons chauffé la fibre à une température assez élevée pour que la silice s'effondre et ferme la fibre. Par ce moyen aucune injection de gaz tampon n'est nécessaire. Cet embout est ensuite poli. Bien que les pertes soient élevées (90% de pertes par insertion) dû à un désaccord de la taille du cœur entre la fibre à cœur creux et la fibre solide et la face effondrée, une trace d'absorption est bien visible confirmant que le diiode est bien encapsulée dans la fibre. Le premier embout est soudé à une fibre SMF avec un MFD de 5,96 µm et un diamètre de 125 µm. Le désaccord de MFD entre la SMF et la fibre à cœur creux induit de fortes pertes mais permet dans un premier temps de valider la faisabilité. Un adaptateur de mode tel qu'un taper sera nécessaire afin de réduire les pertes.

b) Qualification de la PMC

La figure 3-3(a) est une photo de la PMC sous test. La qualification de la PMC a été effectuée par notre collaborateur que nous remercions. Elle est faite grâce un laser à réflecteur de Bragg distribué à 633,4 nm. Le faisceau du laser est scindé en deux grâce à un cube séparateur. Le faisceau réfléchi est envoyé dans une cellule remplie d'I₂ utilisée comme référence (figure 3-3(b)). Le faisceau transmis est couplé dans une fibre monomode à maintien de polarisation. Cette même fibre est soudée à la SMF constituant l'entrée de la PMC. L'absorption la plus forte mesurée sur une ligne est de 50%. Lorsque la puissance est augmentée de 0,2 à 1,2 mW aucune différence n'est notée sur le taux d'absorption. Nous pouvons en conclure que le niveau de

saturation n'est pas atteint pour ces niveaux de puissance. Les lignes sont élargies par l'effet Doppler avec des largeurs à mi-hauteur typiquement inférieures à 1 GHz.



Figure 3-3 : (a) Photo de la PMC fabriquée. (b) Schéma du montage utilisé. (c) Comparaison des pics d'absorption entre la PMC et une cellule référence remplie d'I₂. (d) Mesure de la stabilité du laser avec la PMC comme référentiel.

Sur le graphique de la figure 3-3(c) les spectres de transmission de la PMC et de la cellule de verre chauffée à 50 °C sont comparés, leur densité optique est trouvée quasiment identique. Une différence réside dans la largeur à mi-hauteur. En effet, celle de la PMC est légèrement moins large. Nous pouvons expliquer cela par la différence de température de 30 °C impliquant un élargissement d'environ 5%. La fréquence des lignes est également décalée de 10 MHz provenant surement des collisions des molécules sur les parois de la fibre. Enfin, le laser est asservi à une ligne d'absorption du diiode en utilisant une modulation lock-in et une boucle de rétroaction au courant de la diode. La fréquence du laser est mesurée pendant une

minute avec un wavemeter. Ceci est fait en utilisant la cellule en verre et la PMC afin de comparer la stabilité que chacune fournit au laser.

La stabilité est représentée par la valeur 30, elle est de 3,6 MHz pour la cellule et 7,2 MHz pour la PMC (figure 3-7(d)). Cette différence provient d'un effet étalon causé par la soudure fibre monomode à la HCPCF. Afin d'atténuer ces effets ainsi que d'augmenter le taux de transmission de cette PMC une autre technique de fusion a été développée durant cette thèse. La longueur de fibre a été réduite à 1,5 m présentant l'avantage d'une meilleure intégrabilité. L'autre avantage de cette technique est de pouvoir encapsuler les embouts de la fibre dans des connecteurs FC/PC rendant le système plus robuste que précédemment. Le taux de transmission est aussi largement supérieur, passant de 10% d'efficacité de transmission à plus de 40%. Les caractérisations référentielles sont actuellement en cours.

4. PMC opto-mécanique pour la compression d'impulsions ultra-brèves dans l'UV

Un second exemple se porte sur la réalisation de PMC pour les applications de compression d'impulsions. Le but ici sera de trouver une solution photonique pour comprimer des impulsions ultraviolettes femtosecondes à 343 nm. En effet, comprimer de telles impulsions dans cette gamme de longueur d'onde est devenu aujourd'hui un enjeu majeur pour de nombreuses applications aussi bien dans le domaine de la recherche que dans l'industrie. Notre socle technologique a déjà prouvé être un candidat idéal pour la gamme de l'IR avec de nombreux résultats obtenus pour des niveaux d'énergie dépassant le milli-Joule [57][58][59]. Dans ce travail, l'énergie utilisée sera seulement de 4,3 μ J au maximum. Cependant l'ajout de terminaisons solides à chaque embout de la fibre ajoutera de la dispersion et risque d'engendrer des problèmes de solarisation du matériau [60]. De plus nous voulons contrôler la pression de notre milieu afin d'accorder notre dispersion. Par conséquent, la PMC sera une version opto-mécanique.

a) Processus de montage de la PMC

Le montage comprend un laser Yb triplé à 343 nm avec une durée des impulsions dénuées de chirp et d'une durée 260 fs. L'énergie maximale est de 4,3 μ J pour un taux de répétition de 200 kHz. La fibre est scellée dans deux cellules où le gaz est inséré tout en contrôlant la pression. Des fenêtres avec un revêtement anti-reflet UV sont utilisées. Enfin, la sortie du montage comprend une lame demi-onde et un miroir présentant une dispersion négative afin de comprimer la durée des impulsions en sortie de fibre. La caractérisation du spectre est effectuée avec un spectrophotomètre Ocean optics et la durée d'impulsion est mesurée grâce à un auto-corrélateur de chez Pulse check.



Figure 3-4 : Schéma du montage utilisé.

b) Résultats expérimentaux

Deux configurations sont étudiées : la PMC remplie d'air pour des longueurs de fibre variant de 1,5 à 6 m et une seconde version remplie d'argon pour des longueurs raccourcies de 50 cm à 1 m.



Figure 3-5 : (a) Spectres fréquentiel et durée d'impulsion en sortie de fibre remplie d'air pour différentes énergies. (b) Compression optimale pour 70 cm de fibre remplie d'Argon à 15 bars. (c) Energie de l'impulsion en sortie en fonction de l'énergie du faisceau incident pour différentes longueurs de fibre remplies d'air et d'Argon à 15 bars.

Dans le cas de l'air, les meilleurs résultats sont obtenus pour une longueur de 3,5 m de fibre avec une hyper sécante hyperbolique de 53 fs pour une énergie d'entrée de

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

BY-NC-ND

4,3 μJ. Le spectre est élargi de 14 nm correspondant à un facteur 14 comparé à la largeur spectrale de la pompe. Comme prévu l'élargissement est obtenu par le processus de l'auto-modulation de phase (SPM) (figure 3-5(a)). En effet, nous pompons en bord de la bande bleue de la bande de transmission de la fibre. Nous sommes donc en dispersion positive favorisant une pure SPM permettant de ne pas altérer la longueur d'onde centrale et d'obtenir un profil temporel moins structuré comme peut en témoigner les traces d'auto-corrélation. Nous constatons que le rendement de transmission chute à 20% pour les meilleures compressions. Afin d'outrepasser à ce problème il est nécessaire de réduire la longueur de la fibre. Il faut donc accorder la dispersion à cette nouvelle longueur avec un gaz ayant une plus grande non linéarité d'où l'emploi de l'argon.

Dans ce second cas, la longueur de la fibre (50 cm à 1 m), l'énergie en entrée et la pression de l'argon (1 à 15 bars par pallier de 2 bars) sont modifiées. Les conditions optimales sont trouvées pour 70 cm de fibre et 15 bars de pression. Une compression de 61 fs (figure 3-5 (b)) est alors obtenue, quasi équivalente à celle réalisée avec l'air. L'élargissement spectral est cependant plus important, en effet un facteur 21 est atteint. Avec un tel élargissement des durées d'impulsions à la limite de la transformée de Fourier de 9 fs sont atteignables. Il suffit d'adapter la dispersion du miroir pour compenser correctement la dispersion positive de l'impulsion. Le taux de transmission est alors de 40% comme nous pouvons le voir la figure 3-5(c) montrant l'évolution de l'énergie en sortie en fonction de l'énergie couplée pour l'air et l'argon. En accordant notre dispersion et notre non linéarité nous avons amélioré notre transmission d'un facteur deux. Ces résultats ont fait l'objet d'une présentation postdeadline à la conférence internationale CLEO US en 2018 [61].

5. Conclusion

En conclusion de ce chapitre, les fibres HCPCF fonctionnalisées en PMC offrent un panel d'applications allant de la recherche fondamentale au domaine industriel. Différents procédés peuvent être utilisés lors de la réalisation d'une PMC suivant la nature et la densité de gaz voulues dans la fibre mais également suivant l'énergie
couplée dans cette dernière. De façon générale, pour les basses pressions et pour de faibles énergies une PMC toute fibrée est envisageable permettant d'obtenir un système compact et intégrable. Dans le cas de pressions et d'énergies élevées une solution opto-mécanique est plutôt privilégiée.

Pour illustrer ces procédés, deux exemples de projets réalisés durant cette thèse ont été présentés.

Une PMC toute fibrée chargée d'iode moléculaire a été développée et fabriquée où de forts pics d'absorption ont été démontrés à température ambiante. Le défi de ce projet a été lié à l'I₂ rendant l'utilisation d'He comme gaz tampon impossible. Un nouveau procédé a été développé afin d'amener ce projet à terme. Avec cette PMC, la stabilisation d'un laser a été effectuée avec le premier prototype démontrant un coefficient de stabilité comparable à celui d'une cellule standard remplie d'I₂. Un deuxième prototype a été fabriqué et connectorisé en FC-PC avec un coefficient de transmission augmenté d'un facteur quatre dont les tests finaux sont en cours.

Le deuxième exemple est une PMC opto-mécanique montée pour comprimer des durées d'impulsion dans le domaine de l'UV. Ce système a permis une gestion du gaz à l'intérieur de la fibre afin d'accorder la dispersion et l'indice effectif non linéaire. Grâce à cela, des compressions temporelles entre 50 et 60 fs ont été démontrées pour la première fois dans une fibre creuse remplie d'argon et d'air.









Partie II

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

BY-NC-ND











Chapitre 4. Diffusion stimulée Raman dans les fibres creuses et les limites technologiques.

Ce chapitre traite de la diffusion Raman avec une description globale de la dépendance de son gain aux différents paramètres de l'interaction laser-gaz. Les trois régimes de générations et d'amplifications atteignables en jouant sur la durée de cette interaction sont décrits. Cette revue du principe physique de ce phénomène met en avant l'intérêt de confiner le gaz Raman dans les HCPCF afin de l'exacerber et de générer des peignes de fréquences optiques cohérents. Le gaz actif Raman est une autre clé afin d'obtenir la conversion voulue. Le choix de l'utilisation de l'Hydrogène est également rapporté avec ses divers avantages. La limite technologique due au système HCPCF-H₂ dans le but de transférer cette technologie au marché est soulevée. A cet effet une PMC est conçue, développée et intégrée à un laser. Finalement ce dispositif est caractérisé.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

1. Introduction

L'état de l'art démontre que la DRS dans les HCPCF est un excellent moyen pour la conversion de fréquence optique. En effet, la forte interaction laser-gaz dans ce type de fibre permet d'obtenir des conversions de fréquence à la limite quantique [9]. Aussi, avec un choix judicieux du gaz Raman et du laser de pompe, la radiation Stokes peut couvrir une large gamme de longueurs d'onde [12]. Enfin, la configuration d'une HCPCF remplie de gaz Raman permet d'atteindre un gain Raman exceptionnellement élevé même pour des puissances de pompe relativement modestes. Cette propriété a eu deux conséquences. La première concerne un régime d'amplification Raman permettant la génération de peignes de fréquences optiques ultra-larges et cohérents, c.à.d que les composants spectraux du peigne pour une impulsion de pompe donnée sont à la fois des impulsions limitées par transformée de Fourier (« transform limited ») et mutuellement en accord de phase [40]. La deuxième est la possibilité de générer ces peignes de lumière avec des lasers très peu puissants, et donc très peu encombrants. Comme cela a été vu au chapitre 1, des peignes plus larges que 5 octaves couvrant un spectre allant de ~300 nm jusqu'à 12.7 μm [42] sont désormais atteignables.

Ces démonstrations ouvrent, entre autre, la voie à des lasers multi-lignes peu volumineux et à faible coût pompés par des lasers micro-chips dont l'encombrement physique peut tenir dans une main. Aussi, une combinaison judicieuse de la longueur d'onde de la pompe, la polarisation, le gaz inséré, la pression, la longueur de la fibre et la fibre elle-même, permet l'accord de la génération de spectre à souhait sur une grande plage spectrale. Un premier prototype a été réalisé dans le cadre d'une collaboration entre la société GLOphotonics et le groupe de recherche GPPMM d'XLIM, émettant un peigne Raman dans le visible et pompé par un laser micro-chip impulsionnel [62]. Cependant, ce prototype ne remplissait pas toutes les exigences d'un cahier des charges d'un produit industriel, en particulier le temps de vie de la source était limité par la diffusion de l'hydrogène (i.e. le gaz choisi pour la DRS) à travers la silice de la fibre. Ici nous concevons et réalisons un dispositif permettant de contenir le gaz pour une durée suffisamment longue afin de répondre à cette problématique industrielle.

Dans ce contexte, ce chapitre traite dans un premier temps de la dynamique de la DRS et les différents régimes de génération et d'amplification de ce phénomène avec les différents paramètres sur lesquels il est possible de jouer pour l'optimiser. Nous formulons ensuite les propriétés du dihydrogène comme milieu Raman de choix. Enfin, nous exposons les limites technologiques à dépasser pour transférer cette technologie de laboratoire à l'industrie, ainsi que les solutions pour s'en affranchir.

2. Régimes de génération et d'amplification Raman

a) Introduction

La diffusion Raman est définie comme une diffusion inélastique mettant en jeu deux photons. Dans sa forme la plus fondamentale, la DRS consiste en la génération d'une onde Stokes dans un milieu pompé par un laser pompe. Le terme « génération » doit être lu comme un différentiant par rapport à l'amplification Raman où l'onde Stokes est injectée comme « graine » dans le milieu avec la pompe pour être amplifiée. Dans la configuration génération, l'onde Stokes graine est générée du bruit quantique. La fréquence du Stokes (ω_s) est reliée à la fréquence de la pompe ω_p et la fréquence de transition Raman (ω_R) par $\omega_s = \omega_p - \omega_R$. Aussi, dans certaines conditions, la génération de l'onde de Stokes peut être accompagnée d'une onde anti-Stokes avec une fréquence décalée vers le bleu, $\omega_s = \omega_p + \omega_R$ [63].

Cette diffusion reste faible avec une section efficace de 10⁻⁶ cm⁻¹, c'est-à-dire 1 photon sera converti sur 10 millions à travers un centimètre d'un milieu Raman. L'augmentation de l'intensité du laser de pompe garantit une diffusion inélastique beaucoup plus efficace avec des conversions de photons supérieures à 10%. On parle alors de diffusion Raman stimulée décrit pour la première fois par Woodbury *et al.* en 1962 [64]. La gamme fréquentielle des résonances Raman peut couvrir des fréquences aussi basses que quelques GHz dans les phases solides [65] qu'aussi larges que quelques centaines de THz comme pour les molécules gazeuses légères que sont le dihydrogène et l'ammoniac [66][67]. Malgré sa faible densité, qui réduit la conversion Raman, la phase gazeuse d'un milieu Raman est souvent choisie car elle offre l'avantage d'émettre des ondes Stokes avec des raies fines et discrètes.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

Dans le régime établi (voir ci-dessous), l'intensité du Stokes généré est donnée par $I_s = I_{s0}e^G$. Ici, la quantité I_{s0} est l'intensité du Stokes due au bruit quantique. *G* est le gain Raman net et doit dépasser un seuil *G*_{th} (souvent *G*_{th}=20) pour atteindre le régime stimulé [68]. Il est défini par l'équation suivante :

$$G = g_{ss}P_p(l_{eff}/A_{eff})$$
 Eq. 4-1

Ici, l_{eff} est la longueur effective d'interaction entre le laser pompe et le milieu Raman, donnée par $l_{eff} = (1 - e^{-\alpha_p l})/\alpha_p$, avec l la longueur d'interaction et α_p le coefficient d'atténuation de la pompe. Pour de très faibles coefficients d'atténuation, on a $l_{eff} \approx$ l. Les quantités A_{eff} et P_p sont respectivement l'aire effective et la puissance crête du laser pompe. La quantité g_{ss} est le coefficient du gain Raman. Elle est intrinsèquement déterminée par les propriétés du milieu Raman telles que sa polarisabilité, sa densité et ou encore la longueur d'onde de la pompe.

Le tableau 4-1 donne pour des gaz Raman représentatifs les deux propriétés les plus importantes, à savoir $\omega_p/2\pi$ et g_{ss} . Suivant la molécule active Raman la fréquence de résonnance est différente permettant de décaler la fréquence de pompe par une transition vibrationnelle de 125 THz, et de 17,6 THz à 10,8 THz pour les transitions rotationnelles (cas de l'hydrogène). Cette grande gamme autorise ainsi une conversion de fréquence de la pompe à une longueur d'onde inaccessible par les techniques conventionnelles. Cependant, suivant la polarisabilité de la molécule, le gain Raman est plus au moins fort comme nous pouvons le voir dans le tableau. Le gaz avec g_{ss} le plus fort est l'hydrogène avec un g_{ss} de 3 cm⁻¹/GW (mesuré pour $\lambda_p \sim 700 nm$) grâce à sa petite masse permettant une grande séparation internucléique. Le deuxième avantage de ce gaz moléculaire est de posséder le plus grand décalage fréquentiel vis-à-vis de la longueur d'onde de la pompe permettant de couvrir une large gamme spectrale. Pour ces différentes raisons nous privilégions ce gaz pour les développements de cette thèse. Il est important de noter que malgré le fort gain de l'H₂, atteindre le seuil du stimulé (c.à.d G>20), nécessite pour une configuration en espace libre (où $l_{eff} \approx A_{eff}/\lambda_p$, et $G = g_{ss}P_p/\lambda_p$) des puissances crêtes $P_p > 1MW$. Cela représente donc une véritable difficulté d'étudier la DRS.

Malárulas	Décalage Raman (THz)		g _{ss} (10 ⁻³ cm/GW)
Molecules	$oldsymbol{ u}_{vibrationnel}$	$oldsymbol{ u}_{rotationnel}$	à 694 nm
Cl ₂	16,7		
CS_2	20	0,15/0,18/0,2/0,23/0,25	
O ₂	46,6	2,6/2,9	69
СО	64,3		
N_2	69	1,8/2,3/3,2	35
CH4	87,4		1280
D ₂	90	4/5	550
NH ₃	100	3/4,1/5,3/6,5/7,7/8,8/10	
H_2	125	17,6/ 10,8	3000

Tableau 4-1 : Tableau de diverses molécules active Raman avec le décalage fréquentiel de la transition vibrationnelle et leur gain Raman.[66][69][70][71]

Comme nous pouvons constater dans l'équation 4-1, *G* peut être exacerbé par trois facteurs : (1) un milieu Raman avec un fort g_{ssr} (2) un laser pompe avec une forte puissance ou (3) une configuration d'interaction présentant un fort ratio l_{eff}/A_{eff} impliquant un facteur de mérite (i .e. FOM, introduit dans chapitre 1) suffisamment élevé. Ce dernier point est particulièrement intéressant car il permet la génération de la DRS avec à la fois la plupart des milieux Raman et la plupart des lasers. Ainsi l'introduction de la HCPCF remplie de gaz est la première démonstration de génération DRS à bas seuil [8] témoignant d'un moyen exceptionnel pour la génération de ce phénomène de façon efficace et versatile.



b) Régimes d'amplification Stokes dans la DRS impulsionnelle

La DRS est un phénomène beaucoup plus complexe que laisse paraître notre introduction ci-dessus. Par exemple, le phénomène de DRS a été un moyen d'étudier la manifestation macroscopique d'effet quantique telle que l'amplification de photon dans un état quantique pur [72]. Il est aussi utilisé dans la spectroscopie et la chimie pour détecter et étudier les molécules [73]. Ici nous nous concentrons sur la DRS générée par une pompe impulsionnelle, étant notre configuration expérimentale la plus fréquente. Nous verrons l'impact de la dynamique d'amplification Raman sur la structure spectro-temporelle dans l'impulsion Stokes générée, et sur la génération de peigne de fréquence ultra-large et cohérent. Enfin, dans la partie III de ce manuscrit, nous aborderons la DRS générée par une pompe continue afin de présenter un nouveau régime de DRS et comment il est utilisé pour nano-structurer un milieu gazeux.

La DRS générée par une pompe impulsionnelle a été un sujet d'intense recherche depuis les années soixante avec les travaux pionniers de Bloembergen [63]. Différents modèles ont été développés afin de fournir une théorie de la DRS [74]. La plus complète est décrite par Raymer en 1981 [75] où une étude quantique complète de cette génération est réalisée à partir de l'émission Raman spontanée avec les effets de la propagation spatiale. De cette étude découle trois régimes d'émission Raman avec leur particularité.

Le premier régime correspond à un gain Raman négligeable, l'émission est dite spontanée. L'onde Stokes n'est alors qu'une version amplifiée du bruit quantique. Cette limite est atteinte lorsque la durée d'impulsion τ est inférieure à τ_1 . τ_1 est égale à l'inverse du produit du gain net Raman *G* et de la largeur de bande de collision Γ . L'expression s'écrit donc :

$$\tau < \tau_1 = \frac{1}{G\Gamma}$$
 Eq. 4-2

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

CC BY-NC-ND



La largeur de la bande de collision est l'inverse du temps de relaxation moléculaire $T_2\left(\Gamma = \frac{1}{\pi T_2}\right)$. L'équation 4-1 prend la forme suivante:

$$G = \left(\frac{\tilde{g}}{\Gamma}\right) P_p\left(\frac{l_{eff}}{A_{eff}}\right)$$
 Eq. 4-3

Ici \tilde{g} est le gain Raman intrinsèque au milieu Raman. Il est proportionnel aux constantes de couplage reliées à la polarisabilité du milieu Raman κ_1 et κ_2 , $\tilde{g} = 4\pi\kappa_1\kappa_2/c$. Ces constantes s'expriment par les équations suivantes :

$$\kappa_1 = \sqrt{\frac{1}{2m\hbar\omega_R}} \left(\frac{\partial\alpha}{\partial Q}\right)$$
Eq. 4-4

$$\kappa_2 = \frac{2\pi N \omega_S \kappa_1^*}{n_S c}$$
 Eq. 4-5

Avec *m* la masse effective du milieu Raman excité, n_s l'indice de réfraction du milieu à la fréquence Stokes et *N* la densité du milieu. $\left(\frac{\partial \alpha}{\partial Q}\right)$ est le changement de polarisabilité du milieu avec les coordonnées ro-vibrationnelles où Q est l'amplitude complexe ro-vibrationnelle moléculaire. A noter que \tilde{g} ou g_{ss} peuvent être exprimés en utilisant le formalisme de la matrice de densité (voir partie III).

Une autre manière d'exprimer τ_1 grâce à ces définitions est :

$$\tau_1 = \frac{A_{eff}}{\tilde{g}PL} \qquad \qquad \text{Eq. 4-6}$$

Nous pouvons constater que τ_1 est relié pour partie au temps de déphasage du milieu Raman. Ce temps est fonction de l'efficacité de conversion de la transition Raman de la molécule (\tilde{g}), de la puissance du laser et de la durée d'impulsion. D'autre part, la configuration de l'interaction joue un rôle à travers la longueur d'interaction *L* et l'aire effective du faisceau.

La puissance Stokes de l'émission spontanée s'écrit :

$$P_s^{sp}(L,\tau) = \frac{\hbar\omega_s\Gamma G}{2}$$
 Eq. 4-7

Ce régime suit ainsi une amplification algébrique du bruit quantique avec l'intensité de la pompe, où le flux de photon excité, $N_{S0}^{(sp)} = \Gamma/2$, est amplifié par le facteur *G*. Nous pouvons observer sur le zoom de la figure 4-1(b) la simulation de ce régime validant le caractère linéaire de cette amplification [76].

Le deuxième régime est l'état stationnaire où la durée d'impulsion est plus grande que le produit du temps de relaxation et du gain net Raman, $\tau > T_2G$. La puissance Stokes en état stationnaire s'écrit :

$$P_s^{es}(L,\tau) = \frac{\hbar\omega_s \Gamma e^G}{2\sqrt{\pi G}}$$
 Eq. 4-8

L'intensité Stokes est ici indépendante de la durée d'impulsion. Sa croissance exponentielle, illustrée dans la figure 4-1(a), permet d'assimiler ce régime à un régime stimulé quand $G \ge 20$. L'exposant de la fonction exponentielle est appelé le gain, qui est le paramètre déterminant de l'amplification de l'émission stimulée. Concernant la quantité multiplicative de la fonction exponentielle, une comparaison avec $I_s = I_{s0}e^G$ montre que le flux de photon Stokes excité du bruit est donné par $N_{S0}^{(ss)} = \Gamma/2\sqrt{\pi G}$. Celui-ci est $\sqrt{\pi G}$, valeur plus petite que celui du régime spontané, $N_{S0}^{(sp)} = \Gamma/2$. Cette réduction dans le nombre de photons initiaux est intuitivement comprise par le fait que dans le régime stationnaire seulement une fraction, inversement proportionnelle au gain net, des photons spontanément émis joue le rôle de photons « graines ». Cette fraction est alors amplifiée pour atteindre le seuil de l'émission stimulée.

En rappelant que le temps nécessaire pour que l'impulsion Stokes atteigne son régime établi n'est autre *que* τ_1 , i.e. $\tau_s \sim \tau_1 = T_2 G$ [43], la durée de l'impulsion de la pompe doit être plus longue que le temps de génération et de l'amplification stimulée d'une onde Stokes. L'impulsion Stokes amplifiée de ce régime stationnaire sera la résultante de l'excitation et de l'amplification de plusieurs ondes « graines » Stokes décolérées spatialement et temporellement. Par conséquent, l'impulsion

Stokes ne peut donc avoir une phase déterminée. La nature des ondes « graines » et leur impact sur la structure spectro-temporelle de l'impulsion Stokes sont décrits cidessous.

Enfin, l'état intermédiaire, correspondant à une impulsion pompe ayant une durée située entre le temps caractérisant l'émission spontanée et celui caractérisant l'état stationnaire (i.e. $\frac{T_2}{G} \le \tau \le GT_2$) est nommé état transitoire. La puissance Stokes pour ce régime s'exprime grâce à l'équation :

$$P_{S}^{tr}(L,\tau) = \frac{\hbar\omega_{S}e^{2\sqrt{2\Gamma\tau(G-1)}}}{8\pi\tau} \sim \frac{\hbar\omega_{S}e^{2\sqrt{2\Gamma\tau G}}}{8\pi\tau}$$
 Eq. 4-9

Ce régime est fortement dépendant de la structure temporelle de la pompe. En effet, la durée de l'impulsion affecte le gain. Celui-ci, donné par $G_t = 2\sqrt{2\Gamma\tau G}$, est réduit par rapport au gain *G* du fait que $\Gamma \tau < G/\pi$. Le ratio de réduction, *R*, du gain dans le régime transitoire par rapport au gain dans le régime stationnaire s'écrit comme suit : $R = 2\sqrt{2\Gamma\tau/G}$. Figure 4-2 présente l'évolution de ce facteur de réduction en fonction de $\Gamma \tau$ pour G=1000, et montre bien que plus la durée d'impulsion de la pompe est courte, plus G_t décroit, expliquant la difficulté de générer la DRS avec des impulsions pompes beaucoup plus courtes que le temps de relaxation T_2 du milieu Raman. Aussi, la durée de l'impulsion affecte le facteur multiplicatif de la fonction exponentielle, c.a.d sur le nombre de photons « graines ». Ici, le flux de photon excité initial) est $N_{S0}^{(t)} = 1/8\pi\tau$. Trois observations peuvent être (i.e. tirées. Premièrement, $N_{S0}^{(t)} < N_{S0}^{(sp)} = \Gamma/2$, et donc de manière similaire au régime stationnaire, seulement une fraction des photons de l'émission spontanée participe à la DRS transitoire. Deuxièmement, $N_{S0}^{(t)}$ ne dépend pas du temps de la relaxation, donc le déphasage collisionnel n'a pas d'effet dans ce régime. Enfin, étant donné que $N_{S0}^{(t)}$ est directement inversement proportionnel à la durée d'impulsion de la pompe, le nombre de photons « graines » rentrant en jeu dans la DRS croit avec le rétrécissement de l'impulsion de la pompe. Ce résultat paradoxal trouve son explication dans une description quantique et modale du champ Stokes spontané [75]. Sur le plan pratique, Eq 4-9 indique que la durée d'impulsion de la pompe peut être un moyen de contrôle sur les conditions initiales de la génération de la DRS.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

Aussi, dans ces conditions, un haut degré de cohérence est atteignable avec une impulsion Stokes s'approchant d'une impulsion limitée par la transformé de Fourier.



Figure 4-1 : (a)Croissance de l'intensité Stokes normalisée de la fluctuation quantique en fonction de la largeur de l'impulsion du laser de pompe $\tau_0\Gamma$ normalisé pour différentes valeurs de *gL*.[76](b) Zoom de 4-1(a) sur l'émission spontanée.



Figure 4-2 : Facteur de réduction du gain R dans le régime transitoire en fonction de $\Gamma \tau$ pour un gain net Raman de G=1000.

Ces régimes de la DRS ont été corroborés expérimentalement par Benabid *et al.* [11]. Dans ce but, le seuil d'énergie pour la DRS a été mesuré ainsi que son évolution avec la durée d'impulsion de la pompe. En effet, les expressions des puissances citées plus

haut peuvent être exprimées sous forme de l'énergie d'impulsion nécessaire pour que $G=G_{\text{th}}$, où G_{th} soit une constante (Eq. 4-11).

$$I_S = I_{S0} e^{G_{th}}$$
 Eq. 4-10

$$ln\left(\frac{I_S}{I_{S0}}\right) = G_{th} = constante$$
 Eq. 4-11

L'énergie de seuil de l'état stationnaire peut s'écrire de la manière suivante :

$$\varepsilon_{P,th}^{ss}(\tau) = \frac{G_{th}A_{eff}}{g_R L_{eff}}\tau + \varepsilon_0$$
 Eq. 4-12

Où ε_0 est un offset d'énergie pour un $\tau = 0$ correspondant à l'offset entre l'intensité Stokes dans le régime spontané et l'état stationnaire. La pente de cette équation est linéaire et correspond au seuil de puissance afin d'atteindre l'état stationnaire.

Le seuil de l'état transitoire est quant à lui quadratique comme l'indique l'expression suivante :

$$\varepsilon_{P,th}^{t}(\tau) \approx \frac{A_{eff}}{2\Gamma g_{R}L_{eff}} [G_{th} + ln(4\pi\Gamma\tau) + 2\Gamma\tau]^{2}$$
 Eq. 4-13

Le seuil de l'état stationnaire et transitoire sont calculés à partir de ces expressions pour un G_{th} de 20 et g_R de 3 cm/GW (gain Raman de l'H₂), un diamètre de cœur de 7 µm et une longueur de fibre de 10 m. Dans le cas du régime stationnaire le ε_0 est pris égal à 90 nJ. Les résultats sont tracés sur la figure 4-3. Une mesure expérimentale de ces seuils a été effectuée avec une fibre avec les mêmes paramètres cités en jouant sur la largeur de l'impulsion de la pompe. Les résultats sont en parfaites adéquations avec les simulations pour un seuil de l'état stationnaire situé à une largeur d'impulsion entre 12 et 14 ns. De plus, l'évolution quadratique pour des largeurs d'impulsions inférieures à 14 ns est observée.



Figure 4-3 : Démonstration expérimentale de la dépendance des régimes DRS avec la durée d'impulsion de la pompe [11] .

c) Description modale du champ Stokes

Suivant ces différents régimes d'amplification les modes spatiaux et temporels sont excités de manières différentes, comme prédit par Raymer en 1985 [72]. Dans sa théorie basée sur la mécanique quantique, ces modes sont considérés comme des champs statistiquement indépendants additionnés de manière incohérente afin de construire le champ total. Il est alors possible de décrire l'opérateur du champ électronique en utilisant l'expansion de Karhunen-Loeve à la sortie du milieu Raman. Cette expansion est une représentation d'un processus stochastique comme une combinaison infinie de fonctions orthogonales. Dans le cas traité elle s'écrit :

$$\widehat{E}_{S}^{(-)}(\rho,L,\tau) = \left[\frac{2\pi\hbar\omega_{S}}{c}\right]^{\frac{1}{2}} \left(\sum_{n} \left(\sum_{k} \widehat{b}_{k}^{(n)} \Psi_{k}(\tau)\right) (\beta_{n})^{\frac{1}{2}} \phi_{n}(\rho)\right) \qquad \text{Eq. 4-14}$$

Les modes spatiaux sont exprimés par $\phi_n(\rho)$. Leurs fonctions sont assumées orthogonales avec $\int \phi_k(\rho)\phi_l^*(\tau)d\rho = \delta_{kl}$. La fraction de photon émise dans ces modes est déterminée par $\beta_{n'}$ ainsi $\sum_n \beta_n = 1$.

Les modes temporels, $\Psi_k(\tau)$, ont également leurs fonctions orthogonales avec $\int \Psi_k(\rho) \Psi_l^*(\tau) d\tau = \delta_{kl}$. Vu que ces derniers sont excités de manière statistiquement incohérente, cela implique que $\langle \hat{b}_k^* \hat{b}_l \rangle = \lambda_k \delta_{kl}$ où $\lambda_k = \langle \hat{b}_k^* \hat{b}_k \rangle$ est le nombre moyen de Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018 124 photons émis dans le mode temporel. Ainsi $\sum_k \lambda_k = \langle \widehat{W} \rangle$ (avec $\langle W \rangle$ énergie moyenne), permettant de définir les valeurs propres $\widetilde{\lambda}_k = \lambda_k / \langle \widehat{W}_k \rangle$.

