amU
Aix Marseille Université

NNT : 2024AIXM0001

THÈSE DE DOCTORAT

Soutenue à AMU — Aix-Marseille Université
le 31 janvier 2025 par

Ines MARTIN

Source paramétrique accordable à bas bruit et ligne à retard agile ultra-rapide pour la spectroscopie et l'imagerie par Diffusion Raman Cohérente

Discipline
Physique et Sciences de la Matière

Spécialité
Optique, photonique et traitement d'image

École doctorale
Ecole Doctorale Physique et Sciences de la Matière ED352

Laboratoire/Partenaires de recherche
Institut Fresnel
Fastlite by Amplitude

Composition du jury

Fréderic DRUON Professeur, Institut Optique Graduate School	Rapporteur
Nicolas JOLY Professeur, Université d'Erlangen	Rapporteur
Patricia SEGONDS Professeur, Institut Néel	Présidente du jury
Hervé RIGNEAULT Directeur de recherche, Institut Fresnel	Directeur de thèse
Nicolas FORGET Directeur de recherche, INPHYNI	Co-Directeur de thèse
Yoann PERTOT Directeur scientifique, Fastlite by Amplitude	Membre invité

INSTITUT FRESNEL
FASTLITE by Amplitude
cnrs

Affidavit

Je soussignée, Ines MARTIN, déclare par la présente que le travail présenté dans ce manuscrit est mon propre travail, réalisé sous la direction scientifique de Hervé Rigneault, dans le respect des principes d'honnêteté, d'intégrité et de responsabilité inhérents à la mission de recherche. Les travaux de recherche et la rédaction de ce manuscrit ont été réalisés dans le respect à la fois de la charte nationale de déontologie des métiers de la recherche et de la charte AMU relative à la lutte contre le plagiat.

Ce travail n'a pas été précédemment soumis en France ou à l'étranger dans une version identique ou similaire à un organisme examinateur.

Fait à Nice le 11 Novembre 2024



Cette œuvre est mise à disposition selon les termes de la Licence Creative Commons Attribution - Pas d'Utilisation Commerciale - Pas de Modification 4.0 International.

Liste de publications et participation aux conférences

Liste des publications et/ou brevets réalisées dans le cadre du projet de thèse :

1. Sisira Suresh and **Ines Martin**, Samuel Metais, Chrysa Vourdaki, Sebastien Coudreau, Randy Bartels, Nicolas Forget, Herve Rigneault. "Agile acousto-optic delay line for fast impulsive stimulated Raman imaging" Accepté le 02/12/2024 par Optics Letters (les auteurs, Sisira Suresh et Ines Martin, ont contribué à parts égales).
2. Sisira Sisira Suresh and **Ines Martin**, Samuel Métais, Siddarth Shivkumar, Nicolas Forget, Randy Bartels, and Hervé Rigneault. "Impulsive stimulated Raman scattering imaging using an ultra-fast acoustic-optics delay line." In Advanced Chemical Microscopy for Life Science and Translational Medicine 2024, vol. 12855, pp. 31-36. SPIE, 2024 (les auteurs, Sisira Suresh et Ines Martin, ont contribué à parts égales). Lien de l'article
3. Metais Samuel, Sisira Suresh, Paulo Diniz, Chrysa Vourdaki, **Ines Martin**, Siddarth Shivkumar, Randy Bartels, Nicolas Forget, and Hervé Rigneault. "Hyperspectral acquisition with ScanImage at the single pixel level : application to time domain coherent Raman imaging." Optics Express 32, no. 22 (2024) : 38849-38863. Lien de l'article

Participation aux conférences et écoles d'été au cours de la période de thèse :

1. Ecoles d'été SMART-X, Fastlite by Amplitude, Antibes, Mars 2022. Lien de l'école d'été
2. Présentation de Poster à la conférence OPTIQUE : "Caractérisation multi-spectrale du front d'onde d'un supercontinuum", Nice (France), juillet 2022. Lien de la conférence
3. Présentation orale au GDR ELIOS : "Low-noise parametric amplification of an ANDi fiber supercontinuum to the W-level at 40 MHz", Marseille (France), octobre 2022. Lien de la conférence