La fraction de l'énergie totale émise dans le mode spatio-temporel $\phi_n(\rho)\Psi_k(\tau)$ est donc $\beta_n \tilde{\lambda}_k$.

Lorsque la durée d'impulsion est inférieure à T_2/G tous les modes spatiaux et temporels peuvent être amplifiés avec la même probabilité vu que nous sommes à des durées inférieures à celle de la relaxation moléculaire. Cela induit que l'impulsion Stokes a des photons sans cohérence spatiale ni de phase dans le cas d'une émission spontanée.

Dans le cas stationnaire, où la durée d'impulsion est supérieure à T_2G , l'impulsion est assez longue pour amplifier plusieurs photons Stokes avec différents modes temporels. Ainsi aucune phase déterministe n'existe, en effet la phase est une moyenne sur les modes spatio-temporels amplifiés non corrélés.

Pour l'état transitoire, le fort gain et la faible durée d'impulsion associés peuvent permettre d'amplifier que quelques modes temporels cohérents. Ces modes sont ceux ayant le gain Raman le plus important. S'il est assez fort un seul mode temporel sera amplifié au niveau macroscopique. Ainsi, vu que les autres modes sont filtrés le processus d'amplification nourrit ce seul mode. Ceci est d'autant plus vrai que le ratio $G\tau_2/\tau$ est grand. Cependant, plusieurs modes spatiaux sont excités. Un schéma récapitulatif est présenté dans la figure 4-4.



Figure 4-4 : Description de l'évolution modale suivant les différents régimes d'amplification. Afin d'obtenir un seul MST dans cette configuration, un filtre spatial doit être incorporé. Ce rôle peut être rempli par une fibre à cœur creux induisant un processus similaire à celui décrit pour les modes temporels. Ainsi la conjugaison de cet état transitoire et de la fibre permet d'exciter qu'un seul mode spatio-temporel. L'impulsion Stokes a donc des photons cohérents en phase et spatialement, elle est également limitée par la transformation de Fourier. Ce paquet d'onde est appelé le mode spatio-temporel dominant correspondant au plus haut gain Raman et se reproduit à chaque impulsion. Il est important de noter que l'amplitude du pic et la phase est aléatoire d'une impulsion à une autre. De plus, la fibre fournit une faible aire effective et de grandes longueurs réduisant de plusieurs ordres de grandeur les seuils de puissance nécessaires pour générer la DRS.

Enfin, comme remarqué précédemment, un état transitoire ou stationnaire Raman dans une HCPCF peut être généré à des seuils d'énergie ultra-bas grâce à l'augmentation de la longueur d'interaction et son confinement sur des surfaces micrométriques. En effet, dans une configuration conventionnelle la puissance nécessaire est de l'ordre du MW avec des durées d'impulsions ps. Avec les HCPCF il est possible d'être en régime transitoire pour des durées d'impulsion beaucoup plus longues avec des puissances bien plus faibles comme illustré sur la figure 4-3, une énergie de moins de 100 nJ suffit typiquement pour générer le Stokes.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

Concernant l'aspect énergétique et temporel des Stokes générés en DRS transitoire une forte dépendance à la pompe existe. Dans ce régime nous avons vu qu'un seul STM peut être amplifié en une impulsion « macroscopique » à transformée de Fourier limitée. Lorsque la cadence de la pompe est suffisamment lente, chaque impulsion Stokes a la même forme temporelle mais avec une phase et une énergie aléatoire. La distribution poissonienne de l'énergie d'impulsion à impulsion montre macroscopiquement ce qui se passe au niveau quantique.

Ainsi en régime transitoire de haut gain il est possible d'obtenir des impulsions Stokes limitées par la transformée de Fourier. La caractéristique de ce régime permet de générer de larges peignes de fréquence et cohérents comme nous allons voir dans la prochaine section.

d) Peigne de fréquence par DRS transitoire

i. Processus de la génération du peigne de fréquence

Comme nous avons vu précédemment, la DRS permet d'atteindre la génération de forts champs Stokes se propageant de manière co-linéaires avec l'impulsion initiale de la pompe. Ici stimulée signifiant que le champ Stokes force la prochaine diffusion Stokes à générer un champ Stokes avec des propriétés identiques (i.e. β , λ et la phase temporelle). Ce processus continue jusqu'à ce qu'un champ Stokes s'amplifie à un niveau macroscopique (> 1.10⁶ photons). Les molécules diffusées à un état excité en DRS peuvent être re-diffusées par la même impulsion générant des photons anti-Stokes (figure 4-5(a)). Ainsi, l'analogie avec le mélange à 4 ondes est faite vu que la génération d'un photon Stokes et un anti-Stokes implique l'annihilation de deux photons de pompe. L'accord de phase peut être défini par $\Delta\beta = \beta_S + \beta_{as} - 2\beta_0$ où β_S , β_{as} , β_0 sont les vecteurs d'onde du Stokes, l'anti-Stokes et des champs de la pompe Raman. L'accord de phase parfait supprime le processus de génération du Stokes et de l'anti-Stokes, alors qu'il est exacerbé pour un faible désaccord de phase (figure 4-5(b)) [77]. Lorsque ces champs Stokes et anti-Stokes de premier ordre s'amplifient, ils seront eux même diffusés par les molécules créant à leur tour des Stokes et anti-Stokes d'ordre supérieur, et ainsi de suite générant un peigne de fréquence. Ce processus de génération Raman en cascade est illustré dans la figure 4-5(c) et peut permettre d'atteindre une grande cohérence moléculaire collective. Cette

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

dernière est dépendante de deux processus : la diffusion Stokes (ou anti-Stokes) de l'état fondamental (ou de l'état excité) et le mélange à 4 ondes. Ce système peut être assimilé à un modulateur de phase où il existe une corrélation de phase entre les composantes du peigne Raman.





ii. Détermination de la cohérence mutuelle.

Expérimentalement il est possible de démontrer la cohérence mutuelle des lignes du peigne en les faisant interférer [40]. La relation de phase est ensuite extraite entre



deux lignes différentes du peigne à chaque impulsion ainsi que son évolution d'impulsion à impulsion.

a. Détermination de la phase interligne

La différence de phase entre deux impulsions peut être calculée. Pour un *n-ième* ordre Raman et pour la *i-ème* impulsion la phase extraite s'écrit :

$$\Delta \varphi_n^{(i)} = \varphi_{n,A}^{(i)} - \varphi_{n,B}^{(i)}$$
 Eq. 4-15

La phase inter-ligne s'exprime quant à elle par :

$$\varphi_n^{(i)} = n\varphi_{QF}^{(i)} + \delta \qquad \qquad \text{Eq. 4-16}$$

Où δ est un décalage de la phase déterministe du au bruit de phase de la pompe et tout autre décalage lors de l'amplification et *n* est l'ordre de la ligne Raman. $\varphi_{QF}^{(i)}$ est déterminée par l'amplification des fluctuations quantiques (constant sur une impulsion). Ainsi la différence de phase entre deux lignes a pour équation :

$$\Delta \varphi_n^{(i)} = n\varphi_{QF,A}^{(i)} + \delta_A - \left(n\varphi_{QF,B}^{(i)} + \delta_B\right) = n\Delta \varphi_{QF}^{(i)} + \Delta \delta$$
 Eq. 4-17

Le faisceau B pouvant être considéré comme une référence, la phase effective pour le faisceau A est $\Delta \varphi_n$. La phase déterministe $\Delta \delta$ peut être éliminée en soustrayant la phase des franges d'interférence de deux impulsions successives. Alors $\Delta \varphi_n$ vaut :

$$\Delta \varphi_n = \Delta \varphi_n^{(i+1)} - \Delta \varphi_n^{(i)} = n \varphi_{QF}^{(i+1)} + \Delta \delta - \left(n \varphi_{QF}^{(i)} + \Delta \delta \right)$$
Eq. 4-18
$$= n(\varphi_{QF}^{(i+1)} - \varphi_{QF}^{(i)})$$

De la même manière, pour la *m-ième* bande la différence de phase est :

$$\Delta \varphi_m = \Delta \varphi_m^{(i+1)} - \Delta \varphi_m^{(i)} = m (\Delta \varphi_{QF}^{(i+1)} - \Delta \varphi_{QF}^{(i)})$$
 Eq. 4-19

La combinaison des équations 4-18 et 4-19 donne une quantité théoriquement nulle, du moment que les *m-ième* et *n-ième* lignes sont totalement corrélées.

$$\phi_{nm} = m\Delta\varphi_n - n\Delta\varphi_m = 0$$
 Eq. 4-20

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

CC BY-NC-ND

Cependant une incertitude réside à cause d'incohérences résiduelles. Un autre facteur prenant en compte ces incertitudes doit donc être implémenté, le coefficient de corrélation.

b. Coefficient de corrélation :

La phase du bruit quantique fluctue temporellement et spatialement (bruit blanc) due à la distribution (similaire à une distribution thermique) des modes spatiaux longitudinaux de l'excitation moléculaire collective. Le champ du laser continu à se diffuser à partir de l'excitation collective moléculaire créant des anti-Stokes supplémentaires. En conséquence le bruit est fortement filtré sous les conditions transitoires à haut gain vu que le processus est résonnant. Ce processus de filtrage produit éventuellement un champ Stokes et anti Stokes déterminé par un seul STM.

La cohérence mutuelle entre le Stokes de premier ordre généré et le champ anti-Stokes dans le régime transitoire à haut gain s'exprime de la manière suivante :

$$C = \frac{\left| \langle E_{-1}^{(-)}(L,\tau) E_{+1}^{(-)}(L,\tau) \rangle \right|^2}{\langle E_{-1}^{(-)}(L,\tau) E_{-1}^{(+)}(L,\tau) \rangle \langle E_{+1}^{(-)}(L,\tau) E_{+1}^{(+)}(L,\tau) \rangle}$$
Eq. 4-21

Vu que les deux champs au numérateur ont des fréquences négatives, ce coefficient permet d'obtenir le degré d'anti-corrélation de la phase entre le Stokes généré et le champ anti-Stokes. Avec $I_{\pm 1} = \langle E_{\pm 1}^{(-)} E_{\pm 1}^{(+)} \rangle$, le coefficient de corrélation de la phase est proportionnel au degré de cohérence mutuelle, si nous considérons que la fluctuation des intensités sont indépendantes de leur phase comme nous pouvons constater dans l'expression suivante :

$$C = \frac{\left| \left\langle \left| E_{-1}^{(-)} \right| \left| E_{+1}^{(-)} \right| \right\rangle \right|^2}{I_{-1}I_{+1}} \left| \left\langle e^{-i(\varphi_{-1} + \varphi_{+1})} \right\rangle \right|^2$$
Eq. 4-22

Une phase temporelle de l'impulsion Stokes est indépendante statistiquement de celle de l'anti-Stokes, alors C = 0. Ce cas est aussi trouvé lorsque les phases des deux champs sont égales. Une anti-corrélation existe quand la somme des phases de ces deux impulsions reste constante d'impulsion à impulsion indiquant un C = 1. La résultante est un C déterminé par les fluctuations de l'intensité. Ce coefficient a été

calculé pour diverses conditions. Ainsi que ce soit pendant la durée de la génération de l'impulsion Stokes ou encore dans les différentes conditions de désaccord de phase entre le Stokes et l'anti-Stokes *C* est égal à 1. Cela implique que le Stokes et l'anti-Stokes sont corrélés de la manière suivante :

$$E_{+1}^{(+)} = \alpha E_{-1}^{(-)}$$
 Eq. 4-23

Où α est une constante complexe. Cela démontre que l'intensité des deux composantes fluctue de la même manière d'impulsion à impulsion mais le système évolue vers une phase parfaitement anti-corrélée. De plus elles sont corrélées avec l'excitation moléculaire collective du milieu. En l'absence de déphasage, cette corrélation peut être considérée comme une manifestation de l'intrication d'états quantiques entre le milieu et le champ.

Ainsi la cohérence entre les lignes Raman dans ce régime peut résulter en des composantes spectrales synchronisées en phase de l'UV à l'IR. Il est important de noter que cette corrélation de phase n'est possible que pour les même résonnances Raman vu que la présence de deux sources graines du spontané implique que deux phases aléatoires entrent dans l'équation.

Pour conclure, la dynamique de génération du Raman d'un gaz confiné dans une HCPCF ouvre la voie à de fortes conversions même avec des lasers peu énergétiques. Cette technologie est idéale pour la conversion fréquentielle d'impulsions lasers mais également afin de développer des sources exotiques à base de peigne Raman.

3. La molécule d'hydrogène

Nous avons vu que la conversion de fréquence dépend fortement de la molécule Raman utilisée. Dans cette section nous décrivons les caractéristiques de la molécule d'hydrogène que nous utilisons afin de mieux comprendre les résultats obtenus. Le diagramme énergétique de la molécule d'H₂ pour deux états électroniques est présenté dans la figure 4-6(a). Chaque état électronique possède ν états vibrationnels. A l'instar des niveaux d'énergie électroniques, ces mouvements internes de la molécule donnent lieu à des niveaux d'énergie discrets correspondants à des états appelés vibrationnels. Ils sont associés au changement de la polarisabilité électriquedipôle reliée aux coordonnées vibrationnelles de la molécule. L'émission du Stokes correspond à une transition entre ces états vibrationnels, et suivent les règles de sélection suivantes : $\Delta v = 0, \pm 1, \pm 2$... pour une transition entre les états vibrationnels, et $\Delta J = 0, \pm 2$... entre les états rotationnels. Les transitions sont définies par $v_{(m,n)}$ avec *m* l'ordre de la transition vibrationnelle et *n* l'ordre de la transition rotationnelle. Ils sont négatifs si ce sont des Stokes et positifs si ce sont des anti-Stokes. La structure énergétique de molécules réelles est très complexe due à leurs nombreux degrés de liberté. Cependant, nous pouvons simplifier la structure énergétique à quelques niveaux dont la transition a la plus grande section transverse. Dans le cas de l'H₂ nous pouvons le considérer comme un système à deux niveaux (figure 4-6(b)) contenant 3 transitions Raman. La transition vibrationnelle (figure 4-6(c)) correspond à une fréquence de 125 THz. Pour le cas d'une transition rotationnelle (figure 4-6(c)) sa fréquence Raman peut être égale à 10,8 THz ou 17,6 THz suivant si les spins sont configuration parallèle ou anti-parallèle. Sachant qu'à l'équilibre en thermodynamique 3 molécules d'hydrogène sur 4 sont dans la configuration orthohydrogène (spins parallèles), les transitions sont principalement situées à 17,6 THz. De plus, nous avons vu dans le tableau qu'elle fournissait le plus grand décalage fréquentiel et le plus grand gain permettant de couvrir une large gamme spectrale. Aussi, son interaction avec le faisceau de la pompe peut être exacerbée par le biais de différents paramètres décrits dans la section suivante.



Figure 4-6 : (a) Diagramme énergétique de la molécule d'H₂ avec l'illustration de la génération Raman hors résonnance. (b) Diagramme des transitions vibrationnelles et rotationnelles dans un niveau énergétique (c) Illustration de la molécule excitée en transition vibrationnelle (d) Illustration de la molécule excitée en transition rotationnelle.

a) Dépendance du gain à la polarisation

La polarisation du laser de pompe influe sur le gain Raman. Les transitions vibrationnelles sont indépendantes de la polarisation. A l'inverse les transitions rotationnelles le sont. Le tableau 4-1 permet de voir l'incidence de la polarisation de la pompe sur la polarisation du Stokes généré et du gain Raman associé. Pour synthétiser, une polarisation circulaire en entrée permet d'obtenir la plus grande amplification. Au contraire une polarisation linéaire implique un gain Raman réduit [69].

Polarisation	Laser de pompe	Stokes généré	Gain Raman
Circulaire	\bigoplus	\bigcirc	α _{rot}
			a _{rot} /6
Linéaire	↑	↑	2.α _{rot} /3
	1	•	$\alpha_{\rm rot}/2$

Tableau 4-2 : Dépendance de la polarisation du Stokes généré et du gain Raman à la polarisation du faisceau incident.

b) Dépendance du gain à la pression d'H₂ et de la longueur d'onde

Le gain Raman pour une transition vibrationnelle (α_{vib} en 10⁻⁹ cm/W) dans un milieu confiné a été exprimé par Bischel *et al.* [79] :

$$\alpha_{vib} = 9,37.10^6 \times \frac{52\rho}{\Gamma} \frac{K_B}{0,658} (\nu_P - 4155).(7,19.10^9 - \nu_P^2)^{-2}$$
 Eq. 4-24

Avec K_B est le facteur de population de Boltzmann (0,658 à 300K) pour le niveau J=1 de H₂, Γ est la largeur de bande Raman en cm⁻¹, et ν_P la fréquence de la pompe en cm⁻¹. Le gain rotationnel (α_{rot} en cm/W) est quant à lui exprimé grâce à l'expression donnée par Carlsten *et al.*[80] :

$$\alpha_{rot} = \frac{8}{5} \frac{\pi^2 \omega_S}{c^2 n_S^2} \frac{(J+1)(J+2)}{(2J+1)(2J+3)} \frac{\gamma^2}{h\Gamma/2} \Delta N$$
 Eq. 4-25

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

CC BY-NC-ND



Où h est la constante de Planck, c la vitesse de la lumière, ns l'indice de réfraction du gaz utilisé à la longueur d'onde Stokes et proche de 1, ω_s la fréquence angulaire Stokes et γ est l'élément anti-diagonale de la polarisabilité anisotropique moléculaire et vaut $\gamma^2 \sim 1.10^{-49} cm^6$ [81]. Cette dernière est proportionnelle à $v_s/(v_i^2 - v_p^2)^2$ avec v_s la fréquence Stokes et v_i la fréquence de transition à des états excités moyenne (8,48.10⁴ cm⁻¹) [82]. Sachant que le premier Stokes rotationnel est une transition du niveau J au niveau J+2 avec J=1, Le nombre de différence de densité peut s'écrire :

$$\Delta N = N(J) - \frac{2J+1}{2(J+2)+1}N(J+2)$$
 Eq. 4-26

Où *N*(*J*) et *N*(*J*+2) sont la densité de population dans le niveau *J* et *J*+2. Leurs expressions sont exprimées dans [80][83]. $\Delta N = 1,699.10^{19}\rho.cm^3$ à 298 K pour *J* = 1.

Les graphiques de la figure 4-7 sont tracés pour une température ambiante et dans le cas d'un régime stationnaire.



Figure 4-7 : (a) Dépendance du gain Raman du Stokes vibrationnel (courbe rouge) et du Stokes rotationnel (courbe verte) (b) Dépendance du gain Raman vibrationnel en fonction de la longueur d'onde.

En jouant sur la pression il est possible de modifier le gain des transitions rotationnelles (représenté en vert) ou vibrationnelles (en rouge) (figure 4-7(a)). Si nous voulons privilégier la génération des transitions rotationnelles, une basse pression est préférable. A l'inverse, une haute pression favorise les transitions vibrationnelles.

Le deuxième graphe illustre l'accroissement exponentiel du gain Raman d'une transition rotationnelle à 10 bars de pression $d'H_2$ en diminuant la longueur d'onde (figure 4-7(b)). Nous pouvons donc gagner quelques facteurs sur le gain en diminuant la longueur d'onde.

4. PMC à long temps de vie

a) Diffusion de l'hydrogène à travers la silice

La problématique principale survenant lors de l'utilisation de ce gaz dans des HCPCF est la perméabilité de la silice à ce dernier. La conséquence est la diminution de la pression au cours du temps et donc du gain Raman limitant le temps de vie d'un tel produit.

La perméabilité est quantifiable en calculant l'évolution de la pression du gaz à l'intérieur de la fibre au cours du temps grâce à l'expression :

$$P(t) = P(0)e^{-Kt/(R_{out}^2 - R_{in}^2)}$$
 Eq. 4-27

 P_0 représente la pression initiale à l'intérieur du cœur de la fibre, *K* est la perméabilité de la silice à l'hydrogène avec une valeur de 1,45.10⁻¹³ cm³ (N.T.P.) mm/cm².s.atm [84]. La fibre est approximée par un simple tube à la dimension du diamètre extérieur de la fibre, la microstructure de la fibre étant négligée en vue de la faible quantité de matière qu'elle représente. Ici, le rayon extérieur de la fibre R_{out} est de 62,5 µm et le rayon de cœur (R_{in}) est 40 µm. La courbe rouge de la figure 4-8(a) représente la pression à l'intérieur de la fibre sur une période de 500 jours avec une pression initiale de 20 bars. Au bout de 22 jours la pression décroît à 7 bars. Cette pression est une pression seuil. Sous cette valeur, le gain de la transition rotationnelle Raman de l'hydrogène diminue avec la pression. Au bout de 100 jours la densité de molécules restantes dans la fibre est quasi nulle. Nous pouvons en déduire une durée de vie de moins de 3 mois. Les mêmes conditions ont été utilisées pour simuler la courbe bleue en prenant en compte cette fois ci la perméabilité de l'aluminium. Cette comparaison permet de montrer que l'aluminium est un matériau de choix pour

encapsuler l'hydrogène. En effet, sa perméabilité est 5 ordres de grandeur plus petite que celle de la silice ($K = 1,45.10^{-18} \text{ cm}^3$ (N.T.P.) mm/cm².s.atm).

(a)



Figure 4-8 : (a) Pression d'H₂ dans un capillaire en silice et en aluminium en fonction du temps. (b) Schéma illustrant le problème de diffusion de gaz dans un solide.

A partir de ces simples considérations, l'idée pour outrepasser ce problème est d'encapsuler la fibre dans un matériau moins perméable que la silice. Une fois



encapsuler la fibre sera sur-pressurisée créant ainsi un gradient de pression afin d'éviter les fuites d' H_2 de la fibre.

b) Conception et réalisation d'un Comblas

Le cahier des charges est donc de réaliser une encapsulation peu perméable à l' H_2 , compacte et robuste.

Une zone doit être dédiée à l'emplacement de la fibre en évitant une courbure trop importante. En effet, les fibres utilisées ont des pertes par courbures non négligeables notamment pour des longueurs d'ondes situées dans le visible. Une fenêtre pour coupler la pompe dans la fibre doit être prévue ainsi qu'une fenêtre de sortie. L'autre aspect à prendre en compte est une connexion gaz pour remplir et vider la boîte et la fibre de manière indépendante afin d'avoir le gradient de pression voulu. Le design de ce premier prototype est illustré dans les CAO de la figure 4-9. Il est constitué d'une plaque frontale composée de deux hublots avec des fenêtres pourvues d'un revêtement anti réflexion pour la gamme du visible. La fibre est encapsulée de manière étanche dans ces hublots et un système de pressurisation est incorporé.



Figure 4-9 : CAO de la Combbox avec une vue de profil et une vue de dessus.

Concernant le matériau, l'aluminium semble le plus adapté pour différentes raisons. La première est son imperméabilité à l'hydrogène de 5 ordres de grandeurs

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

BY-NC-ND

supérieurs à celle de la silice. Deuxièmement il est facilement usinable facilitant la fabrication. Finalement, c'est un matériau relativement léger et robuste répondant au cahier des charges. Le composant final sera donc en Aluminium avec des dimensions de 200 mm de largeur et de longueur sur 30 mm de hauteur.

L'intégration d'un laser à ce composant optique actif est effectuée pour la qualification et la démonstration du potentiel d'un tel système. A cet effet, un peigne de fréquence dans l'UV-VIS est généré. Une pression de 20 bars est insérée dans la fibre et 25 bars dans la capsule. Le laser de pompe utilisé est un micro-chip, choisi pour sa compacité. Sa longueur d'onde de fonctionnement est 532 nm, valeur retenue pour générer un peigne Raman dans l'UV-VIS. La durée d'impulsion est d'1 ns et sa puissance moyenne ~ 30 mW. Une lame quart-d'onde est aussi intégrée au système. En effet, nous avons vu dans le premier chapitre l'optimisation possible du gain des transitions ro-vibrationnels de l'H₂ grâce à une polarisation circulaire. Evidemment, une lentille de focalisation et deux miroirs sont également utilisés pour coupler dans la fibre, ainsi qu'une lentille de collimation à la sortie de la fibre. Le produit final mesure 310 X 300 X 100 mm et est nommé Comblas. La figure 4-10 est une photo de ce dernier avec le peigne généré dispersé sur le flanc avant, ainsi que l'illustration de ce produit avec la Combbox intégrée.

(a)



(b)



Figure 4-10 : (a) Photo du comblas réalisé (b) CAO illustrative de la Comblas.

c) Qualification du temps de vie du produit

Le dernier critère permettant de valider le cahier des charges est la durée de vie du produit. Le spectre optique permet de déterminer si la pression a fortement chuté. Il a été mesuré d'une manière régulière pour déterminer son évolution au cours du temps. La figure 4-11 est un empilement de 4 spectres représentatifs mesurés avec un analyseur de spectre optique sur un intervalle de 11 mois. Il est important de noter que le premier spectre n'a pas été mesuré avec les paramètres appropriés de l'analyseur. Mis à part ce spectre de moins bonne qualité et les incertitudes de mesures ($\sim 5 dBm$), les spectres sont d'une manière qualitative similaires. Le pic vert correspond à la pompe et les pics bleus aux Stokes de premier ordre ($v_{(-1,0)} =$ 683 nm) l'anti-Stokes vibrationnel du premier et du second ordre ($v_{(1,0)}$ = 435 *nm et v*_(2,0) = 368 *nm*). L'indicateur confirmant que le système est étanche à l'H₂ correspond à cette grande similarité entre les spectres mais aussi le fait que les transitions rotationnelles sont toujours générées avec une forte conversion. Cette période représente plus de trois fois le temps de vie usuelle d'une PMC remplie d'H₂. Cette étude n'a pu être poursuivie sur un temps plus long, la PMC ayant servi pour la partie suivante où un laser de pompe plus puissant est étudié.



Figure 4-11 : Evolution des peignes Raman au cours du temps.

5. Conclusion

En conclusion, nous avons vu que le phénomène Raman peut être généré dans trois régimes différents suivant la durée d'impulsion du laser de pompe impliquant une amplification différente. En régime transitoire un haut degré de cohérence avec des impulsions limitées transformée est atteignable lorsque la DRS est effectuée dans une HCPCF grâce à l'amplification d'un seul TSM. Le gain peut être optimisé en jouant sur des paramètres multiples comme la polarisation ou la longueur d'onde. Afin de proposer un convertisseur à base de cette technologie, la conception et le développement d'un module de conversion est présenté. Le design se compose d'une capsule en aluminium entourant la fibre permettant de confiner l'hydrogène grâce à un gradient de pression. Cette PMC a ensuite été intégrée à un laser micro-chip émettant à 532 nm permettant de caractériser le temps de vie à au moins 1 année, remplissant le cahier des charges de l'étude.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018





Chapitre 5. Sources Peigne Raman dans les gammes spectrales du visible et de l'ultra-violet.

Le chapitre 5 rapporte des études systématiques menées avec la PMC développée en chapitre 4. Dans un premier temps cette PMC est pompée par un laser à 532 nm avec une cadence variable qui sera utilisée par la suite dans le chapitre 6 pour générer un peigne dans le visible. Les paramètres optimums pour cet effet sont ainsi déterminés. Puis dans un deuxième temps, un laser émettant à 355 nm est utilisé pour générer un tel peigne Raman dans l'UV proche. Les résultats obtenus forment un nouvel état de l'art et une nouvelle solution photonique pour cette plage fréquentielle.



1. Introduction

Le besoin de sources lasers dans l'UV-Visible pour des applications comme l'imagerie bio-médicale, l'imagerie photo-acoustique, l'OCT, la microscopie biphotons, le séquençage d'ADN, ou encore la cytométrie est en demande continuellement croissante. Cependant, certaines longueurs d'onde ne sont pas couvertes par la technologie des lasers solides limités principalement par le matériau à gain.

Afin de couvrir ces gammes spectrales « exotiques », différents convertisseurs de fréquence existent sur le marché. Ces derniers reposent sur le principe de décaler la longueur d'onde d'un laser vers une autre par effet non-linéaire. Ces phénomènes sont basés sur la génération de fréquence somme (GSF), la génération de fréquence différence (DFG ou OPA) ou encore la génération des harmoniques de la pompe (SHG, THG...) [85] utilisant comme milieu de conversion divers cristaux tels que KH₂PO₄, le LiB₃O₅, les BBO, les LBO pour n'en citer que quelques-uns. De meilleurs taux de conversions sont atteignables via la DFG si le cristal est placé dans un résonateur optique, ce système est nommé oscillateur paramétrique optique (OPO). La génération de plus hautes harmoniques est un moyen efficace de convertir la longueur d'onde de pompe à une harmonique de la pompe que nous pouvons retrouver sur les lasers Yb ou encore Nd :Yag pour rester non exhaustif. Cependant, ces convertisseurs présentent des limitations. Elles sont principalement dues à la nécessité de lasers intenses et des taux de conversion faibles pour la SFG et DFG. Dans le cas de génération d'harmoniques, la plus grande limite sont les longueurs d'onde atteignables.

La dernière décennie a vu l'émergence d'autres types de sources lasers. Le premier s'agit de source super-continuum permettant de couvrir une large gamme spectrale. Le principe repose sur le pompage d'une PCF fortement non linéaire dans le régime quasi continu ($\tau > 1 ps$) ou femto-seconde. Les phénomènes physiques impliquant la formation du super-continuum sont multiples et diffèrent suivant le régime temporel. Nous nous limitons au cas du pompage en régime anormal de la fibre afin de donner un exemple. En quasi continu l'onde de pompe est brisée par instabilité de modulation alors qu'en femtoseconde il est régi par la SPM. Dans les deux cas Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

BY-NC-ND
chaque soliton est décalé vers le rouge par effet Raman suivi par la génération d'ondes dispersives [86]. La résultante est un large spectre continu couvrant typiquement la gamme 500 nm-MIR comme nous pouvons le voir sur la figure 5-1(a). Commercialement, ils sont généralement pompés avec des lasers ps avec une cadence de quelques MHz et une puissance moyenne de quelques Watts. Cependant, afin de discrétiser les lignes, des filtres doivent être implémentés induisant une perte de puissance et engendrant de faibles densités spectrales. De plus le spectre est limité à des longueurs d'onde au-dessus de 500 nm.



Figure 5-1 : (a) Transmission typique d'un super-continuum avec une photo d'un faisceau diffracté (b) Photo du premier prototype du Comblas avec son faisceau diffracté.

Le deuxième type et qui concerne les travaux de cette thèse consiste en un laser multi-ligne offert par la DRS générée dans des HCPCF IC. Une première démonstration du produit est montrée sur la figure 5-1(b). Les caractéristiques du spectre émis est rapporté dans [62]. L'avantage comparé au super-continuum est une discréditation des lignes induisant de fortes densités et puretés spectrales ainsi que la possibilité de générer dans l'UV avec de fortes conversions. La limite de ce système est le temps de vie inférieur à 3 mois du à la perméabilisation de l'H₂ à travers la silice sans la solution proposée dans le chapitre précédent.

Ainsi, dans ce chapitre nous nous intéressons à la conversion de fréquence qu'une telle source offre en utilisant différents lasers de pompes. Dans une première phase, deux micros-chips sont utilisés afin de pomper à 532 nm. Le premier est identique à



celui du chapitre précédent servant à qualifier le produit. Le deuxième est plus énergétique avec une cadence accordable. L'objectif, adressé dans le chapitre 6, est de tester la limite de la cytométrie vis-à-vis du taux de répétition du laser. Enfin, un laser de pompe émettant à 355 nm est utilisé dans le but d'améliorer la génération dans l'UV et proposé une source multi-ligne dans cette gamme de longueurs d'onde. A noter que pour chacune de ces études, différentes HCPCF ont été développées pour un guidage optimisé à 532 nm ainsi qu'à 355 nm.

2. Pompage de la Combbox par un laser à 532 nm

a) Définition de la fibre pour la DRS pompée à 532 nm

Afin d'obtenir de fort taux de conversion via la DRS, le diamètre de cœur de la fibre doit être réduit. Allier de faibles pertes avec cette caractéristique est en lui-même un défi lors de la fabrication. De plus, à 532 nm la lumière est plus sujette à être diffusée par les défauts structuraux de la fibre augmentant les pertes. Nous avons vu dans la partie précédente des développements des fibres avec de faibles pertes dans cette gamme, cependant le cœur est trop large et les bandes de transmission trop étroites. Le choix s'est donc tourné vers une fibre Kagomé présentant un design particulier développée par Debord et al. [87]. En effet, les fibres utilisées pour ce type d'applications sont usuellement des fibres avec un défaut de cœur afin d'avoir le diamètre de ce dernier réduit. Or, l'inconvénient de ce type de configuration est l'impossibilité de forcer une courbure négative sur le contour du cœur qui est le paramètre clé pour l'IC. Les pertes dans cette gamme spectrale sont donc généralement de l'ordre de 500 dB/km à 1 dB/m. Pour diminuer ces pertes, une fibre avec un cœur composé de 7 défauts (1 défaut correspondant à un capillaire de cœur ôté) et une gaine formé d'une micro structure à 3 anneaux a été tirée. Le diamètre de cœur a été réduit tout en gardant un fort b et des ponts assez fins dans le but de décaler la bande de transmission vers les courtes longueurs d'onde.

Les diamètres internes et externes du cœur sont de 21 μ m et 32 μ m comme nous pouvons le voir sur la figure 5-2(b). Le *b* mesuré est de 0,3. Les ponts de silice du contour de cœur mesurent 140 nm correspondant à une première coupure de bande à

295 nm. Contrairement à d'habitude, les ponts de silice situés hors du contour de cœur sont plus de deux fois plus épais (i.e. 350 nm) dû à la pressurisation indépendante du contour de cœur afin de les affiner le plus possible et de décaler la bande de transmission vers l'UV.

La caractérisation de la fibre par la méthode du cut-back est présentée sur la figure 5-2(c). Nous observons une première limitation de la bande de transmission à 450 nm. Elle provient des ponts de silice plus fins, c'est-à-dire ceux du contour de cœur. La seconde coupure se situe vers 720 nm causée par les ponts les plus épais. A noter que les ponts les plus épais ne viennent pas impacter la valeur du MFD grâce au faible recouvrement entre le mode fondamental et les ponts de silice plus épais. Les pertes sont de l'ordre de 130 et 150 dB/km à 532 et 515 nm. Les meilleures pertes sont obtenues à 600 nm avec des pertes à 70 dB/km constituant un record en termes de performance optique pour une maille Kagomé.



Figure 5-2 : (a) Image MEB de la fibre. (b) Image MEB du cœur de la fibre. (c) Transmission sur 3,5 m de fibre (courbe rouge), transmission sur 30 m de fibre (courbe bleueu) et courbe des pertes de la fibre.

b) Analyse du spectre en sortie du Comblas

Une longueur de 2,5 m de cette fibre remplie d'hydrogène à une pression de 15 bars a été insérée dans le Comblas. Le spectre généré en sortie est mesuré grâce à un analyseur de spectre optique. Une mesure typique est tracée sur la figure 5-3 avec une photo du peigne dispersé. Pas moins de 26 lignes lasers espacées de 17,6 THz sont ainsi mesurées de 350 à 800 nm (d'autres lignes sont générées dans le proche IR, l'accent est ici mis sur le visible). En vert sont représentées les 9 transitions rovibrationnelles de la pompe. Le Stokes $v_{(-1,0)}$ est généré à 125 THz de la fréquence de la pompe, c.à.d. à 439,1 THz. L'efficacité de conversion permet à cette transition de jouer le rôle de pompe pour les 5 transitions ro-vibrationnelles Stokes et anti-Stokes représentées en rouge ($v_{(-1,-3)}$, $v_{(-1,-2)}$, $v_{(-1,-1)}$, $v_{(-1,1)}$). La même chose est observée pour $v_{(1,0)}$ située à 668,7 THz induisant 5 Stokes et anti-Stokes rovibrationnels ($v_{(1,-1)}$, $v_{(1,1)}$, $v_{(1,2)}$, $v_{(1,3)}$ et $v_{(1,4)}$). Enfin l'anti-Stokes $v_{(2,0)}$ à 813,2 THz génère 3 Stokes et un anti-Stokes ro-vibrationnelles ($v_{(2,-2)}$, $v_{(2,-1)}$, et $v_{(2,2)}$). La puissance moyenne en sortie est de 9 mW correspondant à une puissance crête de 2 kW.

La densité de puissance est ensuite déduite pour chaque ligne. La largeur de bande étant de l'ordre de 150 GHz, les densités correspondantes sont comprises entre 195 et 260 mW/nm. Le spectre du peigne est scindé en trois régions sur l'axe des amplitudes. Les lignes situées au-dessus de -20 dBm sont au nombre de 10 avec des densités de puissance supérieures à 100 mW/nm. La deuxième zone, dont les frontières sont situées entre -20 dB et -30 dB est l'hôte de 9 lignes avec une densité de puissance entre 20 et 100 mW/nm. Enfin, les 7 lignes ayant une amplitude inférieure à -30 dB présentent une densité de puissance inférieure à 20 mW/nm.



Figure 5-3 : Photo du spectre généré avec sa détection à l'OSA.

Le tableau 5-1 compare les performances de cette Comblas aux différents produits présents sur le marché en terme de largeur de bande et de densité de puissance moyenne. Ainsi, les LED ont une haute densité de puissance mais uniquement sur une largeur de bande restreinte associée à une mauvaise qualité de faisceau. Les spectres des lampes Tungsten et les super-continuums [88] émettent en de grandes largeurs de bande mais avec une faible densité de puissance. De plus, afin d'obtenir des lignes discrètes ciblées avec ces sources, comme il a été mentionné précédemment, il est nécessaire d'utiliser un filtre acousto-optique réglable diminuant les densités de puissance. Une des limites de ce composant est la possibilité de ne filtrer que 8 longueurs d'onde avec des largeurs de bande allant de 1,8 nm pour les longueurs d'onde les plus courtes à 8 nm pour des longueurs d'onde plus élevées. A l'inverse, la largeur de bande de la Comblas permet de couvrir l'UV-VIS avec 26 lignes discrètes simultanées comprenant un spectre de haute pureté avec

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

une forte densité de puissance moyenne. Les caractéristiques spectrales proposées par ce produit peuvent être avantageuses par rapport aux autres sources mises en exemple.

Source	Spectre	Largeur de bande (nm)	Densité de P _{moyenne}
LED		425-650	30 mW/nm
Lampe Tungsten		400-3000	5 mW/nm
Super Continuum		350-2400	3 mW/nm
CombLas	⁷⁶⁰ ⁸⁰⁰ ⁸⁰⁰ ^{421,8} ³⁷⁶ ^{421,8} ^{421,8} ³⁷⁶ ^{421,8} ⁴²¹	350-800	300 mW/nm

Tableau 5-1 : Comparaison des différents technologies générant un large spectre.

c) Peigne Raman vs cadence de la pompe

Le laser utilisé pour cette seconde expérience est un laser solide Nd:YVO₄ pompé par une diode (DPSS) de chez Spectra physics. Il présente plusieurs avantages dont sa compacité, son faible poids, ainsi que la variabilité de ces propriétés optiques. Le taux de répétition est ainsi modulable de 40 à 500 kHz permettant de sonder l'influence du taux de répétition sur la détection du cytomètre. Dans cet exemple, l'énergie atteint 115 μ J à 40 kHz et moins d'une vingtaine de μ J pour des cadences supérieures à 200 kHz. Nous pouvons également observer une augmentation de la

largeur d'impulsion lorsque le taux de répétition augmente à la puissance maximum (figure 5-4(b)) et augmente lorsque l'ampérage est augmenté (figure 5-4(c)). Bien que le taux de répétition fait varier plusieurs paramètres importants pour le Raman (i.e. la puissance crête et la durée d'impulsion), nous l'utiliserons comme paramètre de référence vu que c'est le paramètre déterminant pour l'étude effectuée dans le prochain chapitre, la cytométrie.



Figure 5-4 : (a) Evolution de la largeur d'impulsion et de la puissance moyenne suivant la cadence du laser. (b) Energie de l'impulsion suivant le taux de répétition du laser (c) Evolution de la puissance en moyenne de la pompe et de la durée d'impulsion en fonction du courant fixé.

d) Investigation de la longueur de fibre

Comme montré précédemment, le facteur de mérite dépend de la longueur de la fibre et de ses pertes linéiques. Une étude a donc été menée afin de déterminer la longueur de fibre optimale pour le cas d'une génération d'un peigne Raman dans l'UV-VIS.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

CC) BY-NC-ND

A cet effet, le taux de répétition choisi est 80 kHz fournissant une énergie de 63 μ J et une puissance moyenne de 5 W. La largeur d'impulsion à mi-hauteur est de 9 ns. La puissance est contrôlée par une lame demi-onde suivie d'un cube polariseur. Une lame quart d'onde est également disposée afin d'obtenir une polarisation circulaire. Enfin, chaque extrémité de la fibre est enfermée dans une cellule à gaz avec une fenêtre présentant un revêtement anti-réfléchissant pour les longueurs d'onde du visible. L'étude a été faite pour une pression d'hydrogène de 10 bars.

Les spectres en sortie de fibre sont mesurés par un analyseur optique allant de 350 à 1750 nm et ce pour quatre longueurs de fibres différentes ; 75 cm, 1 m, 2,5 m et 7,5 m. Ils sont présentés sur la figure 5-5 pour une énergie de 90 μ J.

Premièrement, dans le cas d'une longueur de fibre de 7,5 m, le spectre est limité à 11 lignes dans le visible et quelques lignes dans l'IR. De plus la puissance moyenne en sortie n'est que de 300 mW. Trop de pertes par effets non linéaires sont induites avec cette longueur. En effet plus le gain est important plus le nombre de lignes générées augmente dont certaines se retrouvent dans des régions spectrales non guidées par la fibre induisant des pertes du taux de transmission. En effet, nous pouvons constater que Stokes d'ordre est généré ($\nu_{(-2,0)}$ =954 nm) cependant la gamme spectrale entre ce dernier $v_{(-1,0)}$ est dépeuplée de lignes rotationnelles vu qu'elle est située sur une zone où la fibre exhibe des pertes plus importantes. Quant à la plage située à des longueurs d'onde en dessous de 470 nm est vide pour les mêmes raisons. Lorsqu'elle la fibre est réduite à une longueur de 2,5 m, ces régions UV-VIS deviennent plus fournies avec l'apparition notamment des deux anti-Stokes vibrationnel $v_{(1,0)}$ et $v_{(2,0)}$. La puissance moyenne totale en sortie est de 1,3 W. Afin d'optimiser l'UV-VIS la fibre est réduite à 1 m. La puissance moyenne en sortie est alors de 1,5 W avec des composantes du peigne plus intenses dans l'UV-VIS. Enfin, la fibre est raccourcie à 75 cm. La génération dans l'IR et dans le visible est moins efficace de manière générale. En conclusion, pour ce laser de pompe, la longueur optimale pour générer un spectre UV-VIS est de 1 m.



Figure 5-5 : Peignes Raman mesurés à l'OSA pour différentes longueurs de fibre.

e) Evolution du peigne en fonction de la pression et du taux de répétition

En cytométrie, une caractérisation adéquate des cellules à analyser passe par récolter un nombre suffisant d'évènements. Plus la cadence du laser est importante plus la probabilité de l'interaction lumière-matière est élevée, in fine la probabilité de récolter un événement est augmentée. Ainsi, les lasers utilisés ont généralement des taux de répétition supérieurs à 1 MHz. Cependant aucune étude précise n'a été menée sur l'influence du taux de répétition. Ici, nous proposons de la caractériser grâce à notre composant pompé avec un laser à cadence variable.

La première série de mesures a été obtenue avec un taux de répétition de 50 kHz. Des peignes composés par les différentes transitions vibrationnelles et rotationnelles sont mesurés pour un optimum de pression entre 4 et 10 bars en terme de répartition des énergies aux différentes fréquences visées. Lorsque la cadence est élevée à 150 kHz,

la génération est limitée aux transitions vibrationnelles. En effet, l'énergie étant quasiment deux fois moins élevée, le gain Raman s'en trouve fortement diminué.

Le graphique 5-6 suivant représente l'évolution du peigne en fonction du taux de répétition (de 120 à 300 kHz) pour une pression d'H₂ de 10 bars. La première observation est qu'une excitation des transitions rotationnelles est possible jusqu'à 120 kHz pour cette pression fixe. Deuxièmement, au-dessus de 210 kHz la génération des transitions vibrationnelles diminue jusqu'à s'éteindre pour des taux de répétition de 300 kHz (correspondant à 17 μ J). Cependant, compte tenu de la difficulté de mesurer la puissance moyenne réelle des différentes transitions avec l'OSA (couplage, seuil de dommage de l'instrument à 100 mW), une étude plus approfondie a été menée dans la partie suivante en mesurant avec un puissance mètre les différentes transitions.



Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018



Figure 5-6 : (a) Evolution du spectre Raman mesuré à l'OSA pour différentes pressions à un taux de répétition de 50 kHz avec une durée d'impulsion de 8 ns. (b) Evolution du spectre Raman mesuré à l'OSA pour différentes pressions à un taux de répétition de 150 kHz avec une durée d'impulsion de 15 ns. (c) Evolution du spectre Raman mesuré à l'OSA pour différents taux de répétition du laser à 10 bar pour une durée d'impulsion de 12 ns pour 120 kHz, 15 ns pour 150 khz, 17 ns pour 180 kHz, 20 ns pour 210 kHz, 21 ns pour 230 kHz, 22 ns pour 250 kHz et 25 ns pour 300 kHz.

f) Puissance moyenne des transitions vibrationnelles

Les transitions vibrationnelles du Stokes et de l'anti-Stokes du premier ordre à 683 nm et 435 nm sont caractérisées dans un premier temps pour une pression fixe, un taux de répétition et une puissance moyenne variable du laser. Dans un deuxième temps en fixant la puissance à son maximum pour différentes cadences du laser (i.e. différentes durées d'impulsion).

i. Variation du taux de répétition et de la puissance du laser

Cette série de mesures est effectuée pour une pression de 20 bars pour le Stokes (figure 5-7(a)) vibrationnel et de 13 bars pour l'anti-Stokes (figure 5-7(b)). Que ce soit pour le premier Stokes vibrationnel ou le premier anti-Stokes, la tendance reste identique. La bande de «gain » s'élargie lorsque la puissance du laser est augmentée. Nous pouvons aussi noter que la puissance moyenne maximum du Stokes et de

l'anti-Stokes est décalée vers des plus hauts taux de répétition du laser. De plus, elle augmente d'un facteur 4 dans les deux cas lorsque la puissance en entrée est ajustée d'1,1 à 5 W. Cette tendance est directement reliée à l'énergie. Pour de faibles énergies, le gain Raman est faible générant majoritairement les transitions vibrationnelles. Lorsque l'énergie est élevée le gain Raman augmente et les transitions vibrationnelles se comportent alors comme des pompes à leur tour pour les transitions rotationnelles ou des Stokes d'ordre plus élevé. La conséquence est leur déplétion et donc une atténuation de leur puissance moyenne. Lorsque l'énergie diminue (plus haut taux de répétition) la puissance moyenne du Stokes et de l'anti-Stokes vibrationnel du premier ordre augmente pour atteindre un maximum puis diminue de manière exponentielle. En effet, le gain Raman chute ne générant plus que les transitions vibrationnelles de premier ordre qui sont de moins en moins déplétées par les autres transitions rotationnelles, ou d'ordres plus élevés, jusqu'au moment où le gain est trop faible pour générer la DRS.

Afin de mieux examiner cette évolution avec le taux de répétition du laser pompe, nous rappelons que l'augmentation de la cadence s'accompagne avec une réduction de l'énergie de la pompe et une augmentation de sa durée (voir figure 5-4). Aussi, pour rappel, la puissance du Stokes suit l'expression suivante :

$$P_s^{tr}(L,\tau) \sim \frac{\hbar\omega_s e^{2\sqrt{2\Gamma\tau G}}}{8\pi\tau}$$
 Eq. 5-1

L'examen de cette équation montre après substitution de l'énergie et la durée de la pompe avec la cadence f_{rep} du laser montre que la puissance du Stokes évolue avec la cadence de la pompe comme suit $P_s^{tr}(L,\tau) \propto e^{a f_{rep}}/b f_{rep}$. Ici, *a* et *b* sont des constantes d'interpolation. Cette expression montre que l'augmentation du taux répétition de la pompe induit une décroissance de l'émission Stokes. Ce régime correspond à l'intervalle défini par les deux lignes verticales de la figure 5-7(a). La ligne verticale bleue correspond au seuil d'énergie de la pompe requise pour mesurer une radiation Stokes situé entre 10 et 13 µJ pour les puissances de pompe de 1,1, 2,1 et 3,5 W et 17 µJ pour la pompe à 5 W. La déviation par rapport aux autres mesures observée à 5 W peut provenir des conditions de couplage qui ont légèrement bougé lors de l'expérience ou encore de la détection.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018



Figure 5-7 : (a) Evolution de la puissance moyenne du Stokes vibrationnel de premier ordre en fonction du taux de répétition du laser. (b) Evolution de la puissance moyenne de l'anti-Stokes vibrationnel de premier ordre en fonction du taux de répétition du laser.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

BY-NC-ND

En parallèle, la ligne verticale marron, correspondant à la puissance moyenne maximale atteint par le Stokes vibrationnel d'ordre 1. Elle indique l'amorçage de la génération de lignes Raman d'ordre plus élevé. Ceci est corroboré par la ligne verticale marron de la figure 5-7(b) placée à l'énergie de pompe associée au maximum de la puissance du premier Stokes. Elle montre bien qu'au-delà de cette ligne marron le Stokes se déplète en faveur de l'anti-Stokes. La figure 5-8 montre les paramètres du laser, à savoir l'énergie, la durée et le taux de répétition, correspondant au maximum de puissance du premier Stokes pour les quatre puissances moyennes, à savoir 1,1, 2,1, 3,5 et 5 W (correspondant à différents ampérages). Une extrapolation des figures 5-4 (a) et 5-4(c) montrant l'évolution de la largeur d'impulsion en fonction du taux de répétition et du courant du laser a été réalisée afin de déduire la durée d'impulsion pour chaque courant aux différentes fréquences d'impulsion. Nous pouvons constater sur la figure 5-8 que la durée d'impulsion nécessaire pour générer le maximum de puissance moyenne dans le Stokes vibrationnel est située aux alentours de 16 ns.



Figure 5-8 : Puissance moyenne maximum du Stokes vibrationnel de premier ordre en fonction de l'énergie des impulsions et le taux de répétition. Tau représente la durée de l'impulsion du laser pour ces valeurs.

ii. Optimisation du taux de répétition et de la pression

Dans cette section, nous jouons sur la densité du gaz actif Raman. Comme nous pouvons constater sur la figure 5-9(a), une meilleure génération du premier Stokes

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

vibrationnel est obtenue pour une pression de 13 bars à un taux de répétition de 175 kHz. Le maximum de puissance pour l'anti-Stokes se situe également à 13 bars pour une énergie d'environ 28 μ J. A 18 bars l'anti-Stokes est fortement dépeuplé jusqu'à une vingtaine de μ J. Ainsi les valeurs optimum pour générer de manière préférentielle le Stokes et l'anti-Stokes de premier ordre est une énergie située entre 20 et 25 μ J à 13 bars de pression d'H₂ limitant le taux de répétition du laser à des valeurs inférieures à 250 kHz. Pour une énergie inférieure le gain Raman est tout simplement trop faible pour être généré. Pour une énergie supérieure le Stokes et l'anti-Stokes et l'anti-Stokes de premier ordre sautres transitions Raman.



Figure 5-9 : (a) Evolution de la puissance moyenne du Stokes vibrationnel de premier ordre en fonction de la cadence du laser et de la pression d'H₂. (b) Evolution de la puissance moyenne de l'anti-Stokes vibrationnel de premier ordre en fonction de la cadence du laser et de la pression d'H₂.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

3. PMC pompée par un micro-chip à 355 nm

Nous avons vu dans la partie précédente l'accordabilité du peigne Raman en fonction de différents paramètres d'optimisations que sont la longueur de la fibre et la pression du gaz H₂ pour une excitation à 532 nm. Un autre intérêt d'un tel produit est d'être capable de générer de tels peignes dans d'autres domaines spectraux. Ici nous nous focalisons sur l'UV. En effet, cette gamme de longueurs d'onde est très convoitée pour bon nombre d'applications comme la purification de l'air, le médical, la criminologie, la photolithographie pour n'en citer que quelques-unes. Actuellement, cette région spectrale est couverte soit par des lasers excimers qui restent une technologie encombrante et vieillissante ou par la génération d'harmoniques de lasers très intenses. Ici, le but est de proposer un système photonique simple permettant de couvrir un grand nombre de ces longueurs d'ondes d'intérêt UV grâce à la DRS dans une HCPCF remplie d'H₂. Jusqu'à présent cette technique a permis de descendre à 321 nm en pompant à 1030 nm en régime ps avec 22 W de puissance moyenne [42]. Récemment, en pompant à 266 nm un peigne Raman purement vibrationnel a été obtenu grâce à la combinaison de la DRS avec une modulation moléculaire intermodale [89]. Ce peigne est composé de 4 lignes Stokes et 4 anti-Stokes avec de faibles rendement de conversion (en dessous de 1% mise à part pour les transitions du premier et second ordre Stokes). Dans cette section nous proposons de pomper une fibre creuse remplie d'hydrogène par un laser micro-chip à 355 nm ayant une énergie de 5 μ J et une durée d'impulsion d'1 ns. A noter que pour cet objectif une fibre a été spécialement conçue et fabriquée.

a) Fibre optimisée pour la génération de la DRS par un pompage à 355 nm

La conception et la réalisation de la fibre creuse sont basées sur une configuration à maille tubulaire. En effet, le potentiel de ces fibres pour les gammes de longueurs d'onde courtes a été démontré dans la première partie de cette thèse avec des pertes mesurées record de 75 dB/km à 355 nm et 150 dB/km à 343 nm. La limite relative de cette fibre pour une DRS exacerbée est son diamètre de cœur (42 μ m) trop important pour une génération efficace. Afin d'améliorer les performances de la génération Raman, la réalisation d'une telle fibre présentant un diamètre de cœur réduit est

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

souhaitée. Pour ce faire, le design utilisé se porte sur une maille à 8 tubes avec des ponts de silice souhaités proches de 580 nm d'épaisseur (figure 5-10(a)) afin d'optimiser la transmission à 355 nm. La mesure des pertes par cut-back est montrée sur la figure 5-10(b). Des pertes de 18 dB/km sont obtenues à 700 nm et atteignent un nouveau record de 6 dB/km à 480 nm. Quant aux pertes à 355 nm elles sont mesurées à une valeur en dessous de 50 dB/km, valeur corroborée par les calculs théoriques. Ces valeurs sont en dessous de la limite fondamentale de la diffusion Rayleigh de la silice. De telles performances ont pu être atteintes grâce à un nouveau processus d'étirage développé afin de réduire les imperfections à la surface des tubes afin de limiter la fuite de photons par diffusion de surface.



Figure 5-10 : (a) Image MEB de la fibre utilisée. (b) Spectre des pertes de la fibre de 400 à 1000 nm avec la courbe des pertes due à la diffusion Rayleigh dans la silice. (c) bande de transmission de la fibre de 400 à 1000 nm.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

b) Etudes systématiques de la génération du peigne dans l'UV

Les spectres sont mesurés à l'aide d'un spectrophotomètre de chez *StellarNet*. Deux études ont été menées : avec différentes longueurs de fibre, l'autre avec une pression variable.

i. Optimisation de la pression du dihydrogène

Pour cette étude, la longueur de fibre est fixée à 1,8 m. La pression est changée de 5 à 15 bars. A noter que cette étude a été également été réalisé pour des longueurs de 60 cm, 1,2 et 2,5 m mais non présenté ici afin d'être plus synthétique.Les spectres sont tracés sur la figure 5-11 où nous pouvons constater un décalage de la conversion vers le rouge lorsque la pression augmente avec une très forte déplétion de la pompe à 15 bars. En effet, le gain des transitions vibrationnelles augmente favorisant leur génération sur des ordres plus élevés. Sachant que les longueurs d'onde des transitions vibrationnelles des Stokes d'ordres élevés. à savoir $v_{(-1,0)} = 504 \text{ nm}, v_{(-2,0)} = 637 \text{ nm et } v_{(-3,0)} = 867 \text{ nm}$, se situent dans des bandes de transmission à faible pertes de la fibre alors que celle des anti-Stokes se situent dans des zones à fortes pertes de la fibre ($v_{(1,0)} = 310 \text{ nm et } v_{(2,0)} = 274 \text{ nm}$, il est normal de trouver une telle disparité de conversion entre les Stokes et les anti-Stokes. Aussi, il est préférable de travailler dans la gamme des pressions basses afin de limiter la conversion vers l'IR se faisant au détriment des lignes UV. En effet, lorsque la pression diminue nous constatons que la pompe est moins dépeuplée ainsi que les Stokes et anti-Stokes de premier ordre avec un optimum à 5 bars. Ainsi, si nous voulons un spectre avec le maximum de lignes générées de manière efficace dans l'UV il est nécessaire de travailler à 5 bars.



Figure 5-11 : Evolution du spectre de 250 à 1000 nm sur une échelle linéaire mesurée au spectrophotomètre pour différentes pressions pour une longueur de fibre de 1,8 m.

ii. Optimisation de la longueur de la fibre

Afin d'optimiser la conversion dans l'UV, quatre longueurs de fibre sont testées, 60 cm, 1,2 m, 1,8 m et 2,5 m pour une pression fixée à 5 bars d'H₂ (figure 5-12) afin de jouer finement sur l'efficacité de notre conversion. Plus de 40 lignes sont générées de 225 nm (cf. fig.5-13(b)) à 910 nm suivant la longueur de la fibre. On constate qu'en augmentant le gain en diminuant la longueur d'onde de pompe et les performances dans l'UV de cette fibre, il est possible de générer les quatre premiers Stokes et anti Stokes d'ordres supérieurs agissant à leur tour comme une pompe pour les transitions rotationnelles. Nous pouvons constater que la longueur optimale de fibre est 120 cm si l'objectif visé est d'optimiser la conversion dans l'UV. En effet, lorsque la longueur de fibre est plus importante, les pertes par non linéarité dans l'UV sont trop élevées. A l'inverse, 60 cm de fibre ne fournit pas un gain assez fort mais représente l'avantage d'un meilleur rendement de conversion sur les transitions vibrationnelles. Bien que ça ne soit pas le cas voulu ici, son intérêt serait de répartir les photons de la pompe que sur quelques longueurs d'onde avec de fortes puissances de l'UV au proche IR.



Figure 5-12 : Photo du peigne diffusé avec un réseau de diffraction et l'évolution du spectre en fonction de la longueur de fibre avec une échelle linéaire pour une pression de 5 bars.

iii. Détermination des fréquences converties dans l'UV

Les graphiques de la figure 5-13 représentent un zoom de la région spectrale UV. Dans les deux cas, la longueur de fibre est 1,20 m et la pression de 5 bars. Le graphique 5-13(a) illustre le ratio entre la pompe et les composantes du peigne dans cette gamme de longueur d'onde. L'amplitude est une échelle linéaire indiquant que les 5 composantes situées entre 345 et 400 nm (mise à part la pompe) ont une amplitude plus faible d'un facteur 2 en comparaison avec celle de la pompe. Les 5 composantes entre 305 et 345 ont elles une amplitude 4 fois plus petite que celle de la pompe. Enfin, pour les 7 autres lignes couvrant la région 265 à 305 nm un facteur 10 de différence avec la pompe est observé. Le spectre de la figure 5-13(b) est mesuré en saturant la pompe sur le détecteur afin de détecter d'autres lignes éventuelles. Nous pouvons constater la présence de 3 lignes supplémentaires, une aussi basse que 225 nm correspondant à $v_{(4,0)}$ et deux autres situées à 253 nm *et* $v_{(2,5)}$ et 265,5 nm ($v_{(2,2)}$). Ces deux dernières découlent de la transition vibrationnelle anti-Stokes du second ordre qui devient une pompe à son tour générant 6 composantes Stokes et 3 anti-Stokes.



Figure 5-13 : Spectres UV pour une longueur de fibre d'1,20 m et une pression de 5 bars. (a) Spectre dans l'UV proche (b) Zoom sur les lignes générées aux longueurs d'onde plus basses.

Ainsi, notre système pompé à 355 nm permet de générer pas moins de 20 lignes, sans compter la pompe, dans la gamme de 225 à 400 nm. En dessous de 300 nm les lignes sont moins intenses mais assez significatives pour des applications comme la fluorescence ne requérant qu'1 μ W avec les puissances crêtes fournies par ce microchip. De plus, dans cette région spectrale les photons sont fortement absorbés par l'air. Pour optimiser cette génération, la fibre gagnerait à être mise sous vide avant l'insertion du gaz mais également d'utiliser une méthode de détection plus efficace (détection sous vide, optiques mieux appropriées).

iv. Optimisation des transitions vibrationnelles

Malgré une polarisation linéaire du laser des transitions rotationnelles sont générées pour des longueurs de fibre supérieures à 60 cm. Ici nous pouvons constater pour une pression de 15 bars et une longueur de fibre de 60 cm qu'il est possible de générer les trois premier ordre Stokes avec quasiment la même puissance moyenne par ligne (figure 5-13) que la pompe. En effet, v_0 , $v_{(-1,0)}$, $v_{(-2,0)}et v_{(-3,0)}$ ont une puissance moyenne mesurée située entre 4,5 et 5,5 mW. La puissance moyenne de $v_{(-4,0)}$ est de 2,3 mW alors que les transitions anti-Stokes ($v_{(1,0)}et v_{(2,0)}$) que d'une Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018 centaine de μ W. En effet, ces transitions sont situées (274 et 310 nm) sur les bords de la quatrième bande d'ordre élevée de la transmission de la fibre (figure 5-9). Ainsi, l'avantage ici est évidemment de n'avoir que quelques longueurs d'onde avec un maximum de puissance.



Figure 5-14 : Photo du peigne diffracté avec la mesure du spectre généré grâce à un spectrophotomètre pour une polarisation linéaire dans 60 cm de fibre remplie de 15 bars d'H₂.

v. Rendement de transmission

Enfin, le rendement de transmission, défini comme le rapport entre la puissance moyenne mesurée en sortie de la cellule de gaz et celle située avant la lentille d'injection, réalisé avec une puissance de pompe moyenne de 32 mW a été mesuré pour les différentes pressions des différentes longueurs et représenté sur la figure 5-15. Avant insertion du gaz dans la fibre, les rendements de transmissions oscillent entre 80 et 90% de transmission sans prendre en compte la fenêtre non revêtue en sortie de notre composant impliquant des pertes par réflexion. Nous pouvons observer une diminution du rendement de couplage en augmentant la pression. Ces pertes sont les pertes induites par les effets non linéaires. Ainsi, la transmission optimale est trouvée pour une longueur de fibre de 0,6, 1,2 et 1,8 m et une pression relativement basse. Cette condition est également idéale afin d'obtenir une bonne conversion dans l'UV avec 20 lignes générées de 225 à 400 nm pour une longueur de fibre de 1,2 m.



Figure 5-15 : Taux de transmission en sortie en fonction de la pression.

En remarque, il est important de souligner que ces mesures sont effectuées avec une photodiode à base de silicium étendue pour l'UV (200 à 1100 nm) avec une calibration pour différentes longueurs d'onde dont 355 nm. En effet, sa sensibilité varie d'un facteur d'un facteur 5 sur la gamme de longueur d'onde mesurée comme nous le montre la figure 5-16. Pour les longueurs d'onde calibrées cela ne pose pas de soucis mais lorsque nous mesurons un spectre s'étendant sur toute la gamme de longueur d'onde de la photodiode, la valeur affichée n'est pas réelle et donc nos valeurs de transmission approximative. Une calibration du gain serait donc nécessaire. Malgré cela, ces taux de transmission fournissent une idée de la dynamique Raman lorsque nous augmentons la pression d'H₂ et la longueur de la fibre.



Figure 5-16 : Sensibilité de la photodiode utilisée en fonction de la longueur d'onde.

4. Conclusion

Deux objectifs ont été décrits dans ce chapitre. Le premier concernait le dimensionnement de la Combbox intégrée à un laser DPSS de chez Spectra Physics émettant à 532 nm avec des taux de répétition variant de 50 à 500 kHz pour les applications de cytométrie. Pour cela nous avons étudié l'influence de différents paramètres :

- La longueur de la fibre : génération vers des Stokes de plus grand ordre si la longueur est trop grande.
- Le taux de répétition : fort impact du la diminution de l'énergie.
 - Optimisation pour différentes puissances.
 - Optimisation pour différentes pressions.

La prochaine étape consistera à utiliser ce produit avec un cytomètre présent dans notre laboratoire. Les premiers résultats sont traités dans le chapitre suivant.

Le deuxième objectif était de fournir une solution pour la gamme de l'UV grâce à la conversion DRS qui est par principe plus efficace est moins coûteuse que les autres solutions existantes sur le marché. Une fibre a été réalisée pour cette étude présentant des pertes record dans le bas visible et l'UV. Puis, sous excitation lumineuse et remplissage de gaz hydrogène de la fibre, il est ressorti d'une étude systématique Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

BY-NC-ND

réalisée, qu'une longueur d'1,2 m de fibre combinée à une pression de 5 bars est des plus efficace. Pas moins de 20 lignes ont été générées allant de 225 nm à 400 nm sans compter la pompe pour un total de 46 lignes si on inclut le domaine du visible et du proche IR.

Pour une longueur de fibre réduite, il a également été possible de générer seulement les transitions vibrationnelles fournissant plusieurs lignes dans l'UV-VIS portant de fortes puissances. Plusieurs optimisations peuvent encore être effectuées afin d'augmenter le taux de conversion dans l'UV. A titre d'exemple, la fibre peut être conçue pour positionner ses bandes de transmissions de telle sorte que la génération du Stokes vibrationnel du second ordre (i.e. 503 nm dans ce cas) sera absorbée. Par conséquent, la réalisation d'un comblas intégrant une pompe à 355 nm promet d'être une des solutions d'avenir pour ce domaine de l'UV difficilement accessible.







Chapitre 6. Application de la CombLas : étude cytométrique

La partie II se termine par un exemple d'application pour la Comblas, la cytométrie. La description de cette technologie ainsi que les éléments clés sont proposés. Une étude systématique est ensuite réalisée permettant de donner les limites et avantages de notre produit pour cette application. Un des objectifs est d'avoir une meilleure lisibilité quant à l'influence du taux de répétition du laser sur la détection des cellules.



1. Introduction

Nous avons vu dans le chapitre précédent la génération de peignes dans l'UV-VIS en pompant la Combbox avec un laser émettant à 355 nm et un second à 532 nm. Un grand nombre d'avantages a pu être démontré avec cette solution en comparaison avec l'état de l'art du marché. A savoir, une génération multi-spectrale optimisable, un fort taux de couverture spectrale notamment de l'UV proche jusque-là difficilement accessible, une forte pureté et densité spectrale le tout combiné à une faible maintenance et une durée de vie augmentée. Par conséquent, afin de qualifier notre produit, nous avons choisi de l'utiliser avec un cytomètre présent dans notre laboratoire, travail s'inscrivant dans le cadre d'une collaboration avec le « National Institute of Health » américain et l'université de Modena en Italie.

La cytométrie est la mesure de cellules uniques permettant une analyse simultanée de paramètres multiples de ces cellules provenant principalement de tissus humains [90]. Les informations pouvant être soutirées sont :

- La taille relative des cellules.
- La complexité interne et la granularité de la cellule.
- Les propriétés surfaciques et son indice de réfraction.
- Le pourcentage de cellules mortes et vivantes dans un échantillon donné.
- Le niveau d'auto fluorescence.
- La présence de marqueurs pour les tumeurs.