4. Présentation de Poster à la conférence UFO : "Low-Noise tunable source for Stimulated Raman Scattering Imaging", Bariloche (Argentine), mars 2023. Lien de la conférence
5. Presentation orale à la conférence CLEO europe : "Low-Noise Tunable Source for Stimulated Raman Scattering Imaging", Munich (Allemagne), juin 2023. Lien de la conférence
6. Présentation de Poster au GDR Ondes : "Low-noise parametric amplification of an ANDi fiber supercontinuum to the W-level at 40 MHz", Marseille (France), décembre 2023. Lien de la conférence
7. Presentation orale à la conférence ECONOS : "Impulsive Stimulated Raman Scattering imaging using an ultrafast acousto-optic delay line", Vienne (Autriche), Avril 2024. Lien de la conférence

Résumé

La spectroscopie Raman Cohérente joue un rôle essentiel dans l'analyse des propriétés chimiques et structurales des échantillons, en particulier dans les domaines biomédicaux et pharmacologiques. Parmi ces techniques, la diffusion Raman stimulée (SRS), une méthode de spectroscopie non linéaire ne nécessitant ni marquage ni coloration, se distingue par sa capacité à fournir des images de haute résolution chimique. Cependant, la réalisation d'images SRS avec un rapport signal sur bruit (SNR) élevé nécessite des sources laser à faible bruit. Actuellement, les oscillateurs paramétriques optiques (OPO) sont couramment utilisés comme sources pour la microscopie SRS, mais leur faible puissance moyenne et la nécessité de synchroniser les fréquences de cavité et de pompe représentent des limitations importantes. Pour surmonter ces obstacles, nous avons développé un amplificateur paramétrique optique (OPA) à faible bruit et haute cadence (40 MHz) offrant une puissance moyenne élevée (>1 W), adapté à l'imagerie SRS. Grâce aux avancées récentes des lasers femtoseconde à haute puissance et limités par le bruit de grenaille, ainsi que des fibres non linéaires à dispersion normale (ANDi) optimisées pour les lasers Ytterbium, nous avons pu générer un continuum de longueur d'onde, utilisé comme signal à amplifier pour un OPA accordable. Nous avons ensuite utilisé cette source pour des expériences d'imagerie qui ont montré des résultats encourageants. D'autre part, la spectroscopie Raman peut également révéler des informations structurelles précieuses grâce à la méthode de diffusion Raman stimulée impulsive (ISRS), particulièrement utile pour explorer les phénomènes temporels dans le domaine des décalages Raman inférieurs à $200cm^{-1}$ ("low-frequency"). Cette approche repose sur un schéma de détection pompe-sonde où l'impulsion de pompe excite la molécule, entraînant un changement transitoire de l'indice de réfraction, détectable par des altérations du profil spatial, du spectre ou de la polarisation de l'impulsion sonde. Nous avons intégré un nouveau dispositif, la ligne à retard agile (ADL) basé sur une ligne 4f intégrant un déflecteur acousto-optique dans le plan de fourier, capable de balayer jusqu'à 50 ps en intervalles continu et aléatoires, pour obtenir des images hyperspectrales. Des expériences sur des échantillons tels que l'acétaminophène et l'anthracène montrent la capacité de cette technologie à réaliser une détection sélective dans une image hyperspectrale. En combinant ces deux approches, notre travail met en lumière des solutions innovantes pour étendre les capacités de la spectroscopie Raman et améliorer la qualité et la rapidité des mesures dans des applications critiques telles que l'imagerie chimique et l'étude des phénomènes dynamiques moléculaires.