La détection des différentes cellules est possible grâce à l'utilisation de différents marqueurs ayant des longueurs d'onde d'excitation distinctes [91]. Différentes Régime continu ou quasi continulongueurs d'onde sont donc nécessaires en régime continu ou quasi-continu pour illuminer le maximum de particules. Plusieurs choix sont possibles : soit l'utilisation est basée sur plusieurs lasers avec le désavantage de l'intégration et du prix, soit sur une source super-continuum filtrée mais cela au détriment de la qualité et de la densité spectrale.

Ici nous proposons une approche basée sur le développement de notre laser multiligne UV-VIS obtenu par DRS. Une étude systématique a ainsi été menée notamment pour évaluer les performances de cette source mais aussi pour déterminer la dépendance de la détection des cellules au taux de répétition du laser. Ce dernier point a fait l'objet du stage de master de Mr. Giacomo Mellone que j'ai coencadré en collaboration avec l'université de Modena en Italie.

2. Introduction au cytomètre

La figure 6-1(a) permet de décrire le principe général d'un cytomètre. La technique consiste à concentrer les cellules à travers un tube de telle sorte qu'elles peuvent être illuminées comme une ligne ordonnée par un laser continu ou quasi-continu. Des détecteurs sont utilisés pour récolter les informations sur la diffusion et la fluorescence qui sont filtrées grâce à des miroirs dichroïques.



Figure 6-1 : (a) Montage simplifié d'un cytomètre. (b) Système hydro-fluidique afin d'aligner les cellules.[92]

La cytométrie étant une technique pour l'analyse de particules individuelles, une des étapes clés est l'obtention de particules en suspension. A cet effet, un système fluidique est utilisé afin d'ordonner l'échantillon de telle sorte à obtenir une « file » de cellules pouvant être interrogées de manière individuelle par l'appareil (figure 6-1(b)). Ce système consiste en un cœur central à travers lequel le fluide est injecté et encapsulé par un fluide de gaine. Le rétrécissement de la gaine augmente la célérité du fluide grâce à la différence de pression entre les deux liquides focalisant hydrodynamiquement l'échantillon à sonder grâce à l'effet Bernouilli. La conjugaison d'un écoulement des particules dans un volume étroit et un faisceau lumineux focalisé



induit des restrictions quant à la taille des particules à sonder. Elle est typiquement comprise entre 1 et $30 \ \mu m$ de diamètre.

a) Caractérisation des particules par diffusion de la lumière

Les premières informations collectées par le cytomètre sont celles de la diffusion des cellules lorsqu'elles sont sondées par le faisceau lumineux.

i. Collection de la diffusion

Les différents évènements (chaque interaction laser-particule) sont collectés grâce à deux lentilles focalisant la lumière (figure 6-2) émanant des cellules. Une dans la direction propagative du laser comme présentée dans la figure 6-2(b).Une seconde dans la direction orthogonale (figure 6-2(c)). La lentille utilisée dans le sens propagatif focalise la lumière sur le photo-détecteur ou le PMT. Une barre d'obscuration d'1 mm de large est présente afin de prévenir toute saturation du détecteur. Ainsi seule la lumière réfractée ou diffusée par la particule sera assez déviée de sa direction d'origine pour être collectée par le détecteur. Cette lumière est appelée Forward scattered light (FSC) et correspond à la déviation de petits angles par la cellule. Elle est proportionnelle à la surface ou à la taille, c.à.d. que plus la particule est grande, plus la FSC sera grande. Il est également important de noter qu'une cellule avec un indice de réfraction comparable à celui du milieu (cellule morte avec une membrane perméable par exemple) aura une réfraction différent (i.e. cellule vivante).

Enfin, la lentille orthogonale à la direction du laser collecte la lumière étant diffusée sur de grands angles de la direction d'origine, appelée Side Scattered Light (SSC). La SSC est proportionnelle à la granularité interne, la complexité, et les irrégularités de texture sur la surface ou dans le cytoplasme de la cellule. Par exemple, les granulocytes ou neutrophiles avec un noyau irrégulier diffusent plus de lumière sur le côté que des lymphocytes avec un noyau sphérique.



Figure 6-2 : (a) Système de lentille afin de récupérer la lumière provenant de la diffusion des cellules testées. (b) Comparaison de la diffusions avant (FSC) avec des cellules de taille différentes. (c) Comparaison de la diffusion de côté (SSC) pour des cellules de différentes granulométrie. [93]

ii. Compréhension du relevé de diffusions

Un instrument important pour analyser les données de diffusion récoltées est le scatter plot. Un graphique représentatif de ce dernier est montré dans la figure 6-3. Sur ce genre de tracé chaque point correspond à un évènement mesuré. La mesure est terminée lorsque les PMT auront détecté un certain nombre d'événement paramétré dans le logiciel. L'axe des abscisses correspond au FSC et l'axe des ordonnés au SSC. Ce graphique permet d'avoir une référence relative pour choisir les bons paramètres d'amplification des détecteurs grâce au logiciel ou en jouant sur les optiques. Le tracé de la figure 6-3 est un exemple pris pour une population de globules blancs. Trois types de population peuvent alors être définis dans ce cas. Les lymphocytes sont les particules les plus petites et simples, elles sont donc situées dans le coin en bas à gauche du graphique. Les monocytes et granulocytes (neutrophiles) sont de taille comparable, leur FSC est donc quasi identique mais leur granularité interne est cependant différente. En effet, comme leur nom l'indique les granulocytes sont beaucoup plus complexes, induisant un SSC plus important. Pour récapituler plus les particules sont petites et de forme sphérique plus elles tendront

d'avoir un faible FSC et SSC. Plus les particules sont grandes plus leur FSC est important. Plus leur forme est complexe plus le SSC sera important.



Figure 6-3 : Graphe de la diffusion avec des histogrammes uni dimensionnel pour une population de globules blancs.[90]

iii. Discrimination des doublets

Le système n'étant pas un cas idéal, où la pression du système hydrodynamique et le mélange de particules ne sont pas parfaits, il est donc possible que les particules ne se propagent pas de manière individuelle dans le fluide. Un agrégat se forme alors appelé doublet. Cela pose un problème dans la discrimination des cellules. En effet, nous pouvons observer sur la figure 6-4 que l'impulsion est déformée dans le temps induisant un décalage dans le scatter plot. La conséquence est une mauvaise lecture des données. Afin de résoudre ce problème le FSC et SSC sont tracés en fonction de la surface de la cellule (figure 6-4(a)). Les doublets auront leur surface et leur largeur doublées par rapport aux cellules uniques. Les disproportions entre la hauteur, la largeur et la surface peuvent donc être utilisées pour identifier ces doublets.





Figure 6-4 : (a) Comparaison de l'impulsion temporelle et de la diffusion entre une cellule et un agrégat de cellules passant à travers le faisceau laser. (b) Distinction des doublets des mono cellules grâce à la hauteur du FSC et la surface du FSC. Les doublets ont une surface plus grande et une hauteur similaire.[94]

b) Fluorescence dans la cytométrie

La fluorescence est le paramètre le plus important afin de réaliser des mesures cytométriques.

i. Avantages de la fluorescence pour la cytométrie

Les FSC et SSC nous donnent des informations nécessaires pour aligner l'instrument mais également une information sur la composition de l'échantillon. Pour avoir une caractérisation complète il faut également regarder la fluorescence d'où l'intérêt d'avoir accès à plusieurs lasers. Il est important de noter que les marqueurs utilisés pour détecter les protéines ou des acides nucléiques sont fluorescents. Ils absorberont ainsi la lumière à une certaine longueur d'onde pour la réémettre à une longueur d'onde décalée vers le rouge. L'utilisation de ce type de marqueurs est donc une méthode sensible et quantitative largement utilisée dans la biologie moléculaire et dans les laboratoires de biochimie pour une variété d'applications expérimentales, analytiques et le contrôle qualité. Les différents avantages peuvent être listés comme suit :

- La sensibilité : les fluorochromes utilisés aujourd'hui sont adaptés pour se rapprocher de la sensibilité offerte par les radio-isotopes. Ils restent la meilleure option pour détecter l'ADN et l'ARN.
- La possibilité de faire un marquage multiple : la séparation de deux ou plusieurs fluorochromes dans le même échantillon est possible grâce à des algorithmes et l'utilisation d'optiques filtrantes.



- La stabilité : la technique offre une stabilité bien supérieure que celle basée sur des marqueurs radioactifs. A titre d'exemple, les anticorps fluorescents présentent une stabilité de plus de six mois alors que ceux marqués radioactivement sont inutilisables au bout d'un mois.
- Le faible danger : la plupart des fluorochromes peuvent être manipulés en utilisant simplement des gants.
- La disponibilité commerciale et son faible coût : ils sont faciles à trouver et souvent bien moins chers que les marqueurs radioactifs.

Nous allons maintenant passer en revue, de manière non exhaustive, les fluorochromes les plus utilisés pour ce type de mesure.

ii. Les fluorochromes les plus répandus dans la cytométrie

Les graphiques de la figure 6-5 (a) présentent les bandes d'excitation et d'émission aux différentes longueurs d'onde pour les fluorochromes les plus utilisés et pouvant être excités à 488 nm (longueur d'onde la plus communément utilisée en cytométrie) [95]. Ces fluorochromes sont l'Alexa fluor®488, le Fluorescein (FITC), le R-Phycoerthrin (R-PE) et le Peridinin-Chlorophyll-protein (PerCP), l'avantage étant qu'ils émettent à différentes longueurs d'onde permettant de les discriminer. Dans notre cas, les Alexa Fluor sont ceux qui présentent le plus grand intérêt. En effet, ce sont d'excellents marqueurs de par leur brillance, leur photo stabilité, l'insensibilité au pH, la sélection de couleur, la solubilité à l'eau, et leur large gamme de longueurs d'onde d'excitation. Ces dernières sont représentées sur un spectre typique généré à partir de notre Combbox dans le cas d'un pompage à 532 nm. Une coïncidence de la plupart de ces lignes spectrales est observée. Les chiffres permettent de faire l'association de la longueur d'excitation et d'émission. Ce peigne Raman généré par l'H₂ pourrait donc être une excellente alternative pour ce domaine gourmand en longueurs d'onde. En plus, d'offrir une source mutli-lignes, le Combbox offre l'avantage unique qui consiste dans le non-recouvrement spectral des lignes d'excitations avec les lignes d'émission (voir figure 6-5 (b)).



(b)



Figure 6-5 : (a) Peigne Raman généré avec la Combbox avec les longueurs d'onde absorptions (cercles rouges) et d'émissions (cercles bleus) de la famille des marqueurs Alexa Fluor. (b) Grossissement du spectre montrant le non-recouvrement entre les lignes d'excitation et d'émission.

c) Calibration et analyse des données du cytomètre

i. Calibration du cytomètre

Avant d'extrapoler les données il est nécessaire de calibrer le cytomètre. Cette calibration se fait grâce à un échantillon des particules dont on connaît d'avance la spécificité (taille et forme) et donc leur réponse. Ici, nous avons utilisé des particules Rainbow fluorescentes. Les particules peuvent être excitées à n'importe quelles longueurs d'onde situées entre 365 et 650 nm grâce au mélange de fluorochromes à l'intérieur de chaque cellule. Ces particules présentent l'avantage d'avoir un seul pic

de haute intensité et émettent à des longueurs d'onde correspondant aux marqueurs les plus communs.

ii. Analyse des données du cytomètre

Nous avons précédemment vu que le scatter plot permettait d'avoir une idée sur la composition de l'échantillon. Pour les fluorochromes un histogramme est utilisé afin de discriminer les marqueurs. Les cellules n'ayant pas de marqueurs sont appelées les cellules négatives, à l'inverse, celles ayant des marqueurs sont appelées les cellules positives. La figure 6-6 montre les histogrammes pour des cellules tumorales de souris marquées avec l'Alexa Fluor®647. Ces histogrammes sont comme des compteurs d'évènements sur l'axe y en fonction de l'intensité. L'analyse statistique est basée sur le calcul de paramètres comme l'écart type, le coefficient de variation (CV) et la valeur moyenne. Dans notre étude, afin de qualifier nos résultats nous utilisons le CV qui s'écrit comme suit :

$$CV = \frac{\sigma}{m} \times 100$$
 Eq. 6-1

Où σ est l'écart type et *m* est la moyenne des valeurs. Ce coefficient détermine la variation des mesures par un pourcentage. En effet, si nous mesurons 100 fois la même cellule nous n'aurons jamais exactement le même résultat. Ce coefficient permet donc de déterminer la précision de nos mesures. Plus ce coefficient sera petit plus la variabilité sera faible. Généralement il est utilisé pour contrôler l'alignement des cytomètres en utilisant des particules uniformes ayant une variation intrinsèque très faible. Cette valeur est typiquement inférieure à 10.

BY-NC-ND


Figure 6-6 : Histogrammes de la fluorescence des cellules tumorales de souris avec et sans marqueur Alexa Fluor 647.[96]

iii. Récapitulation du système de détection du cytomètre

La figure 6-7 montre tous les PMT présents dans notre cytomètre. FL1 est dédié à la détection de la Fluorescin incorporant un filtre passe bande centré à 530 nm et une largeur de bande de 30 nm pour sélectionner exactement la bande spectrale d'émission de ce marqueur. FL3 et FL4 ont eux un filtre passe bas à 670 nm. Enfin FL4 est aligné avec le second laser. Ce passe bas peut poser un problème dans le cas où les particules excitées émettent à des longueurs d'onde en dessous de la bande passante du filtre vu que ses fréquences de coupures sont situées à 400 et 670 nm (c.a.d. en dessous de 500 nm). Il a donc été enlevé pour certaines mesures afin de détecter le maximum de lumière émis.



Figure 6-7 : Disposition des PMTs dans la boîte à la fin du chemin optique.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018



3. Mesures cytométriques avec des sources diverses

a) Schéma expérimental

Deux montages expérimentaux ont été utilisés afin d'illuminer les particules, la seule différence étant la source. Le premier montage (figure 6-8(a)) illustre la configuration dans le cas d'un super-continuum avec les caractéristiques suivantes : puissance moyenne >1 W, spectre couvrant de 450 nm à 2,3 μ m et une largeur d'impulsion de 100 ps et un taux de répétition de 5 MHz. Le deuxième comprend notre laser Raman Combbox décrit dans le chapitre précédent. Pour la génération du peigne une lame demi-onde et un cube polariseur ont été incorporés au montage afin de réaliser un robinet de puissance suivi d'une lame quart d'onde pour favoriser les transitions rotationnelles. Le faisceau est ensuite couplé par une lentille dans la Combbox, puis collimaté en sortie également par une lentille.

Après ces deux sources un filtre passe bande d'une largeur de 10 nm centré sur la longueur d'onde voulue est utilisé. Finalement, un périscope acheminant le faisceau jusqu'au cytomètre comme nous pouvons le voir sur la figure 6-8(b).





(b)



Figure 6-8 : (a) Montage utilisé avec le super-continuum et son spectre. (b) Montage investigué pour utiliser le peigne Raman. (c) Montage dans le cytomètre afin de superposer la ligne Raman au faisceau laser 488 nm.

Une fois arrivé au niveau du cytomètre le faisceau filtré doit être superposé à celui du laser continu à 488 nm. Ce laser joue le rôle d'« horloge » du cytomètre puisqu'il balaie toutes les particules qui passent. Il fournit les informations pour la diffusion que ce soit pour le FSC ou SSC ainsi que la fluorescence pour cette longueur d'onde. Pour superposer le faisceau du peigne et ce dernier un miroir diélectrique passe haut à 502 nm est utilisé. La problématique survient pour des longueurs d'ondes plus courtes. Une solution trouvée est de mettre un cube séparateur 50/50. Le

désavantage évidemment est la perte de 50% de la puissance du signal. Enfin les deux faisceaux sont focalisés sur la cellule hydrodynamique dont nous avons parlé précédemment (figure 6-8(c)). Les particules utilisées pour les expériences sont les particules SPHERO Rainbow Fluorescent Particles. Elles ont l'avantage d'être brillantes, stables et émettent à quasiment toutes les longueurs d'onde d'intérêt de la cytométrie. Elles permettent ainsi d'avoir une information immédiate et visuelle sur le coefficient de variation. A noter que ce type de particules est normalement utilisé pour calibrer le cytomètre. Ici, elles servent juste à démontrer la faisabilité de notre technologie et de voir l'influence du taux de répétition sur la caractérisation cellulaire. En effet, comme dit précédemment, la cytométrie utilise généralement des lasers à taux de répétition quasi-continus ou des lasers continus, ce qui est différent dans le cas de notre source pulsée.

b) Histogrammes mesurés avec un super-continuum

Afin de pouvoir comparer nos résultats à celui d'un super-continuum des mesures ont été effectuées avec ce type de source. 8 longueurs d'ondes ont été filtrées grâce à des filtres passe bande de 10 nm de largeur à savoir ; 500, 520, 550, 570, 590, 600, 610 et 630 nm.



Figure 6-9 : Histogrammes de fluorescence obtenus par filtrage du super-continuum grâce à des filtres passe bande.

La figure 6-9 représente les histogrammes obtenus aux différentes longueurs d'onde filtrées du super-continuum. Dans chaque cas un pic quasi Gaussien est obtenu indiquant un comptage d'évènement suffisant. L'intensité de fluorescence est

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

CC BY-NC-ND

similaire mis à part pour les longueurs d'onde 500 et 630 nm. Cependant nous ne pouvons tirer de conclusion à partir de cette grandeur vu qu'elle est dépendante des conditions expérimentales (i.e. dilution des particules, fluctuation du laser, etc.). Afin de comparer les histogrammes le coefficient de variation (CV) est une grandeur plus légitime (définie dans la section 1c)iii). Le CV a donc été calculé pour l'histogramme des différentes longueurs d'onde et tracé sur la figure 6-10. Nous observons une amélioration des CV lorsque nous décalons la longueur d'onde vers le rouge. Ceci est lié à la puissance du super-continuum qui est plus faible pour des longueurs d'onde plus courte comme nous pouvons voir sur la figure 6-8(a).



Figure 6-10 : Evolution du coefficient de variation en fonction de la longueur d'onde.

c) Histogrammes mesurés avec le DPSS seul

Cette section permet d'évaluer l'influence du taux de répétition sur les histogrammes indépendamment du Raman. La puissance du laser est fixée à 10 mW à 532 nm et sa fréquence est modifiée de 50 à 500 kHz. Les histogrammes sont retracés sur la figure 6-11. Le bruit est détecté lorsque le laser est éteint (intensité proche de 0). Ce bruit est complètement négligeable pour des fréquences de répétition au-dessus de 150 kHz. Les pics mesurés pour les faibles taux de répétition sont trop bruités pour valider la mesure. De 150 kHz à 300 kHz, un pic large est mesuré avec une queue s'étendant à des intensités de fluorescence plus basses. Ceci indique que la particule n'est pas excitée de manière convenable. Pour des valeurs de cadences supérieures à 300 kHz, le CV est de 25,1%, soit deux fois et demi plus important que dans le cas d'un laser continu (10,6%). Ainsi nous pouvons détecter la fluorescence de ces particules avec un taux de répétition à 400 kHz à 532 nm. Le coefficient de variation reste cependant élevé.



Figure 6-11 : Evolution des histogrammes de la fluorescence avec le laser de pompe à 532 nm avec le taux de répétition du laser.

d) Histogrammes mesurés avec l'anti-Stokes de premier ordre (435,6 nm)

Dans le chapitre 5 nous avons vu que l'augmentation de la cadence de notre laser a un impact direct sur le gain Raman dû à la diminution de l'énergie couplée. Cela induit que le taux de répétition doit être inférieur à 300 kHz afin d'avoir une génération Raman. Sachant qu'au-dessus de 100 kHz les composantes rotationnelles du peigne ont un gain très faible, nous devons utiliser une transition vibrationnelle du peigne.

De plus, les particules ne peuvent être excitées que de 365 à 650 nm, le Stokes vibrationnel de premier ordre généré à 683 nm ne peut pas servir pour caractériser ces dernières. Nous nous sommes donc focalisé sur la transition anti-Stokes du premier ordre à 435,6 nm. De plus, cette longueur d'onde excite de manière plus efficace les particules les moins accessibles. Dans ce cas le miroir diélectrique utilisé pour superposer le laser continu et l'anti-Stokes n'est pas adapté vu qu'il absorbe cette longueur d'onde. Comme dit dans la section précédente, nous le remplaçons

par un cube séparateur 50/50 afin de pouvoir les superposer. Notons que nous avons utilisé les optiques à notre disposition un miroir diélectrique mieux adpaté aurait pu être utilisé. L'évolution des histogrammes a été relevée pour trois pressions, 13,15 et 18 bars et présentée sur la figure 6-12(a), (b) et (c).



Figure 6-12 : Evolution de l'histogramme de fluorescence généré par l'anti-Stokes vibrationnel de premier ordre à 435 nm pour une pression de (a) 13 bars, (b) 15 bars, (c) et 18 bars d'H₂ dans la fibre.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

BY-NC-ND

Nous observons que le CV ne dépend pas que de la fréquence de répétition, elle dépend aussi de la puissance excitatrice. En effet, lorsque la puissance est trop faible le pic s'élargit même si le taux de répétition est plus élevé.

A 13 bars le CV s'améliore avec le taux de répétition jusqu'à la valeur seuil de 230 kHz, puis se dégrade pour des cadences supérieures due à la diminution de la puissance de la ligne anti-Stokes. A 15 bars les histogrammes ont un profil quasigaussien pour des taux de répétition inférieurs à 250 kHz puis se dégradent. Le meilleur CV est obtenu est 16,1% se rapprochant de la valeur du laser continu (10,9%) pour les conditions suivantes : taux de répétition à 230 kHz et pression à 18 bars. Ce CV se ré-élargit pour des fréquences de répétition plus élevées (figure 6-13).



Figure 6-13 : (a) Coefficient de variation en fonction du taux de répétition de l'anti-Stokes vibrationnel de premier ordre à 435 nm pour différentes pressions $d'H_{2;}$ (b) Comparaison du CV de l'anti-Stokes de premier ordre vibrationnel à 13 bars $d'H_2$ avec et sans filtre.

Un graphique récapitulatif représentant les valeurs des CV en fonction des pressions et du taux de répétition est tracé en figure 6-13(a). Cette cartographie permet de trouver les paramètres optimaux pour cette ligne Stokes. Afin d'optimiser le CV le filtre 670LPF est enlevé pour récolter plus de lumière sur le détecteur. Sur la figure 6-13(b) nous pouvons voir que pour une pression de 13 bars le CV a été réduit de 19% à 11,6% à 230 kHz. Sachant que le filtre 670LPF a pour but de discriminer les signaux n'étant pas de la fluorescence (typiquement de la diffusion), une expérience

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

a été conduite pour s'en assurer. Pour cela des particules non marquées, et donc n'émettant pas de fluorescence, sont illuminées afin de créer uniquement de la diffusion. Le taux de répétition utilisé est 210 kHz afin de générer un maximum de puissance dans la ligne. L'histogramme obtenu est identique à celui du laser éteint démontrant ainsi que le signal récolté n'est lié qu'à la fluorescence.

4. Conclusion

En conclusion, trois sources différentes ont été utilisées afin de pouvoir les comparer. La première source est une source typique pour la cytométrie, un super-continuum avec un taux de répétition quasi-continu. Nous avons vu que le CV s'améliore avec des longueurs d'onde plus élevées directement lié à la puissance du supercontinuum qui diminue en diminuant avec la longueur d'onde. La meilleure valeur de CV obtenue est de 7,5%.

Ensuite, le DPSS seul a été injecté dans le cytomètre puis nous avons modifié la cadence de 50 à 500 kHz avec une puissance moyenne de 10 mW. Nous avons observé que pour des taux de répétition en dessous de 400 kHz le nombre d'évènement détecté n'est pas suffisant. Le meilleur CV est de 25%, beaucoup trop élevé pour la cytométrie. Nous en déduisons que la cadence n'est pas assez élevée.

Enfin, nous avons utilisé la source Raman constitué du DPSS couplé dans la combbox. Nous avons joué sur divers paramètres afin d'étudier la dynamique de la génération d'une ligne Raman pour optimiser le CV. Nous avons utilisé la ligne anti-Stokes vibrationnel de premier ordre à 435 nm. Plusieurs observations sont à retenir : l'énergie du laser est trop faible pour générer convenablement cette ligne à des cadences supérieures à 250 kHz ; un CV de 16,1 % est obtenu pour une pression de 18 bars et une cadence de 230 kHz ; enfin en enlevant le LPF670, le CV à 13 bars a été réduit de 19% à 11,6%, valeur se rapprochant des CV typiques.

La différence des taux de répétition seuils entre le laser seul et la ligne anti-Stokes s'explique par une meilleure absorption des particules à 435 nm qu'à 532 nm avec des énergies comparables démontrant l'avantage de travailler à des longueurs d'onde plus courtes. Le meilleur CV obtenu est cependant moins bon que celui du super-continuum (11,6% comparé à 7,5%). Cette différence provient de la différence Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018 de la pompe qui a une cadence 25 fois plus importante que celle de la combbox. De plus, la diminution de l'énergie des impulsions en augmentant la cadence limite notre génération Raman. Cependant avec une pompe adaptée (cadence MHz) nous pensons que le peigne Raman est une meilleure alternative grâce à la versatilité qu'il propose. De plus, l'utilisation de super-continuum offre des largeurs spectrales de 23 nm lorsque le spectre est filtré. Cette valeur est 10 fois plus large qu'une ligne Raman obtenue en sortie de notre Combbox (2,5 nm avec le laser utilisé). Le risque d'exciter des fluorochromes superflus liés à l'auto fluorescence ou des marqueurs inhérents aux cellules, mais également d'exciter des biomarqueurs émettant dans la même gamme spectrale d'intérêt s'en trouvent donc fortement réduit. La solution Raman offre également la possibilité de générer des raies dans l'UV, gamme de longueurs d'onde non couverte par les super-continuums et d'intérêt fort pour les biomarqueurs de l'ADN et de certaines bactéries. Dans ce contexte, les résultats obtenus et présentés dans ce chapitre sont des plus prometteurs pour répondre à ces nouvelles problématiques.

Partie III

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

BY-NC-ND



Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018





Chapitre 7. Vers la synthèse d'ondes optiques par voie Raman.

Ce premier chapitre introductif de la partie III met en place le contexte des travaux effectués afin de réaliser un synthétiseur d'ondes optique. Les différentes techniques existantes utilisant la voie impulsionnelle, puis continue seront décrites afin de mieux comprendre le schéma proposé. Ce schéma est composé de deux étages. Le premier comprend un laser CW à haute puissance scindé en deux. Un bras est utilisé pour la génération d'un seul Stokes à haute puissance et faible largeur de bande, le second est quant à lui superposé au Stokes généré. Ces deux ondes sont couplées dans le deuxième étage afin de générer un large peigne Raman avec des composantes continues via la modulation moléculaire.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018



1. Introduction : principe de synthèse d'ondes optiques

La synthèse d'onde est le principe de construire des ondes périodiques de formes temporelles arbitraires telles que des sinusoïdes, dents de scie, carrés, triangles ou encore des impulsions. Celle-ci repose sur la transformation de Fourier qui consiste à générer un spectre et contrôler l'amplitude et la phase de ses composants. Le spectre idéal pour la synthèse de Fourier est celui présentant une structure en peigne. Celuici est formé par des lignes spectrales discrètes espacées par la même fréquence, c'està-dire chaque ligne a sa fréquence sous la forme $\omega_C \pm n\omega_R$ où *n* est un entier, ω_R la fréquence de modulation et ω_c une fréquence référence du peigne. L'intérêt pour une telle structure spectrale est qu'on peut générer pratiquement n'importe quelle forme d'onde en contrôlant la phase et l'amplitude de chaque ligne de manière indépendante. La figure 7-1 illustre les formes d'ondes synthétisable avec un peigne de fréquences. La figure montre clairement l'association entre la forme spectrale et la forme temporelle de l'onde. L'onde avec un seul composant spectral a une forme sinusoïdale, qui est produite par exemple par une onde optique émise par un laser à raie très fine. Aussi, si le spectre est composé de dix lignes spectrales équidistantes de ω_R , on peut former un train d'impulsions très brefs. La période de ce train est inversement proportionnelle à l'espacement spectral des lignes du spectre, et la durée des impulsions est inversement proportionnelle à la largeur du spectre. Si la largeur du spectre est suffisamment large, on peut synthétiser des ondes avec des formes temporelles les plus arbitraires, comme montre le spectre à « 11 lignes ». Ici, avec un ajustement de la phase relative des composants et de leur amplitude on peut passer d'une forme temporelle carré à celle d'un triangle. En conclusion, un fort degré de contrôle dans la synthèse d'onde peut être accompli si la largeur de bande spectrale des ondes est suffisamment large et si on peut établir une relation de phase (i.e. synchronisation) entre les composants spectraux. Alors que le principe de synthétiser des formes temporelles par contrôle spectral est bien connu, la réussite de son implémentation pratique dépend fortement de la nature des ondes, leur gamme spectrale et la technologie pour les générer. La figure 7-2 illustre ceci en présentant l'état de l'art et ses paramètres clés pour les ondes les plus représentatives, à savoir les ondes acoustiques, les ondes électroniques et les ondes optiques.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018



Figure 7-1 : (a) Domaine fréquentiel (gauche) et temporel pour différents signaux en fonction du nombre de composantes. (b) Domaine fréquentiel (gauche) et temporel (droite) pour des signaux avec différentes phases et amplitudes [97].

(b)

C'est dans le domaine acoustique, où la gamme spectrale auditive humaine s'étend entre ~20 Hz et 20 kHz, que la première synthèse d'onde a été maîtrisée. Elle est réalisée directement par un simple instrument de musique, qu'il soit à corde, à vent ou à percussion. Par exemple, la largeur de bande d'un piano peut dépasser 12 octaves (i.e. un spectre s'étendant d'une fréquence fondamentale v_0 (typiquement 10-20Hz) à sa 4096^{ème} harmonique, (i. e. ~40 – 80kHz, alors qu'un humain ordinaire peut utiliser jusqu'à 2,5 octaves lorsqu'il chante.

En microélectronique, la largeur de bande s'étale aujourd'hui de quelques mHz à quelques centaines de GHz. Nous trouvons facilement dans le commerce des générateurs de fonctions électroniques produisant des formes d'ondes arbitraires. Cependant, les fréquences les plus élevés pour ce genre d'instruments sont inférieures au GHz. Malgré cela, la capacité à synthétiser des ondes électroniques a été un des éléments fondateurs de notre ère de l'information. Par exemple, dans tout un dispositif connecté comme un téléphone portable, ordinateur, etc..., des ondes électroniques de formes temporelles de tout genre sont générées, traitées et transmises ou converties en ondes électromagnétiques de la gamme micro-onde ou radio-onde.



Figure 7-2 : Illustration des domaines fréquentielles pour la synthèse d'onde.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

Par contraste avec les domaines acoustique et électronique, la synthèse d'onde en optique reste à ses premiers balbutiements. Cette situation est décryptée même dans la terminologie en usage dans la communauté de l'optique ou de la photonique, où le terme « synthèse d'onde » est employé pour désigner « mise en forme d'impulsion » (« pulse shaping » en anglais). Ici des impulsions optiques très brèves sont modulées en fréquence pour modifier légèrement l'enveloppe de l'impulsion initiale. Ces impulsions sont souvent de forme temporelle apparentée à une gaussienne, et générées par un procédé de verrouillage de phase (« mode-lock » en anglais) des modes spatiaux d'une cavité laser à large gain. A noter que typiquement la largeur spectrale de telles sources optiques est au plus d'une octave (i.e. laser Ti :Saph). Le développement de sources optiques cohérentes exhibant plusieurs octaves reste toujours un objectif à atteindre, et continu à être un sujet de travaux de recherche à l'ordre du jour. Ces travaux sont motivés par l'impact que représentent de telles sources optiques dans le domaine scientifique et technologique. Par exemple, un large peigne avec des composantes cohérentes implique la possibilité d'avoir des impulsions de durée de l'ordre de l'attoseconde (as), ce qui en retour ouvre une spectroscopie d'un autre genre où l'orbite des électrons liés d'un atome peut être reconstruit. Alors que des impulsions de quelques 100 as sont aujourd'hui produites par le phénomène de génération d'harmoniques élevées, High Harmonic Generation (HHG) en anglais (voir ci-dessous), leur gamme spectrale est dans le X-UV. Il serait donc fortement utile de l'étendre à des gammes spectrales telles que UV-VIS-NIR-IR. Un autre exemple d'application d'un tel synthétiseur est le contrôle quantique d'atomes et de molécules. En effet, par un choix judicieux des amplitudes et phases des composants spectraux d'un synthétiseur optique (i.e. de sa forme temporelle) il serait possible de contrôler simultanément les coordonnées électroniques, vibrationnelles et rotationnelles de molécules, et induire une réaction chimique entre elles. Aussi, le développement d'un synthétiseur d'ondes optiques analogue à ceux trouvés en électronique représentera une véritable révolution dans le domaine de la photonique. En effet, un tel générateur de fonction peut être utilisé à la fois comme un laser « universel », une source de forme d'onde arbitraire pour le traitement de données optiques, ou une plateforme pour explorer la faisabilité d'un processeur photonique.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

La difficulté de synthétiser des ondes optiques à la façon « électronique » peut être élucidée en rappelant les prérequis nécessaires qui sont : (1) obtenir un large spectre optique (>5 octaves); (2) les composantes du spectre doivent être mutuellement cohérentes; (3) une forte stabilité fréquentielle; (4) et avoir des composantes continues. En effet, générer un spectre couvrant au moins 5 octaves implique une source de lumière cohérente s'étalant par exemple de l'UV lointain (~200 nm) à l'IR lointain (~8 µm). Comparer cette gamme spectrale à celle des lasers les plus courants qui émettent typiquement aux longueurs d'onde suivantes : ~500 nm dans le visible, 800 nm, 1000 nm et 1500 nm dans le NIR (soit une largeur de bande d'à peine un peu plus d'une octave), illustre bien l'écart entre l'état de l'art actuel de l'industrie de la photonique et les exigences pour le développement d'un synthétiseur optique. La cohérence mutuelle entre les composants d'un spectre est tout aussi difficile. Cette difficulté est illustrée par la proposition du prix Nobel T. Hansch dans les années 70-80 [98], consistant au développement de plusieurs lasers à faible largeur de bande et de verrouiller leur phase respective. Cela nécessitait plusieurs salles de laboratoire et une complexité électronique très aigue.