Abstract

Coherent Raman spectroscopy plays a crucial role in analyzing the chemical and structural properties of samples, particularly in biomedical and pharmacological fields. Among these techniques, stimulated Raman scattering (SRS), a nonlinear spectroscopy method that requires no labeling or staining, stands out for its ability to provide high-resolution chemical images. However, achieving SRS imaging with a high signal-to-noise ratio (SNR) requires low-noise laser sources. Currently, optical parametric oscillators (OPOs) are commonly used as sources for SRS microscopy, but their low average power and the need to synchronize cavity and pump frequencies pose significant limitations. To overcome these challenges, we developed a low-noise, high-repetition-rate optical parametric amplifier (OPA) (40 MHz) that delivers high average power (>1 W), making it suitable for SRS imaging. Leveraging recent advances in high-power, shot-noise-limited femtosecond lasers and normal-dispersion nonlinear fibers (ANDi) optimized for ytterbium lasers, we generated a wavelength continuum used as the seed signal for a tunable OPA. We then utilized this source for imaging experiments, which yielded promising results. Furthermore, Raman spectroscopy can also reveal valuable structural information through the impulsive stimulated Raman scattering (ISRS) method, particularly useful for exploring temporal phenomena in low-frequency Raman shifts below 200 cm^{-1}. This approach relies on a pump-probe detection scheme, where the pump pulse excites the molecule, causing a transient refractive index change detectable via alterations in the spatial profile, spectrum, or polarization of the probe pulse. We integrated a novel device, the **agile delay line (ADL)**, based on a 4f line incorporating an acousto-optic deflector in the Fourier plane. This system enables scanning up to 50 ps in continuous and random intervals, facilitating hyperspectral imaging. Experiments on samples such as acetaminophen and anthracene demonstrated the capability of this technology for selective detection within a hyperspectral image. By combining these two approaches, our work highlights innovative solutions to enhance the capabilities of Raman spectroscopy and improve the quality and speed of measurements in critical applications such as chemical imaging and the study of molecular dynamic phenomena.

Remerciements

Ce manuscrit et l'obtention de ce doctorat sont l'aboutissement de trois années de travail acharné, durant lesquelles j'ai persévéré jour après jour. Ces années ont été marquées par un investissement considérable, tant sur le plan professionnel que personnel. Elles ont également été particulièrement éprouvantes sur le plan personnel, mais ce doctorat m'a permis de m'accrocher et de continuer à avancer.

Aussi surprenant que cela puisse paraître, la première personne que je souhaite remercier, c'est moi-même. Je suis fière du chemin parcouru, de la confiance que j'ai appris à m'accorder, de ma capacité à me dépasser, et surtout de la qualité du travail que j'ai fourni, reconnue et validée avec excellence par mes pairs.

Je tiens à exprimer ma profonde gratitude envers mes directeurs de thèse et encadrants. Hervé, merci pour toutes nos discussions enrichissantes, ta passion pour ton domaine, ta capacité à toujours trouver des solutions et la confiance que tu m'as accordée sur les aspects techniques et expérimentaux de mon travail. Nicolas, merci de m'avoir transmis ta curiosité et ton enthousiasme pour chaque sujet, pour tes idées parfois folles mais toujours ingénieuses afin de faire fonctionner les expériences. Nos échanges, tant sur le plan professionnel que personnel, m'ont permis d'exprimer les hauts et les bas de ce parcours. Merci de m'avoir accompagnée depuis mon stage de M2 jusqu'aux dernières répétitions avant ma soutenance, et surtout d'avoir toujours eu un regard bienveillant sur moi. Ta gentillesse, ta bienveillance et ta confiance m'ont offert l'autonomie dont j'avais besoin pour mener à bien cette thèse sereinement. Yoann, merci pour nos discussions, qu'elles soient techniques ou plus personnelles, autour du café chez Fastlite. Tes précieux conseils m'ont appris la rigueur et l'exigence du travail bien fait, tout en partageant ton savoir avec générosité. Je souhaite également remercier chaleureusement Patricia Segonds, Frédéric Druon et Nicolas Joly d'avoir accepté de faire partie de mon jury de thèse. Merci pour la longue et enrichissante discussion qui a suivi ma présentation, pour vos questions pertinentes qui m'ont permis d'explorer ma thèse sous d'autres angles, et pour vos retours sincères et bienveillants, ainsi que la relecture attentive de mon manuscrit.

Je souhaite également adresser mes sincères remerciements à toutes les personnes avec qui j'ai eu la chance de travailler chez Fastlite durant ces deux années. J'ai particulièrement apprécié l'atmosphère intimiste et presque familiale qui y régnait, où les discussions étaient souvent ponctuées de rires et de blagues, mais aussi d'échanges techniques toujours enrichissants. Un immense merci à celles et ceux qui ont fait de mon quotidien un vrai plaisir et m'ont donné envie de venir travailler chaque matin. Simone, avec qui j'ai eu la chance de collaborer ; Cyril, qui a encadré mon stage de

M2 et le début de ma thèse ; Thomas, avec qui j'ai partagé de nombreuses discussions (et quelques sessions de gossip, soyons honnêtes !) ; Benjamin, pour ton soutien indéfectible et une amitié précieuse ; Matis, pour nos échanges philosophiques et psychologiques, qui m'ont permis de mieux comprendre tant de choses et de garder confiance en moi. Enfin, je remercie aussi toutes les personnes avec qui j'ai eu l'occasion de travailler, de près ou de loin, celles à qui j'ai demandé des conseils ou avec qui j'ai simplement partagé un thé : Olivier, Anna, Vincent… et bien d'autres encore.

I would like to take a moment to write in English and thank everyone with whom I shared my life at the lab while I was in Marseille. A special thank you to Sisira, who was a great source of support with her natural cheerfulness and warm smile. We spent hours talking about everything and nothing, understanding each other without even needing words. You also helped me improve my English, and, of course, we endured countless hours struggling with that damned delayed line (thankfully, that's all behind us now!). I also want to thank Youssef, with whom I had the pleasure of working. His kindness and patience helped me learn so much about microscopy, always with generosity and goodwill. And finally, to all those I didn't work with directly but with whom I shared great moments—whether at the CROUS, during coffee breaks, or at evening gatherings : Luis, Isael, Chrysa, Assia, Charitra, Amer, Luca… and many more.

Enfin, pour conclure la partie professionnelle, je tiens à remercier toutes les personnes avec qui j'ai travaillé au sein du laboratoire commun à l'Inphyni, et tout particulièrement Aurélie.

Je voudrais maintenant prendre le temps de remercier mes amis et ma famille pour leur soutien, non seulement durant ces trois années de thèse, mais aussi tout au long des 26 années de ma vie. En commençant par ma famille, Papa, Maman, vous m'avez toujours accordé votre confiance à 100 %, peu importe le sujet. Vous m'avez soutenue, encouragée et cru en moi à chaque étape. Même si, comme tous les parents, vous étiez emplis d'inquiétude, vous avez su me laisser l'indépendance nécessaire pour évoluer à mon propre rythme et expérimenter ce que je souhaitais. Merci de me faire confiance. Anthony, qui partage ma vie depuis bientôt huit ans au moment où j'écris ces lignes… Merci infiniment. Tout d'abord pour ton soutien durant ces trois années, à supporter mes états d'âme, à vivre cette thèse avec moi, tout simplement, à me consoler et m'encourager, à me féliciter et me donner tout ton amour pour que je puisse réussir tout ce que j'entreprends. Merci pour ton soutien inconditionnel, toujours sans jugement, avec écoute, bienveillance et les mots justes. Ta présence à mes côtés rend tout plus simple et paisible, et je suis heureuse de partager ma vie avec toi. J'espère encore continuer ma vie à tes côtés pendant très longtemps, avec de plus en plus de projets fous, toujours dans le rire et la joie. Bhumi, notre chien, qui a aujourd'hui six mois et qui, en si peu de temps, m'apporte déjà tant de joie et de sérénité. Depuis ton arrivée, tu as embelli notre quotidien, et je suis reconnaissante de t'avoir dans notre famille avec Anthony. Je remercie également mon oncle et ma tante, Bruno et Angela, pour leur soutien et l'intérêt qu'ils ont porté à mes travaux de doctorat. La famille Viron : Éric, Patricia, Charles et Emma. Une famille que je