Malgré la difficulté de ces prérequis, plusieurs travaux effectués pendant les dix dernières années montrent que les verrous cités ci-dessus sont en train d'être levés petit à petit. Parmi celles-ci on notera particulièrement la génération de peigne Raman sur plusieurs octaves et synthétisable grâce à la modulation moléculaire [99][100] et la DRS dans les fibres à cœur creux où des seuils de puissance de pompes ultra-faibles sont utilisés grâce à l'utilisation de la fibre creuse. Ce chapitre revoit les différentes techniques et principes physiques ainsi que les résultats obtenus dans le domaine de la génération de spectre à peigne ayant le potentiel de faire de réaliser une synthèse d'onde optique. Dans une section suivante nous exposons le principe de la génération d'un spectre Raman ultra-large par excitation en mode continu et le synthétiseur optique à base de fibre creuse.

2. Les différentes voies pour la synthèse d'ondes optiques

Plusieurs techniques ont démontré la génération d'un peigne de fréquences optiques large bande. Chaque technique a ses avantages et ses inconvénients, ainsi que son potentiel par rapport à la synthèse d'ondes optiques. Dans ce travail de revue nous Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018 198 classifions ces techniques suivant que la synthèse possible soit inscrites dans des impulsions préexistantes (voies impulsionnelles) ou non (voies continues).

a) Voies impulsionnelles

i. Génération de hautes harmoniques

Une des techniques utilisée pour générer des peignes multi-octaves est la génération de hautes harmoniques [101]. Cette technique consiste à focaliser un laser très intense dans un gaz provoquant des effets non linéaires. La dynamique en résultant s'appelle « modèle à trois étapes ». Dans la première étape le pic de haute énergie supprime dans un premier temps la barrière de Coulomb, permettant à l'électron de sortir de l'atome par effet tunnel. L'électron gagne alors en vitesse dans le champ électrique du laser lui permettant de se recombiner avec un ion parent et émettre un photon avec une énergie plus haute (figure 7-3). Cette dynamique se déroule dans un espace de temps plus court que le cycle du champ du laser d'où l'intérêt d'utiliser des lasers ultra-brefs. Elle permet de générer des harmoniques très élevées de la fréquence de la pompe et ainsi produire des impulsions as dans l'UV extrême (XUV) et dans le domaine des rayons X. Ces dernières sont compliquées à contrôler dues à leur région spectrale. Les autres limitations sont liées à la faible efficacité de conversion et la nécessité d'avoir des lasers fs très intenses (10¹⁴ W/cm²).



(b)

Figure 7-3 : (a) schéma d'un montage typique de HHG (b) Illustration du processus se produisant lors de la HHG.

(a)



ii. Modulation électro-optique

La modulation électro-optique consiste à appliquer un voltage sur un cristal non linéaire, typiquement les nobiates de lithium (figure 7-4). Ce voltage permet de déformer la structure cristalline formant un ellipsoïde d'indice [102]. Lorsqu'un faisceau laser à une fréquence ω_0 se propage dans ce cristal, il devient modulé en fréquence et de nouvelles fréquences espacées de $\pm n\omega_m$ apparaissent. La modulation est typiquement d'1 GHz limitant la largeur du peigne de fréquence généré. Par conséquent cette technique n'est pas appropriée pour générer un peigne multi-octave afin de réaliser un synthétiseur d'ondes optique.

Afin d'obtenir de larges peignes, des décalages fréquentiels de plusieurs Thz sont nécessaires. Pour cela, plusieurs voies basées sur le Raman peuvent être empruntées, le Raman impulsionnel, la modulation moléculaire ou le Raman en régime transitoire.



Figure 7-4 : Schéma illustratif de la modulation par effet électro-optique.

iii. Voies Raman

a. Raman impulsionnel

Le Raman impulsionnel a été proposé par Nazarkin [103]. Pour cela il excite un milieu Raman avec un laser fs ayant une impulsion plus courte que le temps de déphasage T_2 . Le laser doit ainsi avoir un spectre suffisamment large pour qu'il soit supérieur au décalage Raman. Dans un deuxième temps, une seconde faible impulsion est propagée dans le milieu. Elle est alors diffusée par la modulation de son indice de réfraction par vibration moléculaire. Elle a permis de générer des

impulsions aussi courtes que 3,8 fs dans le proche UV. Les limitations de cette technique est donc la nécessité d'impulsions avec des puissances crêtes très élevées et des impulsions ultra-brèves. En retour, l'effet Kerr vient concurrencer la DRS d'où une cohérence et un élargissement spectral faible.

b. Modulation moléculaire

La modulation moléculaire, suggérée par Harris [100], utilise des impulsions plus longues que *T*₂. Pour cette méthode deux lasers (ns) avec une différence de fréquence quasi égale à celle d'une transition vibrationnelle ou rotationnelle sont utilisés afin d'amener les molécules dans un état adiabatique. Cet état adiabatique place la molécule sur un état excité sans dissipation thermique ce qui en fait un modulateur de phase à la fréquence ro-vibrationnelle de la molécule. Le spectre généré couvre facilement plusieurs octaves [99]. En jouant sur la phase et l'amplitude de différentes harmoniques, différentes formes ont été générées [104] comme illustrée sur la figure 7-5. La limitation de cette technique est la nécessité d'avoir deux lasers de hautes intensités et une longueur d'interaction faible due à la configuration en espace libre.

c. Diffusion Raman stimulée en régime transitoire dans les HCPCF

La dernière technique est le Raman transitoire où la durée de l'impulsion est comparable ou plus petite que *T*₂. En effet, nous avons vu dans le chapitre 6 qu'avec une impulsion assez courte il est possible d'amplifier qu'un seul mode temporel Raman. De plus, si cette amplification se fait dans une HCPCF, alors qu'un seul mode spatio-temporel peut être généré cela induit que les photons du peigne Raman généré sur plusieurs octaves sont cohérents et les impulsions limitées transformées. Cette démonstration a été faite avec un laser MW avec des impulsions sub-pico seconde [105]. S'en est suivi celle avec des largeurs d'impulsions bien plus grandes que celles prédites avec un seuil de puissance diminué de plusieurs ordres de grandeur lorsque l'interaction s'effectue dans une HCPCF [39]. Le développement de cet outil a permis de générer des peignes sur plus de 5 octaves [42] (figure 7-6) et de démontrer une auto et mutuelle cohérence entre les composantes du peigne [40].



Figure 7-5 : Peigne Raman en régime transitoire sur 5 octaves [42].

Ces différentes méthodes décrites gagneraient en utilité par rapport à la synthèse d'ondes optiques si le régime de pompage est en continu ou quasi continu. En effet, alors que les spectres sont suffisamment larges, comme démontré avec le TSRS dans les fibres creuses, toute synthèse d'onde est nécessairement dépendante de l'impulsion des lasers de pompe.

b) Voies en régime continu

i. Effet Kerr dans des micros résonateurs

Une technique qui a émergé récemment avec le développement de composants photoniques micro et nanométriques, comme les micro-torroïdes, est l'effet Kerr en régime continu. En effet, induire l'effet Kerr dans des micro-résonateurs est un moyen efficace pour obtenir des peignes optiques en régime continu. Deux conditions doivent être satisfaites, la conservation du moment et celle de l'énergie. Ce processus est observable dans des micro-résonateurs (CaF₂, silice et nitrure de silicium) grâce à la symétrie d'inversion de leur réseau cristallin (χ^3 élevé) et leur facteur de qualité très élevé. Le signal et les bandes latérales idler interagissent pour former des bandes d'ordre supérieures par mélange à quatre ondes non dégénéré pouvant générer pas moins d'un milliards de pics. Ce peigne est centré sur la fréquence du laser et la distance inter-pics est celle de la fréquence de résonnance du composant. L'avantage de ces appareils photoniques est leur intégrabilité aux puces photoniques. En effet, en 2009 Levy [106] démontre la première source monolithique compatible avec un CMOS en créant un oscillateur paramétrique optique formé par

un micro-résonateur en nitrure de silicium sur du silicium. Le désavantage pour notre objectif est une gestion de puissance limitée ainsi que la largeur de bande. Cette dernière est limitée à ~ 1 octave [107] comme nous pouvons voir sur la figure 7-7. Une autre solution en continue est de générer des peignes Raman grâce à la DRS dans des HCPCF.



Figure 7-6 : Peigne CW produit par effet Kerr dans un anneau micrométrique [107].

ii. Voie de la diffusion Raman stimulée

La première technique pionnière pour confiner le milieu actif Raman dans une cavité Fabry Pérot est de synchroniser le laser de pompe à cette cavité. La première démonstration a été proposée par Carlsten [108] avec la génération du Stokes de premier ordre. Cette faible conversion est liée à la réflectance des miroirs de la cavité et la sensibilité thermique du système. Par la suite, l'amélioration de la finesse de la cavité liée à l'évolution des optiques (laser, miroirs...) a permis au groupe de Yavuz de générer un peigne sur 1 octave [109]. La haute cohérence entre les composantes du peigne leur a aussi permis de synthétiser une forme d'onde de quelques fs espacée de 11 fs. La limitation de cette technologie est l'efficacité de conversion qui restreint la génération de peignes sur plusieurs octaves.

Cette efficacité de conversion peut être améliorée en changeant l'hôte du milieu Raman actif. En effet, nous avons déjà pu voir au cours des derniers chapitres que confiner ce milieu dans une fibre micro-structurée permettait d'atteindre une efficacité de conversion à la limite quantique [9]. Le développement d'un

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

synthétiseur d'onde optique basé sur la génération Raman dans des HCPCF pompées par une source continue via la modulation moléculaire a donc été proposé par Benabid [110]. L'appareil serait tout fibré et permettrait de générer et synthétiser quasiment toutes les formes d'ondes avec une fréquence de quelques dizaines de THz et des longueurs d'ondes centrales de l'UV à l'IR. Des impulsions ultra-brèves avec des durées contrôlables de quelques fs à quelques centaines d'as seraient alors accessibles.



Un schéma de la solution proposée est illustré sur la figure 7-8.

Figure 7-7 : Schéma d'un synthétiseur d'onde basé sur la génération de la DRS en régime CW.

Le premier étage est composé d'un laser CW à haute puissance avec une faible largeur de bande afin d'obtenir le maximum de gain. Ce dernier est couplé dans une HCPCF BIP remplie d'un gaz actif en Raman (typiquement H₂) afin de ne générer que le Stokes de premier ordre. Ainsi nous obtenons deux lasers à haute puissance avec une différence de fréquence égale à cette transition permettant d'être dans une configuration de modulation moléculaire (figure 7-9).

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018



Figure 7-8 : Illustration de la modulation moléculaire.

Les deux faisceaux sont alors superposés et envoyés au deuxième étage constitué d'une fibre HCPCF IC à large bande de transmission remplie d'un gaz actif Raman. Lors de ma thèse je me suis focalisé sur la première chaîne du montage dû à un historique. Dans le but de réaliser ce synthétiseur d'onde, Couny a réalisé un laser Stokes (Stokes rotationnel) haute puissance avec 7 m de fibre PBG remplie de 20 bars d'H₂ [111]. Comme nous pouvons constater sur la figure 7-10, la pompe se déplète fortement à partir de 38 W. Un maximum de 88 W est injecté dans la fibre générant 55 W dans le premier Stokes rotationnel. La largeur de bande mesurée est seulement de 200 kHz représentant un facteur de rétrécissement vis-à-vis de la largeur de bande de la pompe (400 kHz) de 2.



Figure 7-9 : Puissance de la pompe, du Stokes propagatif, et contra-propagatif en fonction de la puissance d'entrée.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

BY-NC-ND

Ce rétrécissement de la largeur de bande est contre intuitif. En effet, nous nous attendons à un élargissement dû aux collisions entre les molécules de l'ordre du GHz pour ce type de pression d'H₂. Cette faible largeur de bande est la signature d'une nouvelle dynamique de la DRS. Nous verrons que lors de cette génération une onde stationnaire se forme induisant une saturation Raman modulée spatialement où les molécules actives Raman sont fortement localisées dans des régions de largeurs nanométriques sur une dimension. Seules ces molécules participent à la DRS causant une forte génération de Stokes propagatif et contra-propagatif. Ces dernières sont confinées dans des régions beaucoup plus étroites que la longueur d'onde ($\delta_z \ll \lambda$). Nous nous retrouvons alors dans une configuration où la DRS est dans un régime Lamb-Dicke impliquant des signatures sub-Doppler du spectre d'émission. Un modèle théorique est présenté dans le chapitre 8. Afin de corroborer le modèle théorique avec l'expérimental, des résultats obtenus par M.Alharbi (refaits lors de ma thèse) et des résultats que j'ai obtenu sont présentés dans le chapitre 9. Une optimisation que j'ai effectuée sur la largeur de bande est présentée dans le chapitre 10.



Chapitre 8. Radiation Stokes à haute puissance et à largeur de raie sub-recul par nano-structuration de gaz et DRS dans un régime Lamb-Dicke: modèle théorique.

Dans ce huitième chapitre nous décrivons le modèle théorique de la radiation Stokes dans le régime Lamb-Dicke. Nous verrons que cette génération à l'échelle macroscopique suit la dynamique usuelle. Cependant, lorsque nous sondons l'échelle microscopique de la zone à gain, une nano-structuration du gaz apparaît. Cette dernière implique un piégeage de molécules dans des puits de potentiel ultra profonds induisant des largeurs de raie sub-recul. Les différentes grandeurs physiques rentrant dans l'équation seront calculées et analysées. Les différentes signatures spectrales de cette radiation Stokes particulière seront déterminées. Enfin, nous étudierons la propagation de ces nano structures le long de la fibre sur une échelle macroscopique.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

1. Introduction

Le but de ce chapitre est de fournir un modèle théorique de la configuration de la DRS de notre dispositif expérimental. Ici un laser pompe continu excite un gaz Raman confiné dans une BIP HCPCF. En particulier, le modèle tient en compte d'une émission Stokes se produisant aussi bien dans la direction de propagation du laser pompe que dans la direction opposée. De plus, le modèle traite la dynamique de la DRS aussi bien à l'échelle microscopique que macroscopique.

Alors qu'à l'échelle macroscopique notre modèle reprend les résultats reportés dans la littérature scientifique sur le phénomène de DRS, il donne des résultats originaux, et parfois étonnants, concernant la dynamique microscopique de la DRS. En particulier, les résultats montrent une nanostructuration du gaz à travers laquelle les molécules actives (au sens de l'émission Raman) sont localisées dans des puits de potentiel de largeur nanométrique et montrant une profondeur de 55 THz. Cette valeur représente 4 ordres de grandeur plus profonde que les puits utilisés dans les atomes froids [112] et moins de 100 fois moins profond que les pièges à ions [113]. Cette nano-localisation des molécules induit une émission Stokes d'un nouveau type. En effet, la largeur de raie de la radiation Stokes est fortement rétrécie en accord avec les résultats expérimentaux présentés dans les chapitres 9 et 10 par effet Lamb Dicke [114].

Le chapitre est structuré comme suit. Le milieu Raman est traité comme un système à deux niveaux. En utilisant le formalisme d'une matrice de densité nous déduisons une expression du régime stationnaire pour la population et la cohérence, et donc pour le gain Raman et le changement d'indice. Deuxièmement, nous résolvons numériquement l'équation de mouvement couplé afin d'extraire la distribution du champ Stokes et de la pompe le long de la fibre. Il est important de noter que nous prenons en compte la réflexion du champ aux extrémités de la fibre (de l'ordre 10-³,10-⁴ pour une HCPCF BIP).

Ensuite, la distribution du champ complexe est prise en compte le long de la fibre. Ces simulations permettent de déterminer les champs et l'énergie potentielle de notre système.

Enfin, à l'échelle macroscopique, des calculs ont été menés afin de déterminer la distribution de ces réseaux suivant l'axe z sur toute la longueur de la fibre.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

2. La structure microscopique de la cohérence Raman avec un champ Stokes co et contra-propageant

a) Modèle théorique et équations de Bloch du système

La figure 8-1 illustre le contour du problème traité. Une fibre creuse remplie de dihydrogène est excitée par un laser continu (*P*) induisant l'émission de radiation du Stokes propageant (*FS*) et contra-propageant (*BS*) relativement au laser pompe (figure 8-1 (a)). La figure 8-1 (b) montre schématiquement les niveaux d'énergie de la molécule de dihydrogène, la longueur d'onde de la pompe ($\lambda_P = 1061 nm$) et le décalage Raman de la transition rotationnelle ($\omega_R \approx 2\pi . 17 THz$), représenté par les niveaux {|1⟩, |2⟩}. Ces niveaux sont très éloignés des transitions électroniques (i.e. niveaux {|*j*⟩}). Le problème peut donc se résumer à celui d'un système à deux niveaux excités par les champs de la pompe et du Stokes. Ces derniers sont exprimés en fonction de leurs composantes co-propagative $E_{P,S}^{(f)}$ et contra-propagative $E_{P,S}^{(b)}$ par les équations suivantes :

$$E_P = E_P^{(f)} + E_P^{(b)} = E_P^{(f)}(1+r_P)$$
 Eq. 8-1

$$E_S = E_S^{(f)} + E_S^{(b)} = E_S^{(f)}(1+r_s)$$
 Eq. 8-2

Les quantités $r_{P,S}$ sont définis par $E_{P,S}^{(f)} = r_{P,S}E_{P,S}^{(f)}$, et représentent la fraction du champ qui est rétrofléchie. Celle-ci peut provenir de l'effet de diffusion de surface du cœur de la fibre, des embouts de la fibre, ou encore de composants optiques tels que les lentilles, miroirs, polariseurs situés avant et après la fibre creuse.

Afin de déterminer le gain Raman, nous résolvons les équations de Bloch du système.



Figure 8-1 : Illustration des composantes à prendre en compte pour les équations de Bloch.

L'Hamiltonien effectif d'interaction entre les champs $E_{P,S}^{(f)}$ et $E_{P,S}^{(b)}$ et le système {|1⟩, |2⟩} dans l'approximation d'une onde rotative (RWA) [115] peut s'écrire après l'élimination adiabatique des niveaux électroniques supérieurs comme suit[99][116] [117]:

$$H_{eff} = \hbar [\Omega_{11} | 1 \rangle \langle 1 |$$

$$+ (\Omega_{22} + \omega_R) | 2 \rangle \langle 2 | + \Omega_{12} | 1 \rangle \langle 2 | + \Omega_{21} | 2 \rangle \langle 1 |]$$
Eq. 8-3

Ici, $\Omega_{11} = a_{-1}E_SE_S^* + a_0E_PE_P^*$ et $\Omega_{22} = b_{-1}E_SE_S^* + b_0E_PE_P^*$ sont les décalages Stark [118] de l'état fondamental et de l'état excité. E_P et E_S sont les champs de la pompe et du Stokes avec une fréquence angulaire ω_P et ω_S . Dans notre cas, les deux champs sont fortement dépendants de la longueur de la fibre z (position le long de la distance de propagation). $\Omega_{12} = \Omega_{21}^* = d_0E_PE_S^*$ est la fréquence Rabi à deux photons. Ici, a_i et b_i sont les coefficients de dispersion des transitions dipolaires de la molécule. d_i représente le coefficient de couplage des moments entre les deux niveaux rotationnels. Enfin, ω_R est la résonnance de décalage Raman.

Les équations de Bloch pour un tel système se réduisent à :

$$\rho_{11}^{\cdot} = i(\Omega_{12}\rho_{21} - \Omega_{21}\rho_{12}) + \Gamma_{21}\rho_{22}$$
 Eq. 8-4

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

CC BY-NC-ND



$$\rho_{22}^{\cdot} = -i(\Omega_{12}\rho_{21} - \Omega_{21}\rho_{12}) - \Gamma_{21}\rho_{22}$$
 Eq. 8-5

$$\rho_{12}^{\cdot} = i(\Omega_{11} - \Omega_{22} + \delta)\rho_{12} + i\Omega_{12}(\rho_{22} - \rho_{11}) - \gamma_{12}\rho_{12}$$
 Eq. 8-6

Avec ρ_{ij} éléments de la matrice de densité du système Raman à deux niveaux. Le désaccord de la fréquence de la pompe et du Stokes est déterminé par le décalage Stark comme $\Omega_{11} - \Omega_{22} + \delta = \tilde{\delta}$, où δ est le décalage des lasers avec la transition Raman à deux photons due à d'autre source comme l'effet Doppler ou de collisions. Le terme γ_{12} est le taux de déphasage Raman et équivaut à $\sim 2\pi \times 1$ *GHz* pour une pression de 20 bars [79]. Le terme Γ_{21} est le taux de relaxation de la population correspondant à $2\pi \times 10$ *kHz* [119] pour une pression de 20 bars également.

b) Expressions microscopiques du gain et du potentiel Raman

La résolution des équations de Bloch permet d'obtenir les expressions suivantes pour un régime stationnaire pour la différence de population normalisée ($\rho_{22} - \rho_{11}$), la cohérence Raman ρ_{12} .

Les expressions des différents éléments de la matrice de densité sont :

$$\rho_{11} + \rho_{22} = 1 \qquad \rho_{22}^{(0)} - \rho_{11}^{(0)} = -1 \qquad \text{Eq. 8-7}$$

$$D = \rho_{22} - \rho_{11} = A = \left(\rho_{22}^{(0)} - \rho_{11}^{(0)}\right) \frac{1}{|Q_{12}|^2} \qquad \text{Eq. 8-8}$$

$$D = \rho_{22} - \rho_{11} = A = \left(\rho_{22}^{(0)} - \rho_{11}^{(0)}\right) \frac{1}{1 + 4 \frac{|\Omega_{12}|^2}{\Gamma_{12\gamma_{12}}}}$$
Eq. 8-8

$$\rho_{12} = i(\rho_{22} - \rho_{11}) \frac{\Omega_{12}}{\gamma_{12} - i(\tilde{\delta})}$$
 Eq. 8-9

 $\rho_{22}^{(0)} - \rho_{11}^{(0)}$ est la différence de population normalisée où nous assumons que toutes les molécules sont initiallement dans l'état fondamental.

En substituant l'expression du champ dans les différentes fréquences Hamiltonienne, nous obtenons l'expression pour la fréquence Rabi à deux photons :

$$|\Omega_{12}|^{2} = \left| d_{-1} \bar{E}_{p}^{(f)} \bar{E}_{S}^{(f)} \right|^{2} \left[1 + r_{p}^{2} + r_{PS}^{2} + 2r_{p}^{2} r_{S}^{2} + 2r_{p}^{2} (1 + r_{p}^{2} r_{S}^{2}) \cos(2\beta_{P} z) + 2r_{S}^{2} (1 + r_{p}^{2} r_{S}^{2}) \cos(2\beta_{S} z) + 2r_{p}^{2} r_{S}^{2} \cos((\beta_{S} + \beta_{P}) z) \right]$$
Eq. 8-10

 $E_i = \overline{E}_i e^{i\beta z}$ et β_i est la constante de propagation. L'indice *P* est utilisé pour le champ de la pompe et *S* pour le champ du Stokes.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

BY-NC-ND



De manière similaire nous trouvons les expressions pour la fréquence du décalage Stark (ici $\delta = 0$), la différence de population :

$$\begin{split} \tilde{\delta} &= & \text{Eq. 8-11} \\ & (a_0 - b_0) \left(\left| \left(\bar{E}_p^{(f)} \right) \right|^2 (1 + r_p^2 + 2r_p^2 \cos(2\beta_P z)) \right) + (a_{-1} - b_{-1}) \left(\left| \left(\bar{E}_s^{(f)} \right) \right|^2 (1 + r_p^2 + 2r_s^2 \cos(2\beta_P z)) \right) \\ & \rho_{22} - \rho_{11} &= & \\ \hline 1 + \frac{\left| d_{-1} \bar{E}_p^{(f)} \bar{E}_s^{(f)} \right|^2 [1 + r_p^2 + r_s^2 + 2r_p^2 (1 + r_p^2 r_s^2) \cos(2\beta_P z) + 2r_s^2 (1 + r_p^2 r_s^2) \cos(2\beta_S z) + 2r_p^2 r_s^2 \cos((\beta_S + \beta_P) z)]}{\Gamma_{12\gamma_{12}}} & \text{Eq. 8-12} \end{split}$$

Le gain Raman peut être déduit de deux équations ci-dessus en rappelant que la polarisation induite par la pompe et le Stokes s'écrit comme suit :

$$P_{FS} = 2N\hbar(a_{-1}\rho_{11} + b_{-1}\rho_{22})E_{FS} + i\frac{N\hbar d_s^2(\rho_{22} - \rho_{11})}{\gamma_{12} - i(\Omega_{11} - \Omega_{22})|E_P|^2 E_{FS}}|E_P|^2 E_{FS}$$
 Eq. 8-13

$$P_{BS} = 2N\hbar(a_{-1}\rho_{11} + b_{-1}\rho_{22})E_{BS} + i\frac{N\hbar d_S^2(\rho_{22} - \rho_{11})}{\gamma_{12} - i(\Omega_{11} - \Omega_{22})}|E_P|^2 E_{BS}$$
 Eq. 8-14

$$P_P = 2N\hbar(a_0\rho_{11} + b_0\rho_{22})E_P + i\frac{N\hbar d_s^2(\rho_{22} - \rho_{11})}{\gamma_{12} - i(\Omega_{11} - \Omega_{22})}|E_P|^2E_P$$
 Eq. 8-15

D'après [120], nous pouvons écrire la polarisation du milieu oscillant à la fréquence du Stokes de la manière suivante :

$$P_{S} = \epsilon_{0} \chi^{(1)} E_{S} - \epsilon_{0} \chi^{(3)} |E_{P}|^{2} E_{S}$$
 Eq. 8-16

Où $\chi^{(1)}$ est la susceptibilité linéaire. Elle est associée à la variation de l'indice de réfraction causé par la dispersion du milieu. Le χ^3 est la susceptibilité non linéaire Raman complexe. Il peut être scindé en une partie réelle et une imaginaire ($\chi^3 = \chi'_R + i\chi''_R$) avec $\chi'_R = -N\hbar d_s^2 D\delta/\epsilon_0(\gamma_{ab}^2 + \delta^2)$ et $\chi''_R = -N\hbar d_s^2 D\gamma_{ab}/\epsilon_0(\gamma_{ab}^2 + \delta^2)$.

La partie réelle de la susceptibilité est reliée au changement de l'indice du milieu qui devient $n_S \approx 1 + (\chi^{(1)} + \chi_R'')/2$.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018





Concernant la partie imaginaire, elle est directement reliée au gain Raman. Avec quelques substitutions algébriques son expression peut s'écrire comme suit :

$$g_{R} = \left[\frac{2\omega_{S}}{n_{S}n_{P}c^{2}\varepsilon_{0}^{2}}N\hbar d_{S}^{2}(\rho_{22}^{(0)} - \rho_{11}^{(0)})\right]\frac{\gamma_{12}^{2} + \delta^{2}}{(\gamma_{12}^{2} + \delta^{2}) + 4\frac{|\Omega_{12}|^{2}}{\Gamma_{12}}\gamma_{12}} \cdot \frac{1}{\gamma_{12}^{2} + \tilde{\delta}^{2}} \qquad \text{Eq. 8-17}$$

$$g_R = g(0) \frac{\gamma_{12}^2}{(\gamma_{12}^2 + \delta^2) + 4 \frac{|\Omega_{12}|^2}{\Gamma_{12}}} \cdot \frac{1}{\gamma_{12}^2 + \tilde{\delta}^2}$$
 Eq. 8-18

Ici, *N* représente la densité moléculaire, $n_{S,P}$ est l'indice de réfraction du Stokes ou de la pompe.

Dans notre cas r_p et r_s sont dues aux réflexions arrières aux extrémités de la fibre et déterminées par la solution aux équations couplées du Raman. Pour la démonstration nous commençons par fixer $r_s = 1$ qui correspond à une diffusion symétrique par rapport aux directions de la fibre. Nous prenons $r_p = 0$ justifié par le fait que la rétro réflexion est négligeable expérimentalement. De plus, une réflexion périodique est générée durant le Raman.

La figure 8-2 montre la différence de population (figure 8-2(a)), et le coefficient du gain Raman (figure 8-2(b)) en fonction de *z* sur une distance deux fois plus grande que la longueur d'onde Stokes (i.e. $2 \times \lambda_s \sim 2,2 \,\mu m$) et pour quatre paires de puissances pour la pompe et le Stokes. Nous considérons que la puissance dans le Stokes propagatif et contra-propagatif est identique (i.e. $r_s = 1$). Les résultats démontrent une structure périodique en fonction de *z* pour les deux dimensions. Nous pouvons distinguer deux régions dans cette distribution :

- Une correspond à une région de haut gain.
- Une autre avec un faible gain, nous l'appelons région de saturation.

La région de haut gain est caractérisée par une région étroite aux multiples de $z = \frac{\lambda_S}{2}$ où le gain et la différence de population est à son maximum. Lorsque la puissance du Stokes et de la pompe sont augmentées la région de haut gain se rétrécie correspondant à une saturation complète dans la région de bas gain.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018





Figure 8-2 : (a) Différence de population pour différentes puissances. (b) Coefficient du gain Raman pour différentes puissances.

Ce gain et cette structuration spatiale de la population sont générés pour des niveaux de puissance Stokes et pompe relativement bas. Par exemple, la saturation totale est atteinte avec seulement 4 W de puissance de pompe, et 1 W pour le Stokes propagatif et le contra-propagatif. Cette propriété provient du fort confinement du champ transverse de la HCPCF BIP permettant de saturer l'intensité du mode guidé (i.e. $\Omega_{12} \ge \Omega_{12}^{(sat)} = \sqrt{\gamma_{12}\Gamma_{12}}$) avec de faibles puissances. Dans notre cas, $\Omega_{12}^{(sat)} \sim 2\pi \times$

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

3 *MHz* est atteint pour une puissance de pompe égale à 0,5 W (intensité de 3,3 MW/cm²), une puissance du Stokes propagatif et contra-propagatif égales à 0,125 W. Un aspect intéressant à regarder est l'évolution de la partie réelle du $\chi^{(3)}$ de cette DRS particulière en fonction de z/λ_s . Elle est en effet l'indice du Stokes défini par $n_s = 1 + \chi^{(1)}/2$. L'indice varie d'un facteur 50 pour une puissance de pompe de 4 W et les deux Stokes à 0,5 W. De cette variation d'indice, de périodicité égale à la fréquence Stokes, germe l'idée de réaliser des composants photoniques comme des micros-cavités.



Figure 8-3 : Evolution de l'indice en fonction de z/λ_s .

Le rôle de ces régions à haut gain devient encore plus déterminant après examen de la distribution longitudinale du potentiel induit par cette interaction. Ce dernier s'écrit :

$$\langle \hbar^{-1} U_{tot} \rangle = Tr(\rho H_{int})$$

$$= (\rho_{21} \Omega_{12} + \rho_{12} \Omega_{21})$$

$$+ \left(\frac{1 - (\rho_{22} - \rho_{11})}{2} \Omega_{11} + \frac{1 - (\rho_{22} - \rho_{11})}{2} \Omega_{22} \right)$$

$$+ \frac{1 - (\rho_{22} - \rho_{11})}{2} \omega_R$$
Eq. 8-19

Le premier terme correspond au changement d'énergie provenant de l'interaction à deux photons de la DRS. Les deuxièmes et troisièmes termes définissent les énergies

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

CC BY-NC-ND



associées à l'effet Stark sur l'état fondamental et excité. Le dernier terme est l'expression de l'énergie de la rotation de la molécule et n'a pas d'analogue dans les réseaux optiques dipolaires conventionnels. Lorsque la différence de population $(\rho_{22} - \rho_{11})$ est égale à -1 elle est de manière prédominante dans l'état fondamental correspondant à un régime DRS habituel où le gain est à son maximum. L'énergie du potentiel s'écrit alors $\langle \hbar^{-1}U_{tot} \rangle = (\rho_{21}\Omega_{12} + \rho_{12}\Omega_{21})$ correspondant à un système énergétique déterminé par l'interaction Raman et la différence de décalage Stark entre les deux états. Lorsque $\rho_{22} - \rho_{11} = 0$, correspondant à la saturation du processus Raman, le milieu Raman ne diffuse plus. L'énergie du potentiel est alors dominée par la rotation moléculaire $\langle \hbar^{-1}U_{tot} \rangle \sim \omega_R/2$ ($\omega_R \gg \Omega_{22}$).

La figure 8-3 montre la distribution du potentiel $\langle \hbar^{-1}U_{tot} \rangle$ le long de la direction de la fibre. Nous remarquons que les régions à haut gain, c.a.d celles centrées à $\lambda_s/2$, induisent des puits de potentiel tous les $\lambda_s/2$ avec une largeur de l'ordre de quelques nanomètres. La profondeur du puit de potentiel dépend fortement de la puissance du laser et des deux Stokes. Le fait d'avoir des régions nano-structurées où la largeur du puit est très inférieure à la longueur d'onde indique que nous travaillons en régime Lamb Dicke [114] avec les signatures spectrales caractéristiques de ce régime.



Figure 8-4 : Potentiel moyen total en fonction de z/λ_s .