considère comme la mienne, avec qui j'ai grandi, où les discussions sont toujours riches et réconfortantes, où l'on se sent en sécurité, et qui transmettent leur amour même à des kilomètres de distance. Ma belle-famille : Marie et Hamid, avec lesquels je passe des moments incroyables, remplis d'amour et de rires. Enfin, je remercie tous les membres de ma famille, même ceux que je vois moins souvent, mais qui m'ont toujours encouragée dans mon parcours académique et pour qui je suis une fierté.

Enfin, je souhaite remercier mes amis, que je considère comme la famille que j'ai choisie. Shanice, pour ta présence à mes côtés depuis vingt ans. Pour nos rires et nos larmes, nos joies et nos disputes, pour tout ce que nous sommes et avons partagé. Merci d'être dans ma vie et d'y apporter autant de bonheur et de gaieté. Jordann aussi, ton soutien précieux, qui est devenu un ami cher, toujours de bon conseil et que j'écoute avec attention. Juliette, pour nos années de fac, pour le QCS (j'espère que dans trente ans, on saura toujours ce que ça signifie !), pour nos innombrables fous rires, pour ta persévérance et pour m'avoir toujours encouragée à continuer et à croire en moi. Adnan, pour ton soutien constant, ta bienveillance et ton écoute incomparable, avec qui je peux me confier sur n'importe quel sujet. Kevin, pour tous les moments que nous avons partagés et… pour avoir enfin fini par me donner ton numéro de téléphone ! Les copines. Célia, pour notre première année de fac passée à gossip plus qu'à écouter les cours, et pour tous nos moments ensemble qui ont renforcé notre confiance en nous. Nikita, avec qui, au fil des années, je construis une amitié profonde, pleine d'amour et avec qui j'apprends à mieux me comprendre à travers nos discussions et nos similitudes. Kiara, pour ta bienveillance et ta douceur, qui te caractérisent tant, avec qui je partage tant de similitudes et qui m'aide à comprendre de nombreux aspects de ma vie. Merci d'être mes amies, pour le soutien inconditionnel que vous m'apportez et pour avoir su voir la lumière en moi dès le premier jour. Mon amie du lycée, Camille, qui semble toujours admirative de mon parcours et qui a changé ma vie lorsque je suis arrivée à Nice en troisième. Tu as été une source de soutien, de gentillesse et d'amitié dont j'avais besoin. Mattéo, pour nos longues discussions et débats qui me font grandir et voir le monde autrement. Brian, Olivier et Yegor, avec qui je passe de plus en plus de temps et que j'apprends à mieux connaître chaque jour. Et enfin, Noëlle, qui m'a aidée à relever la tête, un soutien hors pair, qui comprend ma façon d'être et de fonctionner, et qui me permet aujourd'hui d'assumer pleinement l'être lumineux que je suis.

Merci à tous d'avoir toujours cru en moi, de me faire confiance et de m'accepter comme je suis…

Table des matières

Affidavit 2

Liste de publications et participation aux conférences 3

Résumé 5

Abstract 6

Remerciements 7

Table des matières 10

Table des figures 14

Liste des tableaux 17

Liste des acronymes 18

1. Introduction : Microscopie moléculaire 20
- 1.1. État de l'art . . . 20
- 1.2. Spectroscopie Raman Cohérente . . . 22
  - 1.2.1. Principe : Diffusion Raman stimulée (SRS) . . . 23
  - 1.2.2. Principe : Diffusion Raman Stimulée Impulsive (ISRS) . . . 24
  - 1.2.3. Méthode de détection . . . 27
- 1.3. Objectif de la thèse . . . 28

2. Introduction : Photonique ultrarapide 30
- 2.1. Optique Linéaire et Non-Linéaire . . . 30
- 2.2. Propriétés d'une impulsion ultracourte . . . 31
- 2.3. Effets Non-linéaires . . . 33
  - 2.3.1. Génération de seconde harmonique (SHG) . . . 33
  - 2.3.2. Génération de somme de fréquences (SFG) . . . 34
  - 2.3.3. Accord de phase . . . 34
  - 2.3.4. Coefficient non linéaire effectif d_{eff} et indice de réfraction non linéaire n_2 . . . 35
  - 2.3.5. Effet Kerr . . . 36
  - 2.3.6. Gain paramétrique dans un Amplificateur Paramétrique Optique (OPA) . . . 41
  - 2.3.7. Transformée de Fourier (TF) . . . 42

2.3.8. Techniques de caractérisation 42
2.4. Etats de l'art des sources pour la microscopie (I)SRS 43
2.4.1. Bruit d'intensité en fréquence 44
2.4.2. Sources pour le ISRS 45
2.4.3. Sources pour le SRS 47

3. Amplificateur Paramétrique Optique bas bruit à 40MHz 50
3.1. Théorie de l'OPA 50
3.1.1. Génération de supercontinuum (SC) 51
3.1.2. OPA chirpé 52
3.1.3. Cristaux non-linéaires 52
3.1.4. Décalage spatial et angulaire 56
3.2. Architecture de l'OPA 60
3.2.1. Seconde harmonique de la pompe 61
3.2.2. Génération du supercontinuum 62
3.2.3. Amplification paramétrique et caractérisation de l'OPA 74
3.3. Caractérisation du bruit d'intensité en fréquence 79
3.4. Conclusion du chapitre 84

4. Diffusion Raman Cohérente couplée à l'Amplificateur Paramétrique Optique 85
4.0.1. Spectral focusing 86
4.1. Mise en place de l'expérience 87
4.1.1. Modulateur Acousto-Optique (AOM) 88
4.1.2. Chirp des faisceaux 89
4.1.3. Recouvrement temporel 90
4.1.4. Microscope et détection 91
4.2. Résulats 93
4.2.1. Image SRS 93
4.2.2. Dépendance du signal SRS avec P_p , P_s 94
4.2.3. Spectre Raman 97
4.2.4. Histologie 98
4.3. Conclusion du chapitre 99

5. Ligne à retard agile 101
5.1. État de l'art 101
5.2. Principe physique et théorie 104
5.2.1. Principe physique 104
5.2.2. Théorie 105
5.2.3. Objectif du calcul et hypothèses 107
5.2.4. Chemin optique 107
5.2.5. Dispersion 112
5.2.6. Discussion 114

5.3. Choix des optiques . . . 114
5.3.1. Modulateur acousto-optique . . . 115
5.3.2. Lentilles . . . 116
5.3.3. Réseaux de diffraction . . . 116
5.3.4. Optiques d'entrée/sortie . . . 120
5.3.5. Schéma final . . . 120
5.4. Simulation . . . 121
5.5. Expérience . . . 121
5.5.1. Alignement . . . 122
5.5.2. Caractérisation spatiale et spectrale . . . 122
5.5.3. Efficacité . . . 124
5.5.4. Mesure interférométrique . . . 124
5.5.5. Détermination du délai de groupe . . . 130
5.6. Conclusion et amélioration . . . 131

6. Diffusion Raman Cohérent Impulsive couplée à la ligne à retard agile 132
6.1. Introduction . . . 132
6.2. Mise en place de l'experience . . . 132
6.2.1. Microscope . . . 133
6.2.2. Synchronisation et durée d'impulsion . . . 134
6.2.3. Contrôle et synchronisation électronique . . . 135
6.3. Résulats . . . 136
6.3.1. Démonstration de longs balayages temporels . . . 136
6.3.2. Image hyperspectral . . . 138
6.3.3. Ligne à délai agile pour la detection selective . . . 139
6.3.4. Vitesse et résolution . . . 141
6.4. Conclusion . . . 142