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018
c) Signatures spectrales du système

La figure 8-5(a) montre l'évolution du système à deux niveaux lorsque la molécule est en présence des champs E_P et E_S . Pour des champs suffisamment grands, les niveaux d'énergie sont décalés par l'effet Stark AC d'une fréquence δ_{st} comme illustré dans le premier cadre (ii) de la figure 8-5(a). Ces deux niveaux sont scindés par l'effet de la séparation Rabi représenté dans le deuxième cadre (ii) de la figure 8-5(a) [115][121]. Nous pouvons alors définir quatre états habillés $|1d, -\rangle$, $|1d, +\rangle$, $|2d, -\rangle$ et $|2d, +\rangle$ espacés de $\pm \Omega_{RS}$ (fréquence Rabi splitting). Cet effet Rabi se manifeste spectralement par une ligne centrale ω_s accompagnée de deux bandes latérales situées à $\omega_s \pm \Omega_{RS}$ formant un Mollow triplet [122]. En effet, lors de leur interaction avec la pompe, les molécules se situant dans les niveaux $|1d, -\rangle$ et $|1d, +\rangle$ sont excitées à leur état virtuel respectif. Elles se désexcitent ensuite soit au niveau $|2d, -\rangle$ ou $|2d, +\rangle$. Ainsi quatre transitions sont possibles; la transition de $|1d, -\rangle$ à $|2d, -\rangle$ et $|1d, +\rangle$ à $|2d, +\rangle$ correspondant à ω_s , la transition $|1d, -\rangle$ à $|2d, +\rangle$ correspondant à $\omega_S - \Omega_{RS}$ et enfin la transition de $|1d, +\rangle$ à $|2d, -\rangle$ correspondant à $\omega_S + \Omega_{RS}$. Cette structure n'est résolue que dans des configurations d'interactions laser-matière spécifiques ou le Doppler est supprimé. Le mélange à 4 ondes entre ces composantes résulte en un peigne de fréquence avec des composantes espacées par Ω_{RS} comme illustré en dessous de la structure énergétique du système à deux niveaux. De plus les régions à haut gain Raman nano structurés avec des puits de potentiel dans l'axe transverse et longitudinal impliquent un confinement des molécules plus ou moins fort suivant l'axe pour les quatre états énergétiques $|1d, -\rangle$, $|1d, +\rangle$, $|2d, -\rangle$ et $|2d, +\rangle$ (figure 8-5 (b)). On retrouve donc 4 puits de potentiel le long de l'axe transverse (1 puit par état énergétique) dont la profondeur dépend du rayon du cœur. Cette profondeur détermine la fréquence de transition des molécules. Nous nous attendons donc à trois pics, une ligne centrale ω_S et deux bandes latérales situées à $\omega_s \pm \omega_{trans}$. De même pour l'axe longitudinale, où cette fois-ci la profondeur du puit dépend de la transition Raman, nous avons 4 puits de potentiel. Nous nous attendons également à trois pics avec ω_s comme bande centrale et $\omega_{S} \pm \omega_{long}$ comme bandes latérales.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018







Figure 8-5 : (a) Evolution du diagramme énergétique lors de la génération Stokes. (b) Illustration du diagramme énergétique dû au confinement des molécules dans des puits de potentiel des 4 états habillés dans l'axe transverse $|id, \pm, vib_{trans}\rangle$ et longitudinal $|id, \pm, vib_{long}\rangle$.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

De plus, avec un gain ainsi structuré, les molécules sont localisées dans des régions de largeur en dessous de la longueur d'onde. En effet, des largeurs à mi-hauteur peuvent atteindre des valeurs aussi basses que 0,05. $\lambda_s \sim 50$ nm dans le cas d'une puissance de pompe de 4 W et 1 W pour les deux Stokes propagatif et contrapropagatif. Ces valeurs sont utilisées pour tous les prochains calculs. Dans le cas de $r_s = 1$, l'expression de l'épaisseur de la région active Raman peut être exprimée comme la largeur à mi-hauteur du gain de la différence de population. Ceci donne une largeur de :

$$\delta_Z = \frac{\lambda_S}{2\pi} \sqrt{\frac{\gamma_{12}\Gamma_{12}}{2\Omega_{12}^2}} = \frac{\lambda_S}{2\pi} \frac{\Omega_{12}^{(sat)}}{\Omega_{12}\sqrt{2}}$$
Eq. 8-20

Cette largeur indique que les molécules sont confinées dans des régions sublongueur d'onde indiquant un régime Lamb-Dicke [114]. En conséquence, leur spectre diffusé dévie fortement d'un spectre limité par l'effet Doppler ou un spectre élargi par la pression du gaz. En effet, nous nous attendons à une signature spectrale comparable à celle que l'on trouve dans les régimes Dicke avec une forme Lorentzienne. Sa largeur est alors déterminée par le temps de transition des molécules dans la région active Raman.

Dans notre configuration, parmi les molécules traversant les sections de largeurs nanométriques et actives Raman, seules les molécules demeurant assez longtemps dans cette région peuvent être diffusées. Les temps caractéristiques impliqués ici sont :

- Le temps de relaxation des molécules rotationnelles ($T_1 = \Gamma_{12}^{-1}$).
- Le taux d'excitation (Ω_{12}).

Cela fixe une limite quant à la vélocité des molécules participant dans le processus de diffusion à $v_{mol} < \max(T_1, \Omega_{12}^{-1})$. Dans nos conditions, la fréquence Rabi à deux photons est plus grande qu'1 MHz, alors que T_1 est de l'ordre de ~100 µs. Ainsi, la vélocité maximum des molécules diffusantes « actives » est donnée par $v_{molmax} = \delta_Z/T_1$. La vélocité maximum des molécules diffusantes dans la région active Raman est 0,1 mm/s. Pour un temps transitoire T_1 , nous nous attendons donc à obtenir un spectre d'émission Stokes avec une forme Lorentzienne et une largeur à mi-hauteur de 3,2 kHz. Si nous mettons à l'échelle cette vélocité de 0,1 mm/s par rapport à la vélocité de recul $v_R = \hbar k/M$ de la molécule d'hydrogène (~200*mm/s*, nous obtenons Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

une largeur de bande sub-recul. Ce cas n'est trouvé que dans la physique des atomes froids, alors qu'ici les molécules sont thermiques. Cependant une sélection des molécules lentes opère grâce aux puits de potentiel profonds. Pour cette même raison le nombre de molécules est assez large et sont localisées dans la région de haut gain. Nous avons vu sa distribution dans la section précédente (figure 8-4). La profondeur du puit dépend fortement de la puissance du Stokes et de la pompe. Même avec une puissance de pompe aussi faible que 0,5 W et 0,125 W dans les deux Stokes, le puit est aussi profond que 3 THz, cette valeur augmente à 4,5 THz pour une puissance de pompe de 4 W et des deux Stokes d'1 W. Le dernier cas correspond à une capture de

vitesse, c'est-à-dire la vélocité maximum des molécules piégées, $v_{cap} = \sqrt{2 \frac{U_{tot}}{m}}$ de ~217 *m/s*. De plus, dans le cas où la différence de population est égale à 0 la profondeur du puit de potentiel correspond à $\delta \langle \hbar^{-1}U_{tot} \rangle \sim \omega_R/2$, c.à.d 55 THz correspondant à une capture de vélocité de pas moins de 1800 m.s⁻¹.

Par conséquent une grande fraction des molécules thermiques sont piégées dans la région à haut gain et diffusent de la lumière Stokes avec une signature spectrale Lamb-Dicke mais également des bandes latérales de mouvement. Une correspondante au mouvement longitudinal dû aux oscillations en z et une transversale provenant du faisceau presque Gaussien du profil radial du mode guidé par la fibre (figure 8-5(b)).

La fréquence de telles bandes peut être déduite en étendant le potentiel vers les antinœuds et en utilisant l'approximation d'un oscillateur harmonique. Cela donne les expressions suivantes :

$$\nu_{l,vib} = \frac{1}{\pi} \sqrt{\langle \hbar^{-1} U_{l,max} \rangle \omega_{recul}} \sim 5 - 20 \ GHz$$
 Eq. 8-21

$$\nu_{\tau,vib} = \frac{1}{\pi} \frac{1}{r_{mf}} \sqrt{\frac{\langle \hbar^{-1} U_{tr,max} \rangle}{m}} \sim 200 - 300 \ kHz$$
 Eq. 8-22

 $\omega_{recul} = (\hbar \beta_s^2)/2m$ est la fréquence de recul. r_{mf} est le rayon du champ du mode guidé. $U_{l,max}$ et $U_{tr,max}$ sont les maximums locaux du potentiel proche de r = 0 et $= (m + 1/2)\lambda_s$.

Le modèle théorique prédit également un Mollow triplet. En effet, étant donné que nous sommes en régime sub-Doppler avec de grandes intensités impliquées, la Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018 220 structure énergétique à deux niveaux est scindée due à la séparation Rabi. Le résultat est une signature spectrale avec un pic central et deux pics latéraux. La figure 8-5(a) illustre schématiquement le niveau d'énergie en utilisant le schéma des états habillés. Chaque état est séparé en état avec des fréquences propres $\omega_{\pm} = \omega_i \pm \Omega_{Rs}$. En vue de la structuration sous-longueur d'onde de notre champ, nous avons $\Omega_{Rs} = \langle \Omega_{12} \rangle_Z$ où $\langle \Omega_{12} \rangle_Z$ est la fréquence Rabi à deux photons moyennée sur une longueur d'onde Stokes.

Dans le cas d'une puissance de 4 W de pompe et 1 W de Stokes, la fréquence de la séparation Rabi est ~ 12 MHz. Il est important de noter que des harmoniques de ces bandes latérales peuvent être générées par mélange à 4 ondes.

3. Simulations numériques des équations de propagation de la DRS couplées avec les équations de Bloch

Dans le modèle décrit dans la section précédente, les valeurs du champ sont des paramètres libres. Dans le but de développer et d'évaluer ce modèle il est nécessaire de prendre en compte la distribution du champ complexe le long de la fibre dû à la diffusion Raman stimulée dans une HCPCF.

Nous utilisons ici des calculs numériques¹ afin de déterminer les champs et l'énergie potentielle de notre système publiée dans [123]. Nous considérons la propagation d'une pompe CW et une radiation Stokes dans le mode fondamental de la HCPCF. La simulation néglige l'excitation de Stokes d'ordre supérieur ou même d'un anti-Stokes. De plus, nous ignorons le couplage de modes entre le mode fondamental du cœur et les modes d'ordres supérieurs. Les paramètres de propagation du Stokes et de la pompe dans une fibre HC-PCG BIP avec un diamètre de cœur de 7 µm sont pris comme les constantes de propagation β_P et β_S et les coefficients de pertes α_P , α_S sont calculés en utilisant le solveur d'éléments finis Maxwell JCMwave.

Aucune réflexion de la pompe n'a été considérée comme les valeurs du champ de la pompe à la sortie de la fibre sont typiquement basses dû à sa déplétion. Les paramètres d'entrée suivant sont utilisés afin de calculer le décalage Stark et la

¹ Réalisé par Anton Husakou, chercheur au Max Born institut.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

différence de population (i.e. Eq. 8-11 et 8-12) : $a_0 = 3,854.10^{-7} \text{ J/m/} V^2$, $a_{-1} = 3,849.10^{-7} \text{ J/m/} V^2$, $b_0 = 3,858.10^{-7} \text{ J/m/} V^2$, $b_{-1} = 3,854.10^{-7} \text{ J/m/} V^2$, $d_{-1} = 3,854.10^{-7} \text{ J/m/} V^2$ [99], $\gamma_{12} = 2\pi (2.10^9) \text{ Hz}$ [119], $\Gamma_{12} = 2\pi .10^5 \text{ Hz}$ [124] et $N = 4,86.10^{26} 1/m^3$ correspondant à une pression expérimentale de 20 bars.

Pour dériver les équations de propagation, nous considérons les valeurs de la matrice de densité ρ de l'état stationnaire. Nous nous basons sur les équations de polarisation introduites précédemment (8-13, 8-14 et 8-15) afin d'obtenir les équations de propagations suivantes :

$$\partial_Z E_{FS} = -\frac{\omega_S}{2c\varepsilon_0} P_{FS} - \alpha_S E_{FS}$$
 Eq. 8-23

$$\partial_Z E_{BS} = -\frac{\omega_S}{2c\varepsilon_0} P_{BS} - \alpha_S E_{BS}$$
 Eq. 8-24

$$\partial_Z E_P = -\frac{\omega_P}{2c\varepsilon_0} P_P - \alpha_P E_P$$
 Eq. 8-25

Les conditions pour les frontières du champ Stokes sont :

$$E_{FS}(0) = \sqrt{r}E_{BS}(0)$$
 Eq. 8-26

$$E_{FS}(L) = \sqrt{r}E_{BS}(L) \qquad \qquad \text{Eq. 8-27}$$

Où *r* est le coefficient de réflexion de la puissance et *L* est la longueur de la fibre.

Les équations ci-dessus ont été résolues de manière auto-consistante avec les équations de propagation en utilisant la méthode de shoot numérique pour déterminer $E_{FS}(0)$. De plus, nous prenons une longueur de fibre de 7 m avec un cœur de 3,5 µm de rayon.

La figure 8-6 présente les résultats numériques obtenus de la distribution suivant *z* de la pompe, FS, BS et le gain Raman pour une puissance d'entrée de 10 W et de 25 W. La distribution *z* est typique pour la DRS avec avec une déplétion accompagnée de l'accroissement du FS et du BS ainsi qu'une longueur de fibre effective augmentant lorsque la puissance en entrée diminue. Si nous nous focalisons sur la région du gain en faisant un zoom, nous pouvons constater un gain périodique et une différence de population en accord avec le modèle analytique mentionné auparavant. Les résultats montrent également qu'une saturation de la quasi-totalité de la différence de population est possible avec une puissance de pompe de 10 W. A

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

25 W, le milieu Raman est totalement saturé sur tout le long de la fibre sur des régions nanométriques périodiques.

Une fois les champs trouvés en fonction des coordonnées de propagation, nous avons utilisé l'Hamiltonien pour déterminer numériquement la fréquence Rabi, les fréquences des bandes latérales de mouvement et la largeur de bande.

La figure 8-7 montre le profil spatial du potentiel exprimé en THz pour le cas de 50 W couplés. En accord avec ce que nous avons vu précédemment, l'Hamiltonien présente un minima transversal et longitudinal. La figure représente la largeur de bande limitée par le temps transitoire T_1 et calculée pour différentes pressions.

(a)



Figure 8-6 : Evolution de la pompe, des deux Stokes le long de la direction de propagation pour des puissances d'entrée de (a) 10 W et (25 W). Un zoom sur la puissance de distribution (c) 10 W et (d) 25

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

W. Coefficient de gain Raman, la différence de population et le potentiel moyen total (H=Ut_{ot}) en fonction de z/λ_s pour (e)10 W et (f) 25 W.[125]



Figure 8-7 : (a) Potentiel moyen total (H=U_{tot}) en fonction de z/λ_s et ρ pour 25 W. (b) Profil longitudinal H. (c) Profile transverse de H.[125]

4. Force opto-mécanique suivant la direction de la fibre

Un autre phénomène est prédit au début du processus de la DRS, une accélération Stark des molécules[126][127]. Cette accélération moléculaire est prédite par la distribution de l'Hamiltonien macroscopique le long de *z*. En effet, la figure 8-8 montre le cas d'une puissance couplée de 25 W où l'Hamiltonien exhibe un gradient quasi constant de 1,5ħ THz sur les dix premiers centimètres de la fibre due au début de la déplétion de la pompe. Cela donne en retour une accélération constante le long de *z* aux molécules exprimée par :

$$a = -m^{-1} \frac{\partial(U_{tot})}{\partial_z}$$
 Eq. 8-28

Ces molécules accélérées entrent ensuite dans la section de la génération Raman représentée par un puit de potentiel de 11ħ THz et une largeur spatiale de $\sim 4 cm$.





Figure 8-8 : Accélération Stark le long de la fibre avec le potentiel moyen total en fonction de la fibre ainsi que deux diagrammes de la vitesse de phase en fonction de la fibre et de z/λ_s .[125]

Il est important de noter que ce réseau optique accélère aussi vu qu'il dépend de la densité moléculaire. Cette dynamique complexe n'est pas traitée ici. Nous gardons le modèle mentionné précédemment où les molécules sont considérées être stationnaires initialement, même si nous pouvons extraire qualitativement la dynamique de la cinétique des molécules en considérant le diagramme de la phase de la vélocité. La figure 8-8 représente cette dynamique pour une pression de 20 bars et une puissance de pompe de 25 W. Les figures représentent l'accélération des molécules. La carte de couleurs indique les coordonnées qu'une molécule peut occuper selon sa vitesse. Les vitesses aux positions du gain maximum sont utilisées comme une référence. Nous pouvons constater qu'il existe des trajectoires proches dans l'espace des coordonnées de vélocité près du minima de l'Hamiltonien ($z/\lambda = 0,5 + N$, N est un entier), correspondant au piégeage de molécules avec des vélocités en-dessous d'environ 1000 m/s. Le piégeage résulte de la dépendance à l'espace des termes de décalage Stark. Le mouvement des molécules dans la direction

longitudinale comme dans la direction normale peut générer des bandes latérales de mouvement, comme expliqué précédemment.

Les molécules avec des vélocités entre 0 et 1500 m/s aux positions du gain maximal $(z/\lambda = N)$ sont influencées significativement par le décalage Stark alors que des molécules plus rapides (>1500 m/s) ne le sont pas. Ces dernières contribuent de manière négligeable à l'émission vue qu'elles ne restent pas assez de temps dans la région à haut gain et sont fortement saturées. Ainsi, c'est la dynamique des molécules initialement plus lentes qui détermine le spectre que nous observons expérimentalement.

Nous pouvons également observer l'accélération soudaine et la décélération expérimentées par les molécules dans la région à haut gain Raman (z= 15 cm et z=17 cm) et à la déplétion de la pompe (z = 27 cm et z =30 cm). De telles accélérations provoquent des gradients de pression locaux induisant à leur tour une augmentation de la densité moléculaire de manière localisée.

5. Conclusion

Ainsi, le modèle théorique que nous proposons se base sur un système à deux niveaux où la génération de la DRS s'effectue dans le sens propagatif et contrapropagatif. Nous avons vu qu'en résolvant les équations de Bloch nous obtenons une localisation de la différence de population, et donc du coefficient du gain Raman, dans des régions d'une dizaine de nm le long de l'axe z avec une période de $\lambda_S/2$. Cela implique une structuration semblable de l'indice de réfraction, et de manière plus intéressante le potentiel. Ceci est confirmé lorsque ces équations de Bloch sont couplées avec celles de la propagation de la DRS. Nous nous attendons donc à une localisation des molécules actives Raman dans des zones où $\delta_z \ll \lambda_s$, c.à.d en régime Lamb-Dicke. De plus, elles devraient être piégées dans des puits de potentiel profonds. La résultante est une nouvelle structure énergétique de notre système à deux niveaux. En effet, les deux états initiaux sont décalés par l'effet Stark, puis chaque état est scindé en deux par le Rabi splitting induisant la formation de quatre états habillés, discrétisés dans des puits de potentiel transverses et longitudinaux.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

Plusieurs signatures spectrales sub-Doppler devraient découler de cette nouvelle configuration :

- Une largeur de bande sous la limite Doppler de l'H₂.
- Un mollow triplet dû à la séparation Rabi à deux photons espacé de 12 MHz.
- Les états habillés étant confinés dans de forts puits de potentiel sont mieux décrits par un oscillateur harmonique. La signature spectrale du confinement dans le sens transversal et longitudinal résulte en des bandes latérales, entre 200 et 300 kHz pour le transverse et 5 et 20 GHz pour le longitudinal.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018





Chapitre 9. Radiation Stokes à haute puissance et à largeur de raie sub-recul par nanostructuration de gaz et DRS dans un régime Lamb-Dicke: résultats expérimentaux.

L'intérêt de ce neuvième chapitre est de démontrer expérimentalement les résultats théoriques du chapitre 8. Pour cet objectif, un montage expérimental relativement simple a été réalisé afin de mesurer la largeur de bande du Stokes propagatif et contra propagatif. Ce montage permet également de détecter les autres signatures spectrales décrites précédemment mise à part celle du piégeage dans le sens longitudinal. Afin d'adresser ce problème nous proposons deux montages afin de les caractériser. Nous verrons que nous pouvons générer une radiation Stokes de haute puissance avec des largeurs de raies sub-recul. La présence des diverses bandes latérales indique un fort piégeage des molécules dans une nanostructuration de gaz en régime Lamb Dicke.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

1. Introduction

Ce chapitre a pour but de rassembler les différentes signatures spectrales énumérées dans la conclusion du chapitre précédent. En effet le modèle prédit un fort confinement des molécules d'H₂ dans des zones actives Raman de quelques nano mètres présentant des puits de potentiel ultra profonds. Ce phénomène doit induire un rétrécissement de la largeur de bande et des fréquences d'oscillation sur une gamme allant de 200 kHz à quelques dizaines de GHz. Ces résultats se basent sur des travaux effectués par Mehsaal Alharbi, ancien doctorant du GPPMM, réitérés pour la plupart durant cette thèse, ainsi que des résultats complémentaires permettant de valider le modèle. Nous débuterons par la description du montage optique. Puis, une étude sur la largeur de bande en fonction de la pression et de la puissance est présentée, suivie de la signature spectrale de la séparation Rabi et ses harmoniques. Enfin, les bandes provenant du fort piégeage des molécules dans le sens longitudinal sont caractérisées permettant de valider le modèle complet.

2. Montage optique

Le montage optique utilisé est relativement simple. Un laser continu IPG fibré Ytterbium avec une puissance de 100 W et une largeur de bande de 400 kHz à 1061 nm est couplé dans la HCPCF BIP dimensionnée pour cette expérience. Une HCPCF BIP a donc été fabriquée afin de guider uniquement la pompe et le premier Stokes rotationnel introduit dans la partie I, chapitre 2 (figure 9-1).



Figure 9-1 : Image MEB de la fibre BIP HCPCF fabriquée et les pertes associées avec la reprséentation de la longueur de la pompe (flèche rouge), du premier Stokes rotationnel (flèche rouge foncée), du premier anti-Stokes rotationnel (flèche noire) et du second Stokes rotationnel (flèche noire).

Le diamètre du cœur fait 7 μ m et l'espacement entre deux trous d'air adjacents de la gaine est de 2,5 μ m. Les pertes ont été mesurées en effectuant un cut-back de 200 m de fibre à 2 m en utilisant un super-continuum. On trouve des valeurs de l'ordre de 90 dB/km à 1061 nm et de 110 dB/km à 1131 nm (premier Stokes rotationnel). La bande transmise est comprise entre 999 nm et 1175 nm annihilant la génération du Stokes rotationnel du second ordre (1212 nm) et l'anti-Stokes rotationnel du premier ordre (1000 nm) lors de la conversion Raman comme vu sur la figure 9-2.



Figure 9-2 : Spectre optique mesuré à l'OSA de la pompe et du Stokes avec le spectre de transmission de la fibre (a) Spectre du FS (4 W) et de la pompe (11 W). (b) Spectre du BS (1 W) et de la pompe (11 W).

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

Enfin, le tronçon de fibre est scellé à chaque extrémité dans des cellules à gaz avec lesquelles il est possible d'insérer $l'H_2$ et de contrôler sa pression. Des fenêtres revêtues pour atténuer les réflexions à 1061 nm sont utilisées permettant de coupler et récolter la lumière.



Figure 9-3 : Schéma expérimental de la génération Raman avec une HCPCF BIP et la technique de mesure du self heterodyne. Filtre NPB ; filtre passe bas étroit, BS : Stokes conte propagatif, FS : Stokes propagatif, AOM : modulateur acousto-optique, PBS : Cube séparateur polarisateur, BS : cube séparateur, SMF : fibre monomode, PD : photo détecteur[125].

Un filtre Notch est placé devant la cellule d'entrée afin de transmettre le 1061 nm et réfléchir à 45° le Stokes rotationnel de premier ordre à 1131 nm se propageant dans le sens contra-propagatif. De plus, afin d'éviter que la pompe résiduelle rétro réfléchie se propage jusqu'au laser, un dispositif de polariseur est implémenté. Un autre Notch est placé à la sortie de la fibre pour la même raison exceptée que nous récupérons cette fois ci le Stokes propagatif. Les spectres du FS et du BS sont mesurés grâce à un analyseur de spectre optique (OSA). Un exemple de ces spectres est présenté pour le cas d'un Stokes propagatif (FS) sur la figure 9-2(a) et contrapropagatif (BS) sur la figure 9-2(b). La puissance du laser est ici de 29 W avec un coefficient de couplage de 60%. Nous pouvons constater une extinction de 4 dB entre la pompe à 1061 nm et le premier Stokes rotationnel à 1131 nm dans le cas du FS. Le spectre du BS est composé majoritairement du Stokes avec une extinction de 32 dB. La pompe résiduelle provient de la réflexion sur l'embout de la fibre dû au

recouvrement entre le mode de cœur et la silice dont nous avons parlé dans la première partie (environ 1% de la puissance couplée).

Le signal filtré est ensuite acheminé à un système self-hétérodyne afin de mesurer les composantes spectrales du FS et celui du BS. Pour cela, le faisceau est scindé en deux par un cube séparateur. Une portion du signal est injectée dans un bras composé d'un modulateur acousto-optique (AOM) opérant à ~210 MHz, l'autre est couplée dans plusieurs kilomètres de fibre SMF (de 6 à 20 km). Les deux faisceaux sont ensuite superposés. Le battement entre signal retardé et celui dont la fréquence est décalée en fréquence est détecté grâce à un photo-détecteur. Ce battement est visualisé sur un analyseur de spectre RF permettant de déduire les différentes largeurs de bande.

3. Largeurs de bande

La figure 9-4 représente les largeurs de bande de la pompe mesurées de -2 à 2 MHz pour différentes puissances par la technique du self hétérodyne lorsqu'elle est couplée dans une fibre de 20 m de longueur remplie de 20 bars d'H₂. Nous pouvons constater que la largeur de bande est de 400 kHz quelle que soit la puissance.



Figure 9-4 : Evolution de la largeur de bande de la pompe à travers la fibre pour différentes puissances d'entrée 1 W (courbe bleue), 55 W (courbe verte) et 70 W (courbe rouge)[125].

Une étude systématique a été réalisée avec une longueur de fibre de 20 remplie d'H₂. Pour cela, une pression de gaz couvrant la gamme de 20 à 50 bars est insérée dans la fibre. La puissance de la pompe quant à elle s'étend de 9 à 42 W. Le spectre optique et le spectre RF du FS et du BS ont été mesurés de manière systématique par M. Alharbi et présenté afin d'avoir une vue d'ensemble sur le modèle [125].

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018



Figure 9-5 : (a) Evolution de la largeur de bande en fonction du produit P_{in}*Pression pour le Stokes propagatif (points bleus) et Stokes contra-propagatif (points rouges).[125] (b) Représentation du spectre optique du régime I et II (a) et de la mesure de la largeur de bande en échelle logarithmique[125] (c) Zoom sur le régime I avec la représentation de la fréquence sub-recul pour le Stokes propagatif (points bleus) et contra propagatif (points rouges) [125].

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

234

Afin d'avoir une idée de la dynamique des molécules en fonction de ces paramètres, un graphique a été tracé dans la figure 9-5(a) représentant la largeur de bande du FS et du BS en fonction du produit de la puissance d'entrée et de la pression. La tendance obtenue montre deux régimes.

En effet, aux produits de la puissance et de la pression inférieurs à 1000 W.bar la largeur de bande est très étroite. Elle est mesurée avec des valeurs balayant une gamme de 14 à 72 kHz. Ces valeurs sont de 4 ordres inférieurs à la limite Doppler dans les mêmes conditions (i.e. 153 MHz). Ce rétrécissement correspond à celui attendu en régime Lamb-Dicke, c.à.d. $\sqrt{\delta \langle \hbar^{-1}U_{tot} \rangle/2\pi v_{recul}} \sim 10^4$. Le régime I est donc celui du rétrécissement Lamb-Dicke ($\delta z \ll \lambda$). Un spectre optique typique ainsi que la mesure des largeurs de bande sont représentés sur la figure 9-5 (b) présentant la forte conversion du premier Stokes et sa faible largeur de bande associée. Nous pouvons noter une structuration de ce spectre RF que nous expliquerons plus tard. De plus dans ce régime I, les largeurs de bandes mesurées sont toutes situées en dessous de la fréquence de sub-recul comme nous pouvons le voir sur la figure 9-5 (c).

Lorsque le produit de la pression et de la puissance augmente à 1000 W.bar, la largeur de bande s'élargie de manière exponentielle, nommé régime II. Cet élargissement, comme nous pouvons voir sur le spectre optique présenté sur la figure 9-5 (c), coïncide avec la génération du Stokes du second ordre altérant la structuration du gaz, in fine son piégeage. Le spectre RF est alors de forme triangulaire avec une largeur de bande de 800 kHz pour ce cas, et les bandes latérales ne sont plus résolues.

4. Signature du Rabi splitting et du mélange à 4 ondes

Les spectres ont également été pris sur une plus grande gamme de fréquence RF de 160 MHz afin de mesurer les bandes latérales prédites dans la section précédente, à savoir celle dues au Rabi-splitting et au mélange à 4 ondes. Lors de cette thèse j'ai répété ces mesures déjà obtenu par M.Alharbi. La figure 9-6 est un spectre typique du FS et du BS que j'ai pu mesuré où nous pouvons constater des bandes latérales à

9,5 MHz avec leurs harmoniques. Les conditions expérimentales lors de la mesure est une pression de 20 bars d'H₂, une puissance de pompe de 11 W et du FS de 3,5W. En effet, nous avons vu dans le modèle théorique qu'une localisation dans une région sub-longueur d'onde couplée avec un fort champ sépare le système à deux niveaux conventionnels en quatre états habillés. Le spectre est alors composé d'un Mollow triplet espacé par la fréquence Rabi à deux photons calculée de manière à 12 MHz. Une bonne adéquation avec les mesures (9,5 MHz) est donc trouvée. Quant aux harmoniques, elles sont le résultat d'un mélange à quatre ondes entre les composantes du spectre.



Figure 9-6 : Spectre RF du FS sur une gamme de 160 MHz pour une pression de 20 bars et une puissance d'entrée de 11 W avec la courbe de la limite Doppler pour 20 bars de pressions.

5. Signature des bandes relatives au piégeage dans l'axe transverse et longitudinal

Comme nous avons pu voir dans le modèle théorique, Les molécules sont localisées spatialement dans des régions très étroites induisant des états de mouvement de translation quantifiés dans le sens transversal et longitudinal de la fibre. Comme pour la signature Rabbi j'ai réitéré les mesures déjà obtenu par M.Alharbi.

Le piégeage transversal avec un puit d'environ 200 MHz de profondeur correspond à des oscillations de fréquence situées d'après les calculs numériques entre 200 et 300 kHz. Le spectre RF du système self hétérodyne a été mesuré sur une plage de 4 MHz pour les différentes pressions et puissances. Une trace typique des spectres que j'ai mesuré dans ce régime est présentée dans la figure 9-7. Sur cette trace le FS est mesuré ($P_{FS} = 3W$) pour une puissance de pompe en entrée de 10 W et une pression de 20 bars d'H₂. Autour de la ligne centrale, définissant notre largeur de bande, nous pouvons observer des bandes latérales aux alentours de 200 kHz dont la fréquence ne bouge pas avec les différents paramètres. Les bandes latérales observées sur les spectres à ces fréquences sont donc la manifestation du piégeage des molécules dans le sens transversal de la fibre.



Figure 9-7 : Balayage du spectre RF sur 4 MHz pour une pression de 20 bars d'H₂, 10 W de puissance de la pompe en entrée et $P_{FS} = 3W$.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

Les pics situés à 800 kHz correspondent à l'effet Doppler entre le FS et le BS. Une pièce manquante afin de valider ce modèle est la signature des molécules fortement piégées dans le sens longitudinal de la fibre.

En effet, le modèle théorique fournit une estimation de la profondeur du puit de potentiel dans la direction longitudinale de la fibre d'une valeur de 55 THz. Avec un puit aussi profond, les oscillations longitudinales sont estimées à une fréquence située entre 5 et 20 GHz. Ces fréquences étant au-dessus de la limite de détection de notre système self-hétérodyne, deux autres méthodes ont été utilisées afin de les mesurer.

La première consiste à mesurer le spectre avec un analyseur de spectre optique en mode haute résolution. Le spectre obtenu pour le FS est tracé sur la figure 9-8 où nous observons trois pics avec un espacement en fréquence de 15 GHz en adéquation avec la gamme calculée. Celui du milieu correspond à la ligne centrale Stokes et les deux autres aux oscillations dans le puit de potentiel longitudinal. Ces valeurs sont corroborées avec l'interpolation de trois gaussiennes sur le spectre.



Figure 9-8 : Mesure du spectre optique avec un OSA.

La deuxième méthode consiste à diffracter le FS. L'expérience réalisée est illustrée sur la figure 9-9 (a). Le faisceau est diffracté par un réseau de diffraction avec un espacement inter ligne de 833 nm. Le profil d'intensité est ensuite reconstruit à 11 m

BY-NC-ND

de ce réseau grâce à un photo-détecteur placé sur un moteur linéaire afin de balayer le faisceau à vitesse constante. Le profil reconstruit est clairement structuré de trois pics espacés d'1 à 1,5 mm l'un de l'autre correspondant dans cette configuration à des fréquences entre 11 et 16 GHz, similaire aux résultats obtenus via la méthode décrite précédemment. Le spectre obtenu est présenté par la figure 9-9 (b).



Figure 9-9 : (a) Schéma expérimental. (b) Spectre mesuré en balayant le photo détecteur sur l'axe de projection des bandes latérales.

L'asymétrie semble montrer une distribution thermique des molécules. Un dispositif de mesure avec une meilleure résolution est nécessaire pour investiguer cet aspect.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

CC BY-NC-ND

6. Conclusion

En conclusion de ce chapitre, des largeurs de bande aussi basses que 14,8 kHz ont été mesurées indiquant un rétrécissement Lamb-Dicke et donc un piégeage des molécules d'H₂. La dépendance de cette dernière à la pression et la puissance du laser de pompe est également déterminée pour 20 m de fibre BIP HCPCF. Avec ces mesures sur une faible gamme de fréquence, les oscillations provenant du piégeage des molécules dans le sens transverse est également obtenu entre 200 et 300 kHz. Sur une gamme d'une centaine de MHz les oscillations Rabi sont mesurées à 9,5 MHz avec leurs harmoniques émanant d'un mélange à quatre ondes. Ces mesures sont en excellentes adéquation avec le modèle théorique.

La signature spectrale restant à mesurer pour démontrer la profondeur des puits de potentiel dans le sens longitudinal de la fibre est celle des oscillations longitudinales. Elles ont été mesurées lors de cette thèse à des fréquences comprises entre 10 et 15 GHz par le biais de deux méthodes. Ces mesures ouvrent la voie vers un possible refroidissement moléculaire comme nous verrons dans les perspectives du prochain et dernier chapitre.



Chapitre 10. Exacerbation du rétrécissement de la largeur de raie Stokes par optimisation de la longueur de fibre et pression du gaz.

Ce dernier chapitre rapporte l'optimisation de la largeur de raie Stokes afin de la réduire le plus fortement possible. Dans ce but, nous nous basons sur le modèle décrit précédemment et les résultats expérimentaux obtenus où l'augmentation de la longueur et la diminution de la pression sont les éléments clés. Nous finirons par les perspectives que laissent présager cette nouvelle source laser basée sur la DRS conduite en régime LD dans une HCPCF remplie d'H₂.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018



1. Introduction

Le chapitre 9 a exposé les résultats expérimentaux d'un nouveau régime d'émission Stokes. Ce régime, basé sur la DRS dans une configuration Lamb-Dicke (DRS-LD), permet à la fois la génération d'une radiation cohérente, continue, à haute puissance et une largeur de raie fortement rétrécie par effet Dicke. Dans ce cadre, la source Stokes ainsi développée montre une puissance optique allant jusqu'à ~50 W et des conversions quantiques nettement au-dessus de 80%. De même, cette source Stokes offre une largeur de raie aussi basse que 14 kHz. Cette gamme de puissance optique et de largeur de raie remplit largement le prérequis concernant les deux lasers pompes pour générer le peigne Raman en continu (figure 7-8).

Par ailleurs, notre source à base de DRS-LD s'est reposée sur un modèle théorique qui ne traite pas de la dynamique de relaxation des molécules piégées, nécessaire pour déterminer la limite minimale de la largeur de raie de notre configuration DRS-LD. Elucider cette question reste très difficile car le système est très complexe par la nature auto-organisée du réseau optique et moléculaire, et par le peu de travaux antérieurs proches de la situation physique de notre problème. Le présent chapitre a pour but à la fois d'apporter quelques éléments expérimentaux pour de futures études fondamentales sur la dynamique des molécules nano-piégées, mais aussi de développer une source Stokes avec une largeur de raie plus fine que celles obtenues jusqu'ici.

Le chapitre commence avec un rappel des travaux sur la spectroscopie Lamb-Dicke et comment ils sont exploités pour dégager des lois d'échelle afin d'atteindre des largeurs de raie de la source Stokes à base de DRS-DL affinée. Ensuite, nous présentons nos mesures de largeur de raie avec une fibre creuse dont la longueur et la pression du gaz ont été dimensionnées pour un tel objectif.

2. Rétrécissement Lamb-Dicke

Le régime Lamb-Dicke en spectroscopie concerne la configuration d'interaction entre une particule (ex. atome ou molécule) et un champ électromagnétique lorsque la particule est confinée spatialement a une étendue plus petite que la longueur d'onde du champ électromagnétique. La signature spectrale dans ce régime dépend fortement de ce qu'est appelé le paramètre de Dicke donné par l'expression $\eta = k\delta x$. Ici *k* est l'amplitude du vecteur d'onde du champ et δx est l'étendue spatiale de la particule. Aussi, dans le cas où la particule est piégée par un puit de potentiel, le paramètre Dicke peut s'exprimer en fonction du ratio entre le fréquence de recul, v_{Recul} qui représente l'ultime source de changement d'énergie cinétique, et la fréquence fondamentale d'oscillation de la particule dans le puit, souvent approximée à celle d'un oscillateur harmonique, v_{trans} . L'expression dans ce cas est donnée par $\eta = \sqrt{v_{Recul}/v_{trans}}$.

D'après les travaux antérieurs qui ont traité quantitativement le rétrécissement d'une raie spectrale dans le régime LD nous citons ceux de Courtois et Ginberg dans le cadre des atomes froids piégés dans des réseaux optiques [128], et ceux de Firstenberg et al. [129] dans le cadre de la transparence électromagnétique induite dans des nano-cellules à gaz. Courtois et Ginberg ont rapporté que le facteur de rétrécissement d'une raie d'absorption d'un atome confiné dans un puit de potentiel est rétréci par un facteur de l'ordre de $\sqrt{2\pi v_{recul}/\delta(\hbar^{-1}U_{tot})}$, et qui n'est autre que le paramètre η . Cependant ces travaux ne donnent pas une expression de la largeur de raie. Firstenberg et ses collègues ont mis en évidence le rôle de la configuration de l'interaction dans l'expression d'une raie d'absorption dans le régime LD. Ils ont en particulier montré que dans le cas d'une transition à deux photons comme celle étudiée, à savoir une transition à trois niveaux en configuration Λ , le vecteur d'onde (et donc la longueur d'onde) intervenant dans le paramètre de Dicke, ne correspond plus à celui d'un laser liant une transition mais à une longueur d'onde effective donnée par $\lambda_{EIT} = 2\pi/|\vec{k}_1 - \vec{k}_2|$. Ici, \vec{k}_1 et \vec{k}_2 sont les vecteurs d'ondes des deux lasers intervenant dans la transition. Aussi, les auteurs ont donné l'expression du spectre de l'absorption dans ce régime, reproduite ci-dessous :

$$S_{Dicke}(\omega) = \frac{\Gamma + \eta \Gamma_D}{\Delta^2 + (\Gamma + \eta \Gamma_D)^2}$$
Eq. 10-1

Le spectre montre alors une forme Lorentzienne dont la largeur à mi-hauteur est $v_{FWHM} = (\Gamma + \eta \Gamma_D) \pi^{-1}$. Ici, Γ_D , Γ , Δ sont respectivement la largeur Doppler à mi-hauteur, la largeur naturelle de l'état excité et le décalage à deux photons des lasers de la transition à trois niveaux. A noter, que la paramètre de Dicke est, suivant ce qui

a été mentionné ci-dessus, donné comme suit $\eta = |\vec{k}_1 - \vec{k}_2| \delta x$. En conclusion, la largeur de raie prédite est donc donnée par la largeur naturelle de la transition élargie par $\eta \Gamma_D$.

Dans le cas de nos molécules actives du DRS-DL, nous avons vu que celles-ci sont piégées dans un puit de potentiel de profondeur de ~56 THz suivant la direction *z* (direction de la propagation dans la fibre) et de 200 MHz suivant la direction radiale. Approximons nos puits de potentiel à ceux d'un oscillateur harmonique, nous trouvons les fréquences fondamentales translationnelles suivantes : $v_{translong} \approx 5 - 20 GHz$ suivant les conditions expérimentales pour le piège le long de *z*, et $v_{trans} \approx 200 MHz$ (figure 10-1). Par conséquent le paramètre de Dicke est de l'ordre de $\eta_z \sim 10^{-4}$ pour les pièges longitudinaux et de $\eta_r \sim 10^{-3}$ pour les pièges transversaux.



Figure 10-1 : Schéma illustratif des puits de potentiel dans la direction de propagation de la fibre (z) et dans la direction radiale de la fibre.

Alors que la valeur de η_z est qualitativement consistante avec nos résultats précédents qui montrent un ratio entre la largeur de raie mesurée et celui du Doppler de 10⁻⁴ cette concordance soulève deux questions. La première concerne l'effet du piège transverse, et dont le paramètre de Dicke est 10 fois plus fort que celui associé au confinement longitudinal. La deuxième question relève de l'expression exacte de Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018 244

BY-NC-ND

la largeur de raie. La première question requière un modèle numérique 3D résolvant l'équation cinétique quantique [130], ce qui est largement en dehors du périmètre de ces travaux de thèse. Cependant, étant donné la configuration fibrée de la DRS, nous pouvons raisonnablement déduire que les molécules qui contribuent le plus au signal Stokes transmis par la fibre sont celles ayant une vitesse transverse minimale. Ceci est corroboré par la puissance des bandes latérales due aux oscillations longitudinales qui est beaucoup plus élevée que celle due aux oscillations transverses (voir chapitre 9). Aussi, concernant la question de l'expression de la largeur de raie, nous pouvons nous inspirer des travaux de Firstenberg *et al.* pour écrire les équations suivantes :

$$\nu_{FWHM} = (\Gamma_{12} + \eta \Gamma_D) \pi^{-1}$$
 Eq. 10-2

$$\langle \hbar^{-1}U_{l,} \rangle \sim \frac{s_R \cos(\beta_S z)^2}{[1 + 2s_R \cos(\beta_S z)^2]} \omega_R$$
 Eq. 10-3

$$s_R \equiv \Omega_{12}^{(0)} / \Omega_{12}^{(sat)}$$
 Eq. 10-4

La figure 10-2 montre le profil longitudinal du potentiel pour différents paramètres de saturation s_R (courbe bleue pour $s_R = 0,1$, courbe orange pour $s_R = 1$, courbe verte pour $s_R = 10$, et courbe rouge pour $s_R = 100$). Pour des paramètres de saturation faible, le potentiel s'approche de ceux des réseaux optiques conventionnels pour piéger des atomes froids par effet Stark, comme le montre l'expression de $(\hbar^{-1}U_L)\sim(s_R cos(\beta_S z)^2)\omega_R$. Un exemple du profil du potentiel dans ce régime est illustré par la courbe bleue qui correspond à $s_R = 0,1$. Aussi, la figure montre clairement que la profondeur du potentiel croit et sa largeur δz rétrécit avec la croissance de s_R .

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018



Figure 10-2 : Profil longitudinal du potentiel en fonction des différents niveaux de saturation.

Par conséquent, augmenter le paramètre de Dicke revient à augmenter s_R . Comme ce dernier est proportionnel à $E_S/\sqrt{\gamma_{12}\Gamma_{12}}$, exacerber le régime LD revient à augmenter la puissance du Stokes et à réduire la pression du gaz. A cet effet, il suffit d'ajouter de la longueur de fibre pour baisser le seuil de génération du Stokes. Aussi, augmenter la longueur de la fibre nous permet de réduire la pression du gaz sans pour autant augmenter le seuil de pompe pour la DRS.

Ainsi dans ce chapitre, la largeur de bande avec une plus grande longueur de fibre et de plus faibles pressions a été investiguée.

3. Dispositif et résultats expérimentaux

a) Montage optique

Le montage optique est quasiment identique à celui utilisé dans le chapitre 9. La différence majeure concerne la longueur de la BIP HCPCF utilisée. A la place des vingt mètres nous utilisons trente mètres. L'autre différence est la longueur de fibre du bras de délai du système self-hétérodyne. En effet, la longueur de la fibre nécessaire est déterminée par $\Delta v_{WPNL} = c/(nL_{fib})$. Cette valeur est de 15 km pour une largeur de bande 14 kHz. Nous avons donc échangé les 6 km de SMF par 20 km. Il est important de noter que cette longueur ne s'applique que dans le cas d'une phase

blanche, où le phase jitter est relié à la largeur de bande Lorentzienne et le temps de délai entre les deux bras non équilibrés de l'interféromètre. Il n'est pas donc forcément pertinent d'allonger ce bras dans notre cas vu que nous pouvons nous attendre à ce que la structure de la phase de l'émission parte de celle de l'émission spontanée due au régime LD. Afin de s'en assurer la largeur de bande a été mesurée sur deux gammes de fréquence différentes avec un bras composé d'un retardement de 1 m, 6 et 20 km de fibre monomode. Sur la figure 10-3(a), nous constatons un profil spectral identique pour les trois délais sur une gamme de 3MHZ. La figure 10-3(b) montre des largeurs de bande comprises entre 2 et 3 kHz avec une différence relative de moins de 20%. Ces figures démontrent la faible répercussion de longueur de fibre monomode sur nos résultats.

(a)



Figure 10-3 : (a) Comparaison de la trace des spectres RF sur une gamme de 3 MHz dans le cas où la longueur de la SMF du bras de retard est égale à 0 km (courbe rouge) à 6 km (courbe bleue) et 20 km (courbe noire). (b) Comparaison de la trace des spectres RF sur une gamme 6 kHz dans le cas où la longueur de la SMF du bras de retard est égale à 0 km (courbe rouge) à 6 km (courbe (bleue) et 20 km (courbe noire).

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

CC) BY-NC-ND

247

b) Résultats expérimentaux

Un jeu de pressions a été utilisé avec différentes puissances de couplage afin d'obtenir une cartographie des largeurs de bande en fonction du produit de la puissance d'entrée et la pression. Les pressions d'H₂ remplissant la fibre varient de 5 à 50 bars. Les puissances couplées sont de 9 à 13 W. Ces valeurs permettent de sonder les valeurs basses du produit puissance-pression.

La cartographie de cette étude est résumée sur la figure 10-4.



Figure 10-4 : Largeur de bande en fonction du produit de la puissance en entrée et la pression pour le FS (points bleus) et le BS (points rouges) ainsi que la ligne représentant la fréquence sub-recul.

Les largeurs de bandes obtenues sont en dessous de 5,5 kHz pour des produits de puissance-pression en dessous de 650 W.bar. Pour rappel, l'élargissement dû au recul est de 74 kHz, nous sommes donc à un ordre de grandeur de moins que cette fréquence.

Comme pour l'expérience rapportée dans le chapitre précédent, la largeur de bande s'élargit lorsque le produit puissance-pression est augmenté. Cependant dans cette gamme, cet élargissement présente une variation plus faible indiquant un rétrécissement LD plus fort dû à une réduction de collisions entre les molécules d'H₂ et, ou une zone saturée plus étendue.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018



La figure 10-5 présente les mêmes données mais met en évidence cette fois-ci l'effet de la pression seule. L'évolution de la largeur de raie montre une évolution linéaire qui est en accord avec $v_{FWHM} = (\Gamma_{12} + \eta \Gamma_D) \pi^{-1}$ qui montre que dans un régime LD fort η est fortement réduit pour que $v_{FWHM} \approx (\Gamma_{12}) \pi^{-1} \propto p_g$. Une interpolation linaire des largeurs de raie mesurées pour des pressions entre 5 et 50 bars montre un bon accord. Un taux d'élargissement autour de 0,1-0,05 kHz/bar est trouvé. Si nous comparons cette valeur à la valeur de la relaxation de population Γ_{12} de la transition rotationnelle de H₂ rapportée dans [124], notre mesure donne une relaxation de population 10 fois plus faible. Etant donnée la haute résolution de notre dispositif, il peut être envisagé comme moyen de mesure métrologique de la relaxation de population de molécules actives Raman.



Figure 10-5 : Evolution de la largeur de bande en fonction de la pression pour une puissance d'entrée de 10 W.

La largeur de bande la plus étroite est trouvée à 2,7 kHz pour $P_{in} \times Pression$ de 50 W.bar. Le spectre est montré sur un balayage de 6 MHz où nous pouvons observer les mêmes signatures spectrales que précédemment. La figure 10-6(b) est un zoom sur une plage fréquentielle de 8 kHz afin de mesurer la largeur de bande.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018



Figure 10-6 : (a) Largeur de bande mesurée sur 3 MHz. (b) Largeur de bande mesurée sur une plage de 8 kHz.

Ces valeurs représentent une optimisation de la largeur de bande d'un facteur 5 comparé aux valeurs de largeur de bande rapportées dans le chapitre précédent. Cette expérience permet de corroborer le modèle dépeint, cependant de nombreuses questions restent en suspens. Les perspectives et les expériences liées à ces dernières sont décrites dans la prochaine section.

4. Perspectives

Ainsi, nous avons réussi à obtenir une source laser Raman idéale dans le but de générer un peigne Raman en CW dans une HCPCF avec une puissance Stokes pouvant atteindre 55 W et une largeur de bande pouvant être aussi basse que 2,7 kHz. Les résultats obtenus dépassent le cadre du synthétiseur d'onde en vue de comprendre comment cette nouvelle source atypique fonctionne. Le réseau de gaz formé par la DRS conduit en régime LD propose une nouvelle dynamique et ouvre de nombreuses perspectives à investiguer. Un réseau de gaz a déjà été rapporté où des forces électro-strictives induites par le croisement d'impulsions optiques [131]. Cependant ces réseaux diffèrent de par leur profondeur, leur mécanisme et implications par rapport à la nano-structuration du gaz par Raman. Ce dernier représente le premier réseau de gaz formé par une saturation spatiale Raman ainsi que la première fibre avec un cœur comportant une telle structure. Cette source Raman est cohérente émettant une largeur de bande plus étroite que celle de recul. A

terme, elle pourrait devenir une nouvelle espèce de fibre optique et de lasers fibrés mais également une solution liant le champ des fibres photoniques à la physique quantique moléculaire. De nombreuses questions restent cependant à élucider.

a) Structure physique du réseau nano structuré

Des investigations seront nécessaires pour caractériser la structure physique du réseau, la dynamique du piégeage des molécules et la diffusion de la lumière. Dans ce but, des mesures plus précises des bandes latérales longitudinales doivent être menées et la structure physique du réseau de piégeage déterminée. Une autre information à glaner est le décalage Stark.

i. Mesure des fréquences longitudinales

Comme dit précédemment la difficulté est la gamme de fréquence à laquelle les fréquences longitudinales sont situées. En effet, des fréquences de 10 GHz ne sont pas atteignables avec notre système de détection actuel. La meilleure approche serait par la technique de self hétérodyne, la difficulté étant de trouver un décaleur de fréquence et un analyseur de spectre avec la bonne gamme fréquentielle. Cependant, le procédé de diffracter le faisceau comme utilisé dans cette thèse peut s'avérer suffisant pour caractériser la nature de la lumière diffusée. Les résultats obtenus n'étant pas suffisamment résolus il est nécessaire de réitérer l'expérience.

ii. Caractérisation de la structure physique du réseau de piégeage

La caractérisation de la structure physique du réseau de piégeage implique de localiser le réseau dans la fibre, l'espacement entre les pièges, la longueur du réseau et son enveloppe. Expérimentalement deux expériences pour ces mesures peuvent être effectuées. La première consiste à diffracter un laser sonde sur l'axe normal de la fibre à la section où se situe le réseau. La largeur et l'espacement du piège seront déduits de la forme de la diffraction. La localisation de la nano structuration sera déterminée par la diffusion sur le côté le plus intense. Un laser continu avec une courte longueur d'onde est préférable afin d'obtenir la meilleure résolution spatiale. Afin d'éviter la diffraction par la gaine micro-structurée une fibre IC HCPCF sera utilisée du fait que ses ponts sont plus épais et plus espacés.

La deuxième expérience est basée sur l'imagerie haute résolution. La section de la fibre contenant le réseau auto-assemblé est placée devant un objectif à grande magnification et une grande ouverture numérique d'un microscope confocal à balayage laser.

iii. Investigation de la mesure du décalage Stark

Dans le but d'avoir une meilleure compréhension de la dynamique de la nanostructure auto assemblée, une mesure à haute résolution de la fréquence absolue du pic central Stokes dans le spectre diffusé RF et sa dépendance sur la puissance de la pompe, la polarisation, la longueur de fibre et la pression est nécessaire. Le montage expérimental comportera deux fibres identiques où la génération de cette dynamique sera effectuée avec la même pompe. Le premier aura le rôle de référence alors que les paramètres de contrôle du second seront variés. La fréquence de battement des FS et BS des deux nanostructures auto-assemblées sera mesurée permettant de déduire le décalage Stark. En effet, il est bien établi que même un laser non résonnant induit un décalage Stark durant la DRS dans les lignes de diffusion. En conséquence, la mesure du décalage Stark fournira l'intensité de pompe exacte à l'intérieur du réseau auto-assemblé et la densité locale de molécules.

b) Appareils photoniques basés sur le réseau auto-assemblé

Une des perspectives est de développer des appareils photoniques basés sur ce phénomène physique. Pour cela nous pouvons concevoir un micro miroir et une micro cavité sous forme gazeuse à l'intérieur de la fibre. En effet, la présence d'une onde stationnaire implique de forts potentiels périodiques formant un réseau de densité de molécules. La conséquence est une variation de la densité moléculaire d'un facteur aussi grand que quatre. La périodicité est d'une demi-longueur d'onde du Stokes avec environ ~ 10^5 périodes.

i. Micro miroir

Une telle structure agit comme un miroir à multicouche pouvant réfléchir toute lumière remplissant la condition de résonnance de Bragg. Deux expériences peuvent permettre de démontrer de telles propriétés.


La première consiste à utiliser une fibre IC HCPCF remplie de deutérium avec une transition vibrationnelle Raman de 90 THz. L'avantage ici est un décalage fréquentiel Raman plus important impliquant des puits de potentiel plus profonds. La limite est la génération de transition Raman d'ordre plus élevé dans une fibre avec une telle largeur de bande.

La deuxième expérience utiliserait une fibre BIP HCPCF. A l'inverse de la fibre IC, sa faible fenêtre spectrale peut s'avérer être un obstacle pour caractériser le miroir par une source spectralement plus large.

Dans les deux cas, une seconde pompe serait incorporée afin d'améliorer l'accordabilité et les possibilités de contrôle à la longueur d'onde du Stokes généré. Grâce à ces lasers graines, le Stokes sera formé plus rapidement et la localisation du miroir à l'intérieur de la fibre en changeant la puissance, la polarisation et la composition modale de la radiation de la graine.

ii. Micro cavité

La formation d'un miroir à haute réflectivité proche de l'entrée de la fibre a fait germer l'idée d'une cavité induite optiquement. La condition est la génération d'un second miroir à l'autre bout de la fibre grâce à un second laser de pompe. Le but est de créer ces deux miroirs à une localisation variable. Avec une telle cavité nous nous attendons à obtenir une cavité semblable à une cavité électrodynamique quantique. En effet, la fréquence Rabi est plus large que le taux de damping et le taux d'émission spontané. La cavité sera caractérisée grâce à sa finesse.

c) Refroidissement moléculaire de la nanostructure autoassemblée et sa radiation

Pour clôturer, la perspective la plus attrayante scientifiquement est d'utiliser ce processus pour refroidir les molécules avec une possible signature de superradiance telle le décalage fréquentiel Lamb collectif. En effet, les molécules sont des candidates idéales pour la physique quantique, encore un domaine émergent avec le piégeage et le refroidissement des molécules comme objectif. Ce refroidissement reste complexe dû à la structure énergétique complexe des molécules. Jusqu'à présent les techniques utilisées pour le piégeage et refroidissement des molécules sont basées sur soit du Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

C BY-NC-ND

refroidissement laser ou des techniques alternatives comme le décélérateur Stark, le refroidissement par gaz tampon ou encore le filtrage phase espace. Elles n'atteignent pas la résolution spectrale ou le contrôle de mouvement typique au refroidissement atomique.

La démonstration du potentiel de cette technique Raman de piéger les molécules et de les localiser dans des régions d'une dizaine de nanomètres représente une nouvelle voie prometteuse pour le refroidissement moléculaire. Le refroidissement par les bandes latérales résolues est possible lorsqu'un état lié harmonique exhibe une fréquence de piégeage bien plus haute que le taux de relaxation [132]. Nos bandes latérales sont situées pour les transversales à 0,3 MHz et les longitudinales entre 5 et 30 GHz. Si nous assumons le taux de relaxation fixé par la fréquence de recul (~70 kHz) les conditions sont remplies. Dans le but d'un refroidissement moléculaire plus effectif, il est nécessaire d'introduire un cycle de transition où les molécules perdent de l'énergie. En effet, les techniques utilisées pour refroidir les ions ou les atomes neutres ne sont pas applicable ici vu que nous utilisons une transition dipolaire. L'idée est donc de se servir de la transition entre deux états de mouvement à travers deux états électronique ou Raman différents. Pour cela une pompe décalée dans le rouge de la fréquence de piégeage, *v*_{long} doit être ajoutée afin d'obtenir un cycle de refroidissement. La molécule perd une énergie quantique à chaque cycle permettant d'avoir la quasi-totalité de la population dans l'état fondamental.

De plus, le confinement des molécules dans des régions nanométriques suggère que la diffusion Raman exhibe un comportement coopératif. D'autres observations nous font penser à la présence de ce phénomène telle qu'une conversion vers le Stokes proche de la limite quantique et des oscillations lors de la formation de la radiation Stokes. Ces caractéristiques sont consistantes avec le travail de Dicke démontrant que N atomes symétriques dans un volume sub-longueur d'onde ont des propriétés spectroscopiques qui différent de manière significative par rapport à un atome isolé ou des atomes non corrélés. Nous pouvons les lister comme suit :

L'intensité de la radiation du champ des atomes émis est proportionnelle à N²

- Une accélération de la relaxation spontanée par un facteur pouvant être aussi important que N (nommé superradiance)
- Le décalage fréquentiel exacerbé (appelé décalage Lamb collectif)

L'expérience pour arriver à cette fin est d'exciter une fibre remplie d'H₂ avec une pompe et une graine Stokes pour générer le réseau nanostructuré. Dans ce schéma la pompe est modulée en intensité afin de sonder la relaxation des molécules diffusées lorsque la pompe est éteinte. Le décalage Lamb collectif peut également être mesuré par ce procédé. En effet, une partie du faisceau utilisée comme graine pour la génération de la nanostructure peut être considérée comme un oscillateur local. Par un battement de fréquence entre le Stokes de la fibre et l'oscillateur local nous nous attendons à obtenir une trace avec deux impulsions. Le premier serait Stokes issu du Stokes de la DRS conduit en régime Lamb Dicke lorsque la pompe est allumée. Le deuxième provient du Raman spontané. Sous les conditions d'effet collectif l'enveloppe du signal montrera la relaxation de la superradiance et les oscillateur local Stokes.

5. Conclusion

Ainsi la première brique pour réaliser un synthétiseur d'onde est atteinte. En effet, grâce au fort gain fourni par l'H₂ confiné dans une BIP HCPCF nous savons qu'il est possible d'obtenir un laser Stokes en CW avec de larges puissances. De plus, au lieu d'une largeur de bande élargie, cette dernière est rétrécie par une DRS conduite en régime Lamb-Dicke et réglable en jouant sur la pression et la longueur de fibre. Ici, nous avons vu qu'en augmentant la longueur de la fibre et en diminuant la pression nous obtenons des largeurs de bandes aussi étroites que 2,7 kHz. La cartographie montre de faibles variations de la largeur de bande lorsque le produit puissance pression augmente nous informant d'un régime LD plus fort que dans la configuration du chapitre précédent par une atténuation des collisions et une augmentation de la saturation Raman.

Plus de visibilité sur cette nouvelle dynamique passerait par le développement d'une plateforme technologique regroupant les différentes investigations citées dans les perspectives :

- Caractérisation physique du réseau nano structuré.
- Possibilité de faire des appareils photoniques.
- Refroidissement moléculaire.

La plus élégante restant la possibilité de faire du refroidissement moléculaire avec un montage optique très simple.



Bibliographie

- [1] S. John, "Strong localization of photons in certain disordered dielectric superlattices," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 58, no. 23, pp. 2486–2489, 1987.
- [2] E. Yablonovitch, "Inhibited spontaneous emission in solid-state physics and electronics," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 58, no. 20, pp. 2059–2062, 1987.
- [3] J. M. Dudley, G. Genty, and S. Coen, "Supercontinuum generation in photonic crystal fiber," *Rev. Mod. Phys.*, vol. 78, no. 4, pp. 1135–1184, 2006.
- [4] N. a. Mortensen, M. D. Nielsen, J. R. Folkenberg, a. Petersson, and H. R. Simonsen, "Improved large-mode area endlessly single-mode photonic crystal fibers," no. 2, p. 3, 2002.
- [5] T. A. Birks, J. C. Knight, and P. S. J. Russell, "Endlessly single-mode photonic crystal fiber," *Opt. Lett.*, vol. 22, no. 13, p. 961, Jul. 1997.
- [6] P. Russell, "Photonic Crystal Fibers," *Science* (80-.)., vol. 299, no. 5605, pp. 358–362, 2003.
- [7] F. Benabid and P. J. Roberts, "Linear and nonlinear optical properties of hollow core photonic crystal fiber," *J. Mod. Opt.*, vol. 58, no. 2, pp. 87–124, 2011.
- [8] F. Benabid, J. C. Knight, G. Antonopoulos, and P. S. J. Russell, "Stimulated Raman scattering in hydrogen-filled hollow-core photonic crystal fiber," *Science* (80-.)., vol. 298, no. 5592, pp. 399–402, 2002.
- [9] F. Couny, F. Benabid, and P. S. Light, "Subwatt Threshold cw Raman Fiber-Gas Laser Based on <math display="inline"> <msub> <mi mathvariant="normal">H</mi> <mn>2</mn> </msub> </math> -Filled Hollow-Core Photonic Crystal Fiber," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 99, no. 14, p. 143903, 2007.
- [10] F. Couny, F. Benabid, P. J. Roberts, P. S. Light, and M. G. Raymer, "Generation and photonic guidance of multi-octave optical-frequency combs," *Science (80-.).*, vol. 318, no. 5853, pp. 1118–1121, 2007.
- [11] F. Benabid, G. Antonopoulos, J. C. Knight, and P. S. J. Russell, "Stokes Amplification Regimes in Quasi-cw Pumped Hydrogen-Filled Hollow-Core Photonic Crystal Fiber," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 95, no. 21, 2005.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018



- [12] F. Benabid, P. J. Roberts, F. Couny, and P. S. Light, "Light and gas confinement in hollow-core photonic crystal fibre based photonic microcells," *J. Eur. Opt. Soc.*, vol. 4, no. c, pp. 1–9, 2009.
- [13] F. Benabid, P. Light, F. Couny, and P. Russell, "Electromagnetically-induced transparency grid in acetylene-filled hollow-core PCF.," *Opt. Express*, vol. 13, no. 15, pp. 5694–5703, 2005.
- [14] P. S. Light, F. Benabid, F. Couny, M. Maric, and A. N. Luiten, "Electromagnetically induced transparency in Rb-filled coated hollow-core photonic crystal fiber," *Opt. Lett.*, vol. 32, no. 10, p. 1323, 2007.
- [15] B. Debord *et al.*, "Multi-meter fiber-delivery and pulse self-compression of milli-Joule femtosecond laser and fiber-aided laser-micromachining," *Opt. Express*, vol. 22, no. 9, p. 10735, 2014.
- [16] T. Balciunas *et al.*, "A strong-field driver in the single-cycle regime based on self-compression in a kagome fibre," *Nat. Commun.*, vol. 6, no. May 2014, pp. 1– 7, 2015.
- [17] O. H. Heckl *et al.*, "High harmonic generation in a gas-filled hollow-core photonic crystal fiber," *Appl. Phys. B*, vol. 97, no. 2, pp. 369–373, 2009.
- [18] B. Debord *et al.*, "Generation and confinement of microwave gas-plasma in photonic dielectric microstructure.," *Opt. Express*, vol. 21, no. 21, pp. 25509–16, 2013.
- [19] C. K. Kao, "Nobel Lecture: Sand from centuries past: Send future voices fast," *Rev. Mod. Phys.*, vol. 82, no. 3, pp. 2299–2303, 2010.
- [20] S. Shibata, M. Horiguchi, K. Jinguji, S. Mitachi, T. Kanamori, and T. Manabe, "Prediction of loss minima in infra-red optical fibres," *Electron. Lett.*, vol. 17, no. 21, p. 775, 1981.
- [21] Y. Tamura *et al.*, "Lowest-Ever 0.1419-dB/km Loss Optical Fiber," in *Optical Fiber Communication Conference Postdeadline Papers*, 2017, p. Th5D.1.
- [22] P. S. J. Russell, "Optics of Floquet-Bloch waves in dielectric gratings," *Appl. Phys. B Photophysics Laser Chem.*, vol. 39, no. 4, pp. 231–246, 1986.
- [23] F. Couny, F. Benabid, P. J. Roberts, M. T. Burnett, and S. a Maier,
 "Identification of Bloch-modes in hollow-core photonic crystal fiber cladding.," *Opt. Express*, vol. 15, no. 2, pp. 325–338, 2007.



- [24] J. N. and E.Wigner, "über merkwürdige diskrete Eigenwerte," *Phys.Z.*, vol. 30, pp. 465–467, 1929.
- [25] J. D. J. and M. S. C.W.Hsu, B.Zhen, A.D.Stone, "Bound states in the continuum Accessed Bound States in the Continuum," vol. 11, no. 4, pp. 0–44, 2018.
- [26] F. Capasso, C. Sirtori, J. Faist, D. L. Sivco, S.-N. G. Chu, and A. Y. Cho,
 "Observation of an electronic bound state above a potential well," *Nature*, vol. 358, p. 565, Aug. 1992.
- [27] L. Vincetti and V. Setti, "Extra loss due to Fano resonances in inhibited coupling fibers based on a lattice of tubes.," *Opt. Express*, vol. 20, no. 13, pp. 14350–61, 2012.
- [28] F. Couny, P. J. Roberts, T. a Birks, and F. Benabid, "Crystal Fiber," vol. 16, no. 25, pp. 2282–2284, 2008.
- [29] Y. Y. Wang, N. V. Wheeler, F. Couny, P. J. Roberts, and F. Benabid, "Low loss broadband transmission in hypocycloid-core Kagome hollow-core photonic crystal fiber," *Opt. Lett.*, vol. 36, no. 5, p. 669, 2011.
- [30] B. Debord *et al.*, "Ultralow transmission loss in inhibited-coupling guiding hollow fibers," *Optica*, vol. 4, no. 2, p. 209, 2017.
- [31] L. Vincetti and V. Setti, "Waveguiding mechanism in tube lattice fibers," *Opt. Express*, vol. 18, no. 22, p. 23133, 2010.
- [32] A. D. Pryamikov, A. S. Biriukov, A. F. Kosolapov, V. G. Plotnichenko, S. L. Semjonov, and E. M. Dianov, "Demonstration of a waveguide regime for a silica hollow--core microstructured optical fiber with a negative curvature of the core boundary in the spectral region > 3.5 μm.," *Opt. Express*, vol. 19, no. 2, pp. 1441–8, 2011.
- [33] A. N. Kolyadin, A. F. Kosolapov, A. D. Pryamikov, A. S. Biriukov, V. G. Plotnichenko, and E. M. Dianov, "Light transmission in negative curvature hollow core fiber in extremely high material loss region," *Opt. Express*, vol. 21, no. 8, p. 9514, 2013.
- [34] Z. Wang, W. Belardi, F. Yu, W. J. Wadsworth, and J. C. Knight, "Efficient diode-pumped mid-infrared emission from acetylene-filled hollow-core fiber," *Opt. Express*, vol. 22, no. 18, p. 21872, 2014.
- [35] M. Michieletto, J. K. Lyngsø, C. Jakobsen, J. Lægsgaard, O. Bang, and T. T. Alkeskjold, "Hollow-core fibers for high power pulse delivery," *Opt. Express*,



vol. 24, no. 7, p. 7103, 2016.

- [36] E. A. J. Marcatili and R. A. Schmeltzer, "Hollow Metallic and Dielectric Waveguides for Long Distance Optical Transmission and Lasers," *Bell Syst. Tech. J.*, vol. 43, no. 4, pp. 1783–1809, 1964.
- [37] B. Debord *et al.*, "Hypocycloid-shaped hollow-core photonic crystal fiber Part I: Arc curvature effect on confinement loss," *Opt. Express*, vol. 21, no. 23, p. 28597, 2013.
- [38] T. Miya, Y. Terunuma, T. Hosaka, and T. Miyashita, "Ultimate low-loss singlemode fibre at 1.55 μm," *Electron. Lett.*, vol. 15, no. 4, p. 106, 1979.
- [39] F. Benabid, G. Bouwmans, J. C. Knight, P. S. J. Russell, and F. Couny, "Ultrahigh efficiency laser wavelength conversion in a gas-filled hollow core photonic crystal fiber by pure stimulated rotational Raman scattering in molecular hydrogen," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 93, no. 12, pp. 1–4, 2004.
- [40] Y. Y. Wang, C. Wu, F. Couny, M. G. Raymer, and F. Benabid, "Quantumfluctuation-initiated coherence in multioctave Raman optical frequency combs," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 105, no. 12, 2010.
- [41] Y. Wang, "Quantum-Fluctuation-Initiated Coherent Raman Comb in Hydrogen-Filled Hollow-Core Photonic Crystal Fibre University of Bath," 2011.
- [42] A. Benoît *et al.*, "Over-five octaves wide Raman combs in high-power picosecond-laser pumped H_2-filled inhibited coupling Kagome fiber," *Opt. Express*, vol. 23, no. 11, p. 14002, 2015.
- [43] "1985-Raymer-theorycoherence.pdf.".
- [44] M. A. M. Aurel *et al.*, "Optimized IC Kagome fibers at Yb-Nd : Yag (8.5 dB / km) and Ti : Sa (30 dB / km) ranges," vol. 43, no. 6, 2018.
- [45] Y. Y. Wang, N. V. Wheeler, F. Couny, P. J. Roberts, and F. Benabid, "Low loss broadband transmission in hypocycloid-core Kagome hollow-core photonic crystal fiber," *Opt. Lett.*, vol. 36, no. 5, p. 669, Mar. 2011.
- [46] M. Alharbi *et al.*, "Hypocycloid-shaped hollow-core photonic crystal fiber Part II: Cladding effect on confinement and bend loss," *Opt. Express*, vol. 21, no. 23, p. 28609, 2013.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018



- [47] S. Selleri, L. Vincetti, A. Cucinotta, and M. Zoboli, "Complex FEM modal solver of optical waveguides with PML boundary conditions," *Opt. Quantum Electron.*, vol. 33, no. 4–5, pp. 359–371, 2001.
- [48] K. Saito, M. Yamaguchi, H. Kakiuchida, A. J. Ikushima, K. Ohsono, and Y. Kurosawa, "Limit of the Rayleigh scattering loss in silica fiber," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 83, no. 25, pp. 5175–5177, 2003.
- [49] J. W. Nicholson, A. D. Yablon, S. Ramachandran, and S. Ghalmi, "Spatially and spectrally resolved imaging of modal content in large-mode-area fibers," *Opt. Express*, vol. 16, no. 10, p. 7233, 2008.
- [50] B. Debord *et al.*, "7.7 dB/km Transmission loss at 750 nm inhibited-coupling guiding hollow-core photonic crystal fibers," in 2017 Conference on Lasers and Electro-Optics Europe & European Quantum Electronics Conference (CLEO/Europe-EQEC), 2017, p. 1.
- [51] F. Couny, F. Benabid, and P. S. Light, "Large-pitch kagome-structured hollow-core photonic crystal fiber," *Opt. Lett.*, vol. 31, no. 24, p. 3574, 2006.
- [52] F. Yu, W. J. Wadsworth, and J. C. Knight, "Low loss silica hollow core fibers for 3–4 μm spectral region," *Opt. Express*, vol. 20, no. 10, p. 11153, 2012.
- [53] S. Ghosh, A. R. Bhagwat, C. K. Renshaw, S. Goh, B. J. Kirby, and A. L. Gaeta, "Low-Light-Level Optical Interactions with Rubidium Vapor in a Photonic Bandgap Fiber," pp. 1–11, 2006.
- [54] F. Benabid, F. Couny, J. C. Knight, and T. A. Birks, "Compact, stable and ef cient all- bre gas cells using hollow-core photonic crystal bres," *Nature*, vol. 434, no. March, pp. 463–466, 2005.
- [55] J. Ye, L. Robertsson, S. Picard, L. S. Ma, and J. L. Hall, "Absolute frequency atlas of molecular I2 lines at 532 nm," *IEEE Trans. Instrum. Meas.*, vol. 48, no. 2, pp. 544–549, 1999.
- [56] Thorlabs, "https://www.thorlabs.com/newgrouppage9.cfm?objectgroup_id=1470.".
- [57] F. Emaury *et al.*, "Beam delivery and pulse compression to sub-50 fs of a modelocked thin-disk laser in a gas-filled Kagome-type HC-PCF fiber," *Opt. Express*, vol. 21, no. 4, pp. 4986–4994, 2013.
- [58] K. F. Mak, J. C. Travers, N. Y. Joly, A. Abdolvand, and P. S. J. Russell, "Two techniques for temporal pulse compression in gas-filled hollow-core kagomé

photonic crystal fiber," Opt. Lett., vol. 38, no. 18, p. 3592, 2013.

- [59] A. V. V. Nampoothiri *et al.*, "Hollow-core Optical Fiber Gas Lasers (HOFGLAS): a review [Invited]," *Opt. Mater. Express*, vol. 2, no. 7, p. 948, 2012.
- [60] B.Brichard and A.Fernandez-Fernandez, "Radiation effects in silica glass optical fibres," *Radecs short course*, pp. 95–137, 2005.
- [61] M. Chafer *et al.*, "Pulse-compression down to 50 fs of femtosecond UV laser using Inhibited-Coupling hollow-core PCF," in *Conference on Lasers and Electro-Optics*, 2018, p. JTh5A.6.
- [62] Y. Y. Wang, F. Couny, P. S. Light, B. J. Mangan, and F. Benabid, "Compact and portable multiline UV and visible Raman lasers in hydrogen-filled HC-PCF," *Opt. Lett.*, vol. 35, no. 8, pp. 1127–1129, 2010.
- [63] Y. R. Shen and N. Bloembergen, "theory of stimulated Brillouin and Raman scattering Shen Bloembergen.pdf," vol. 290, 1964.
- [64] G. Eckhardt, R. W. Hellwarth, F. J. McClung, S. E. Schwarz, D. Weiner, and E. J. Woodbury, "Stimulated Raman Scattering From Organic Liquids," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 9, no. 11, pp. 455–457, 1962.
- [65] K. Uchinokura, T. Sekine, and E. Matsuura, "Raman scattering by silicon," *Solid State Commun.*, vol. 11, no. 1, pp. 47–49, 1972.
- [66] F. M. Johnson, J. A. Duardo, and G. L. Clark, "Complex stimulated raman vibrational-rotational spectra in hydrogen," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 10, no. 5, pp. 157–160, 1967.
- [67] R. G. Dickinson, R. T. Dillon, and F. Rasetti, "Raman spectra of polyatomic gases," *Physical Review*, vol. 34, no. 4. pp. 582–589, 1929.
- [68] A. Laubereau and W. Kaiser, "Vibrational dynamics of liquids and solids investigated by picosecond light pulses," *Rev. Mod. Phys.*, vol. 50, no. 3, pp. 607–665, 1978.
- [69] R. W. Minck, E. E. Hagenlocker, and W. G. Rado, "Stimulated pure rotational raman scattering in deuterium," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 17, no. 5, pp. 229–231, 1966.
- [70] R. L. Carman, F. Shimizu, C. S. Wang, and N. Bloembergen, "Theory of stokes pulse shapes in transient stimulated Raman scattering," *Phys. Rev. A*, vol. 2, no.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018





1, pp. 60-72, 1970.

- [71] B. Stoicheff, "High Resolution Raman Spectroscopy of Gases: XI. Spectra of CS2 and CO2," *Can. J. Phys.*, vol. 36, no. 2, pp. 218–230, 1958.
- [72] M. G. Raymer, I. A. Walmsley, J. Mostowski, and B. Sobolewska, "Quantum theory of spatial and temporal coherence properties of stimulated Raman scattering," *Phys. Rev. A*, vol. 32, no. 1, pp. 332–344, Jul. 1985.
- [73] J. Cheng and X. S. Xie, "Coherent Anti-Stokes Raman Scattering Microscopy: Instrumentation, Theory, and Applications," J. Phys. Chem. B, vol. 108, no. 1, pp. 827–840, 2004.
- [74] Y. R. Shen, Principles of nonlinear optics. Wiley-Interscience.
- [75] M. G. RAYMER and J. MOSTOWSKI, "Stimulated Raman-Scattering Unified Treatment of Spontaneous Initiation and Spatial Propagation," *Phys. Rev. A*, vol. 24, no. 4, pp. 1980–1993, 1981.
- [76] I. A. Raymer, M.G. Walmsley, "The quantum coherence properties of stimulated Raman scattering," 1990.
- [77] M. D. Duncan, R. Mahon, J. Reintjes, and L. L. Tankersleyt, "Parametric Raman gain suppression in D 2 and H 2," *Opt. Lett.*, vol. 11, no. 12, pp. 803–805, 1986.
- [78] C. Wu, M. G. Raymer, Y. Y. Wang, and F. Benabid, "Quantum theory of phase correlations in optical frequency combs generated by stimulated Raman scattering," *Phys. Rev. A*, vol. 82, no. 5, p. 053834, 2010.
- [79] W. K. Bischel and M. J. Dyer, "Wavelength dependence of the absolute Raman gain coefficient for the Q (1) transition in H_2," J. Opt. Soc. Am. B, vol. 3, no. 5, p. 677, 1986.
- [80] J. L. Carlsten and R. G. Wenzel, "Transient effects and pump depletion in stimulated Raman scattering," in *SPIE*, 1983, vol. 0380, no. 2.
- [81] R. . Carlson and W. R. Fenner, "Absolute Raman Scattering Cross-Section of Molecular Hydrogen," Astrophys. J., vol. 178, pp. 551–556.
- [82] W. K. Bischel *et al.*, "Wavelength dependence of raman scattering cross sections from 200-600 nm," *AIP Conf. Proc.*, vol. 100, pp. 181–187, 1983.
- [83] F. Hanson and P. Poirier, "Stimulated Rotational Raman Conversion in H2, D2

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

BY-NC-ND

and HD," Quant. Elec., vol. 29, 1993.

- [84] S. D. and J. M. Lafferty, *Scientific foundations of vacuum technique*, 2nd editio. Wiley-Interscience, 1962.
- [85] Anonymous and R. W. Boyd, "Nonlinear Optics," J. Chem. Inf. Model., vol. 53, no. 9, pp. 1689–1699, 2013.
- [86] C. Strutynski, "Fibres tellurites pour sources supercontinuum infrarouges: gestion des profils opto-géométriques et des absorptions extrinsèques," Bourgogne Franche-Comté, 2018.
- [87] B. Debord *et al.*, "Ultra low-loss hypocycloid-core Kagome hollow-core photonic crystal fiber for green spectral-range applications.," *Opt. Lett.*, vol. 39, no. 21, pp. 6245–8, 2014.
- [88] NKT, "https://www.nktphotonics.com/.".
- [89] M. K. Mridha, D. Novoa, S. T. Bauerschmidt, A. Abdolvand, and P. St.J. Russell, "Generation of a vacuum ultraviolet to visible Raman frequency comb in H_2-filled kagomé photonic crystal fiber," *Opt. Lett.*, vol. 41, no. 12, p. 2811, 2016.
- [90] B.Bioscience, "Introduction to flow cytometry: A learning guide." .
- [91] R.G.HE.Alice L.Givan, "Flow cytometry protocols," 2011.
- [92] BIO RAD, "Flow cytometry basics guide." [Online]. Available: https://www.bio-rad-antibodies.com/introduction-to-flow-cytometry.html.
- [93] S.Biological, "What is flow cytometry. http://www.sinobiological.com/flowcytometry-fcm-facs-what-is-flow-cytometry.html.".
- [94] BD bioscience, "Intracellular flow cytometry.".
- [95] N. Panchuk-Voloshina *et al.*, "Alexa dyes, a series of new fluorescent dyes that yield exceptionally bright, photostable conjugates," *J. Histochem. Cytochem.*, vol. 47, no. 9, pp. 1179–1188, 1999.
- [96] W. G. Telford, F. V. Subach, and V. V. Verkhusha, "Supercontinuum white light lasers for flow cytometry," *Cytom. Part A*, vol. 75, no. 5, pp. 450–459, 2009.
- [97] F. Couny, "Photonic solution towards optical waveform synthesis," 2008.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018

CC BY-NC-ND



- [98] T. W. Hänsch, "Passion for Precision (Nobel Lecture)," *ChemPhysChem*, vol. 7, no. 6, pp. 1170–1187, 2006.
- [99] A. V. Sokolov and S. E. Harris, "Ultrashort pulse generation by molecular modulation," *J. Opt. B Quantum Semiclass. Opt.*, vol. 5, no. 1, pp. R1–R26, 2003.
- [100] S. E. Harris and A. V. Sokolov, "Subfemtosecond pulse generation by molecular modulation," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 81, no. 14, pp. 2894–2897, 1998.
- [101] I. P. Christov, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn, "High-harmonic generation of attosecond pulses in the 'single-cycle' regime," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 78, no. 7, pp. 1251–1254, 1997.
- [102] M. Adams, "Optical waves in crystals," *IEEE J. Quantum Electron.*, vol. 20, no. 11, pp. 1294–1294, 1984.
- [103] A. Nazarkin, G. Korn, M. Wittmann, and T. Elsaesser, "Generation of multiple phase-locked stokes and anti-stokes components in an impulsively excited raman medium," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 83, no. 13, pp. 2560–2563, 1999.
- [104] H. S. Chan *et al.*, "Synthesis and measurement of ultrafast waveforms from five discrete optical harmonics," *Science* (80-.)., vol. 331, no. 6021, pp. 1165–1168, 2011.
- [105] E. Sali, K. J. Mendham, J. W. G. Tisch, T. Halfmann, and J. P. Marangos, "Highorder stimulated Raman scattering in a highly transient regime driven by a pair of ultrashort pulses," *Opt. Lett.*, vol. 29, no. 5, p. 495, 2004.
- [106] J. S. Levy, A. Gondarenko, M. A. Foster, A. C. Turner-Foster, A. L. Gaeta, and M. Lipson, "CMOS-compatible multiple-wavelength oscillator for on-chip optical interconnects," *Nat. Photonics*, vol. 4, no. 1, pp. 37–40, 2010.
- [107] P. Del Haye, A. Schliesser, O. Arcizet, T. Wilkins, R. Holzwarth, and T. J. Kippenberg, "Optical frequency comb generation from a monolithic microresonator," pp. 1–14, 2007.
- [108] K. S. Repasky, J. K. Brasseur, L. Meng, and J. L. Carlsten, "Performance and design of an off-resonant continuous-wave Raman laser," J. Opt. Soc. Am. B, vol. 15, no. 6, pp. 1667–1673, 1998.
- [109] J. T. Green, J. J. Weber, and D. D. Yavuz, "Continuous-wave light modulation at molecular frequencies," *Phys. Rev. A*, vol. 82, no. 1, p. 011805, 2010.

CC BY-NC-ND



- [110] F. Benabid, F. Couny, and Y. Y. Wang, "Towards a CW photonic intensity waveform synthesizer," vol. 13, no. 15, p. 213903, 2007.
- [111] F. Couny, B. J. Mangan, a. V. Sokolov, and F. Benabid, "High power 55 watts CW Raman fiber-gas-laser," *Lasers Electro-Optics Quantum Electron. Laser Sci. Conf.* (QELS), 2010 Conf., pp. 3–4, 2010.
- [112] J. Struck *et al.*, "Tunable gauge potential for neutral and spinless particles in driven optical lattices," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 108, no. 22, pp. 1–6, 2012.
- [113] P. Wolfgang, "electromagnetic-traps-for-charged-and-neutral-particles-Paul." 1990.
- [114] R.H.Dicke, "The effect of collisions upon the Doppler width of spectral lines," *PRL*, vol. 105, no. Fig 1, 1953.
- [115] E. T. Jaynes and F. W. Cummings, "Comparison of Quantum and Semiclassical Radiation Theories with Application to the Beam Maser," *Proc. IEEE*, vol. 51, no. 1, pp. 89–109, 1963.
- [116] F. Le Kien, J. Q. Liang, M. Katsuragawa, and K. Ohtsuki, "Phys. Rev. A 60, 1562 (1999): Subfemtosecond pulse generation with molecular coherence control in stimulated Raman scattering," *Phys. Rev. a*, pp. 1–2, 1999.
- [117] A. V. Le Kien, F. ;Hakuta, K and Sokolov, "Pulse compression by parametric beating with a prepared Raman coherence," *arxciv*, 2002.
- [118] R. L.; K. and P. L. M. Rahn, L.A.; Farrow, "Observation of an optical Stark effect on vibrational and rotational transitions," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 45, no. 8, pp. 620–623, 1980.
- [119] G. C. Herring, M. J. Dyer, and W. K. Bischel, "Temperature and wavelength dependence of the rotational Raman gain coefficient in N_2," *Opt. Lett.*, vol. 11, no. 6, p. 348, 1986.
- [120] J. W. and Sons, Quantum electronics. 1989.
- [121] M. Brune *et al.*, "Quantum rabi oscillation: A direct test of field quantization in a cavity," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 76, no. 11, pp. 1800–1803, 1996.
- [122] C. Roy and S. Hughes, "Phonon-dressed Mollow triplet in the regime of cavity-QED," pp. 6–9.

BY-NC-ND

- [123] M. Alharbi, A. Husakou, M. Chafer, B. Debord, F. Gérôme, and F. Benabid, "Raman gas self-organizing into deep nano-trap lattice," *Nat. Commun.*, vol. 7, p. 12779, Sep. 2016.
- [124] G. D. Billing, "Rotational and vibrational relaxation of hydrogen and deuterium," *Chem. Phys.*, vol. 20, no. 1, pp. 35–42, 1977.
- [125] M. Alharbi, "CW stimulated Raman scattering generation and phase locking of Raman comb using hypocycloid-shaped Kagome HC-PCF," 2014.
- [126] T. Breeden and H. Metcalf, "Stark acceleration of Rydberg atoms in inhomogeneous electric fields," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 47, pp. 1726–1729, 1981.
- [127] S. R. Wilkinson, C. F. Bharucha, K. W. Madison, Q. Niu, and M. G. Raizen, "Observation of atomic Wannier-Stark Ladders in ana accelerating optical potential," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 76, pp. 4512–4515, 1996.
- [128] J.-Y. Courtois and G. Grynberg, "Probe transmission in one-dimensional optical molasses: Theory for linearly cross-polarized cooling beams," *Phys. Rev. A*, vol. 46, no. 11, pp. 7060–7078, 1992.
- [129] O. Firstenberg, M. Shuker, R. Pugatch, D. R. Fredkin, N. Davidson, and A. Ron, "Diffusion of Slow-Light in Thermal Vapor," in *Slow and Fast Light*, 2008, p. SWD2.
- [130] G. Tastevin, P. Nacher, F. Laloë, G. Tastevin, P. Nacher, and F. Laloë, "Une équation cinétique pour les gaz quantiques To cite this version : HAL Id : hal-00001438," 2004.
- [131] J. S. Graul, B. M. Cornella, A. D. Ketsdever, T. C. Lilly, and M. N. Shneider, "Experimentally observed field-gas interaction in intense optical lattices," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 103, no. 24, 2013.
- [132] and D. J. W. F.Diedrich, J.C. Bergquist, Wayne M.Itano, "Laser cooling to the Zero-Point Energy of motion," 1989.



Contributions Scientifiques

Publications dans des revues Internationale à comité de lecture :

J.H.OSório, <u>M.Chafer</u>, B.Debord, F.Giovanardi, M.Cordier, M. Maurel, F.Delahaye, F.Amrani and F. B. Vincetti, F.Gérôme, "Tailoring modal properties of inhibited-coupling guiding fibers by cladding modification," *arXiv*,2018

M. Maurel, <u>M.Chafer</u>, A.Amsanpally, M.Adnan, F.Amrani, B. Debord, L. Vincetti, F. Gérôme, and F.Benabid "Optimized inhibited-coupling Kagome fibers at Yb-Nd:Yag (8.5 dB/km) and Ti:Sa (30 dB/km) ranges," *Opt. Lett.*, vol. 43, no. 7, pp. 1598–1601, 2018.

B. Debord, A.Amsanpally, <u>M.Chafer</u>, A.Baz, M.Maurel, J.M. Blondy, E.Hugonnot, F. Scol, L. Vincetti, F.Gérôme, and F. Benabid "Ultralow transmission loss in inhibited-coupling guiding hollow fibers," *Optica*, vol. 4, no. 2, p. 209, 2017.

N. Dadashzadeh, M.P. Thirugnanasambandan, H.W. Kushan Weerasinghe, B. Debord, <u>M.Chafer</u>, F. Gérôme, F. Benabid, BR. Wasburn, and K.L. Carwin, "Near diffraction-limited performance of an OPA pumped acetylene-filled hollow-core fiber laser in the mid-IR," *Opt. Express*, vol. 25, no. 12, p. 13351, 2017.

M. Alharbi, A. Husakou, <u>M. Chafer</u>, B. Debord, F. Gérôme, and F. Benabid, "Raman gas self-organizing into deep nano-trap lattice," *Nat. Commun.*, vol. 7, p. 12779, Sep. 2016.

Communication invitée à une conférence internationale :

<u>M. Chafer</u>, F. Delahaye, F. Amrani, B. Debord, F. Gérôme, and F. Benabid, "1 km long HCPCF with losses at the fundamental Rayleigh scattering limit in the green wavelength range," in *Conference on Lasers and Electro-Optics*, 2018, p. SF1K.3.

Communications post-deadline à des conférences internationales :

<u>M. Chafer</u>, M.Maurel, F.Amrani, F.Debord, C. Honninger, F.Gérôme, E. Mottay and F. Benabid, "Pulse-compression down to 50 fs of femtosecond UV laser using Inhibited-Coupling hollow-core PCF," in *Conference on Lasers and Electro-Optics*, 2018, p. JTh5A.6.

M. Alharbi, A. Husakou, <u>M. Chafer</u>, B. Debord, F. Gérôme, and F. Benabid, "Sub-recoil linewidth and high power CW stimulated Raman scattering in the Lamb-Dicke regime," in *Conference on Lasers and Electro-Optics*, 2016, p. JTh4A.2.

B. Debord, A.Amsanpally, <u>M.Chafer</u>, A.Baz, M.Maurel, J.M. Blondy, E.Hugonnot, F. Scol, L. Vincetti, F.Gérôme, and F. Benabid, "7.7 dB/km losses in inhibited coupling

hollow-core photonic crystal fibers," in *Conference on Lasers and Electro-Optics*, 2016, p. JTh4C.8.

Communications à des conférences internationales à comité de lecture :

<u>M. Chafer</u>, A. Gorse, B. Beaudou, Q. Lekiefs, M. Maurel, B.Debord, F. Gérôme and F; Benabid, "Inhibited-coupling HCPCF based beam-delivery-system for high power green industrial lasers," *Proc. SPIE - Int. Soc. Opt. Eng.*, vol. 10513, no. February, 2018.

B. Debord A.Amsanpally, <u>M.Chafer</u>, A.Baz, M.Maurel, J.M. Blondy, E.Hugonnot, F. Scol, L. Vincetti, F.Gérôme, and F. Benabid , "7.7 dB/km Transmission loss at 750 nm inhibited-coupling guiding hollow-core photonic crystal fibers," in 2017 Conference on Lasers and Electro-Optics Europe & European Quantum Electronics Conference (CLEO/Europe-EQEC), 2017, p. 1.

N. Dadashzadeh, M.P. Thirugnanasambandan, H.W. Kushan Weerasinghe, B. Debord, <u>M.Chafer</u>, F. Gérôme, F. Benabid, BR. Wasburn, and K.L. Carwin *et al.*, "Power-scaling a Mid-IR OPA-pumped Acetylene-filled Hollow-Core Photonic Crystal Fiber Laser," in *Conference on Lasers and Electro-Optics*, 2016, p. STh4O.1.

M. Cordier, A. Orieux, B.Debord, F. Gérôme, A. Gorse, <u>M. Chafer</u>, E. Diamanti, P. Delaye, F. Benabid, and I. Zaquine, "Shaping photon-pairs time-frequency correlations in inhibited-coupling hollow-core fibers," in *Conference on Lasers and Electro-Optics*, 2018, p. FM4G.4.

F. Delahaye, M. Maurel, <u>M. Chafer</u>, F. Amrani, B. Debord, F. Gérôme, and F. Benabid, "Double-clad hypocycloid core-contour Kagome hollow-core photonic crystal fiber," in *Conference on Lasers and Electro-Optics*, 2018, p. JTh2A.97.

<u>M. Chafer</u>, Q. Lekiefs, A. Gorse, B. Beaudou, B. Debord, F. Gérôme, and F. Benabid "Compact, integrable, and long life time Raman multiline UV-Vis source based on hypocycloid core Kagome HCPCF," *Proc. SPIE - Int. Soc. Opt. Eng.*, vol. 10088, no. February 2017, 2017.

<u>M. Chafer</u>, A. Husakou, B. Debord, F. Gérôme, and F. Benabid, "Lamb-dicke subrecoil narrowing of high-power CW stokes raman source," *Opt. InfoBase Conf. Pap.*, vol. Part F82-C, no. c, p. 12779, 2017.

M. Maurel, A. Gorse, B. Beaudou, Q. Lekiefs, <u>M. Chafer</u>, B. Debord, F. Gérôme, and F. Benabid "Kagome fiber based industrial laser beam delivery," no. February 2017, p. 100941L, 2017.

A. Benoît, D. Kergoustin, <u>M. Chafer</u>, B. Beaudou, B. Debord, F. Gérôme, and F. Benabid, "Parametric four-wave mixing sidebands in strongly driven raman molecular D2-filled HCPCF," *Opt. InfoBase Conf. Pap.*, vol. Part F82-C, no. 11, p. 6736, 2017.

Matthieu Chafer | Thèse de doctorat | Université de Limoges | 2018



M. Maurel, <u>M. Chafer</u>, F. Delahaye, F. Amrani, B. Debord, F. Gérôme, and F. Benabid, "2-µm wavelength-range low-loss inhibited-coupling hollow-core PCF," *Components Packag. Laser Syst. IV*, vol. 1051305, no. February, p. 4, 2018.

Communications à des conférences nationales à comité de lecture :

<u>M. Chafer</u>, M.Maurel, A. Amsanpally, A. Gorse, B. Beaudou, J.M. Blondy, B. Debord, F. Gérôme, and F. Benabid "Développements récents de fibres à coeur creux à couplage inhibé", *Oral JNOG Limoges*, 2017.

<u>M. Chafer</u>, M. Alharbi, A. Husakou, B. Debord, F. Gérôme, and F. Benabid, "Soucres CW de haute puissance et de largeur de raie sub-recul par diffusion Raman stimulée dans un régime Lamb-Dicke", *Poster JNOG Limoges*, 2017.

<u>M. Chafer</u>, M. Alharbi, A. Husakou, B. Debord, F. Gérôme, and F. Benabid, "Raman gas self-organizing into deep nano-trap lattice", *Poster Workshop CNES Paris*, 2016.

<u>M. Chafer</u>, M. Alharbi, A. Husakou, B. Debord, F. Gérôme, and F. Benabid, "Raman gas self-organizing into deep nano-trap lattice", *workshop LAPHIA*, 2016.



Résumé

Depuis leur avènement, les fibres à cristal photonique à cœur creux ont prouvé leur capacité à convertir des fréquences avec une haute efficacité, notamment en jouant sur le phénomène de diffusion Raman stimulée. Dans le cadre d'un contrat CIFRE entre la société GLOphotonics et l'institut de recherche Xlim, ce projet de thèse a consisté à développer ces fibres afin d'améliorer leurs performances optiques pour cibler deux voies d'applications: une industrielle pour proposer un laser compact multi-ligne dans le visible et dans l'UV et une seconde plus fondamentale pour réaliser un synthétiseur d'onde optique.

L'amélioration de ces performances repose sur l'exacerbation de l'inhibition du couplage entre le mode du coeur d'air et les modes de silice de la gaine. Pour cela deux types de micro-structures ont été explorées à savoir une maille Kagomé et une maille tubulaire. Plusieurs fibres ont été alors fabriquées démontrant des performances records sur toute une gamme de longueurs d'onde (8,5 dB/km à 1 µm, 7,7 dB/km à 750 nm, 13,8 dB/ km à 549 nm, et autour de 70 dB/km à 355 nm).

Concernant la fonctionnalisation de ces fibres, des micro-capsules photoniques ont été conçues et réalisées permettant à la fois de palier au problème de la perméabilité de la silice au gaz (stabilité de la conversion dépassant 12 mois) et de démontrer une conversion de 26 lignes dans le visible. Un produit industriel nommé CombLas a alors été produit puis appliqué à une étude de cytométrie en flux pour étudier l'influence du taux de répétition du laser de pompe. Ce produit a également été étendu à la gamme spectrale de l'UV avec la génération de 24 lignes entre 225-400 nm.

Enfin, des travaux plus fondamentaux ont été réalisés consistant à développer un synthétiseur d'onde optique à base de génération Raman dans ces fibres creuses. Une nouvelle dynamique a été observée démontrant le piégeage de molécules d'hydrogène par un réseau optique auto-assemblé de puits de potentiel ultra-profonds et nanométriques. Cela permis de générer un régime Lamb-Dicke de la diffusion Raman stimulée. Des signatures sub-Doppler usuellement vues dans les atomes froids ont été mesurées avec des largeurs de bandes plus étroites de plus de 5 ordres de grandeurs par rapport à ce qui est prédit dans la littérature. Finalement, cette largeur de bande a été optimisée d'un ordre de grandeur en jouant sur la longueur de la fibre et la pression de l'hydrogène.

Mots-clés : Fibre à cœur creux à cristal photonique, Couplage inhibé, Diffusion Raman stimulée, Micro-capsule photonique, Laser multi-ligne, Lamb-Dicke, Piégeage moléculaire

Abstract

Since their advent, hollow-core photonic crystal fibers have proved to be highly efficient for frequency conversion, especially via by playing with stimulated Raman scattering. Within the frame work of a CIFRE contract between the firm GLOphotonics and the Xlim research institute, this thesis project has consisted in developing these fibers to enhance their optical performances, in order to target two different field of applications: an industrial one to offer a a compact multi-line laser in the visible and UV and a second more fundamental one to realize a optical wave synthesizer.

The amelioration of these performances relies on the exacerbation of the inhibition of the coupling between the air core mode and the silica cladding modes. Two types of micro-structures have been explored, a Kagomé and a tubular lattice. Several fibers have been fabricated demonstrating record performances on all a wavelength range (8.5 dB/km at 1 μ m, 7.7 dB/km at 750 nm, 13.8 dB/km at 549 nm, and around 70 dB/km at 355 nm).

Concerning the functionalization of the fibers, photonic micro-cells have been designed and realized enabling to overcome the problem the permeability of silica to gas (conversion stability over 12 months) and demonstrate a conversion to 26 lines in the visible. An industrial product coined CombLas has been made and used for flow cytometry in order to study the influence of the repetition rate of the pump laser. This product has also been extended to the UV range with 24 lines generated between 225-400 nm.

Also, more fundamental research has been realized consisting in developing an optical wave synthesizer based on Raman generation in hollow core fibres where a new dynamic has been observed demonstrating the trapping of hydrogen molecules by an auto-assembled optical lattice of ultra-deep and nano-metric potential wells. This configuration has enabled to generate a Lamb-Dicke regime of stimulated Raman scattering. Sub-Doppler signatures usually found in cold atoms have been measured with linewidths narrower than 5 orders of magnitude than what is predicted in the literature. Finally, this linewidth has been optmised of an order of magnitude by plaing on the length of the fiber and the pressure of hydrogen.

Keywords : Hollow-core photonic crystal fiber, Inhibited coupling, Stimulated Raman scattering, Photonic micro-cells, Multi-line laser, Lamb-Dicke, Molecular trapping