7. Conclusion et perspectives 143
7.1. Conclusion . . . 143
7.1.1. Perspectives . . . 146

Bibliographie 147

A. Annexe : RIN 154
A.1. Introduction . . . 154
A.1.1. Photodiode . . . 154
A.1.2. Filtre(s) . . . 155
A.1.3. Amplificateur . . . 155
A.1.4. Amplificateur synchrone (Lock-in) . . . 155
A.2. Calibration . . . 155
A.2.1. LIA + charge . . . 156
A.2.2. Filtre passe-bas . . . 158
A.2.3. Amplificateur ZFL-500LN-BNC+ . . . 159
A.2.4. Fonctions de transfert . . . 160

A.3. Mesure du bruit relatif d'intensité (RIN) 160
A.4. Analyse 162
A.4.1. Niveau de bruit de grenaille attendu 162
A.4.2. Calcul du RIN expérimental 163
A.5. Résultats expérimentaux 164
A.5.1. Laser Tangerine (40 MHz) 164
A.5.2. Laser CW à 1550 nm 164

Table des figures

1.1. Schéma de principe du SRS 23
1.2. Spectre Raman arbitraire 24
1.3. Schéma de principe de l'ISRS 25
1.4. Principe d'ISRS pour l'obtention du spectre Raman 26
1.5. Principe de détection du signal Raman 27

2.3. Schémas de principe de l'sOPO 46

3.1. Schémas simplifiés de l'OPA 51
3.2. OPCPA 52
3.3. décalage angulaire dans le LBO et le BBO 57
3.4. Calcul de l'accord de phase, de gain et de longueur de saturation dans du LBO 58
3.5. OPCPA 61
3.6. Schéma et efficacité de la SHG 62
3.7. Génération du SC par filamentation dans du KGW 63
3.9. Schémas du montage expérimental de la génération du SC dans une fibre ANDi 66
3.10. Étape de couplage dans une fibre ANdi 67
3.12. Influence de la polarisation du SC des fibres ANDi-non PM 69
3.13. Vus de profil des fibres ANDi avec les deux méthodes de protections . . 71
3.14. Vu de face des fibres ANDi-PM 71
3.15. Stabilité et profil spatial du faisceau au foyer de la lentille de focalisation de la fibre à l'aide du système imageur (grossisement 40x) 73
3.16. Schéma de l'étage d'amplification et de sa caractérisation 74
3.17. Tailles des faisceaux (515 nm pompe et SC) dans le cristal amplificateur 75
3.19. 77
3.21. Trace FROG mesurée à l'aide du Frozzer (Fastlite) 78
3.22. Dérive et profil spatial du faisceau signal en sortie d'OPA 79
3.25. RIN du laser 1030 nm, du SC issue de la fibre ANDi et du signal OPA à 800 nm de 0.1-40 MHz 82
3.26. RIN du laser à 20 MHz (bleu) et valeur théorique du *shot-noise* (rouge) 82
3.27. RIN du SC issue de la fibre ANDi-PM à 20 MHz (bleu) pour une polarisation d'entrée entre 0 ° et 180 °) et la valeur du *shot-noise* théorique associé (rouge) 83

3.28. RIN du signal OPA en fonction de l'intensité de la pompe. **Il est à noter que sur cette figure, le signal OPA n'est pas au *shot-noise* car la fibre était endommagée et donc créait un bruit supplémentaire de 8 dB** . . 84

4.1. Principe du *spectral focusing* 86
4.4. Spectre de la génration de SHG, SFG, le faisceau de pompe à λ_p et le faisceau Stokes λ_s 91
4.8. Images SRS, spectre du SC et valeur du RIN pour des polarisation de 0° et 45° en entrée de fibre dans l'OPA. **NB : Ces spectres sont plus modulés que celui présenté dans la partie 3 car la fibre utlisée avait perdu de ses capacité de couplage (endomagement de la surface de la fibre) et donc la SPM n'est plus l'effet non-linéaire majeur et on observe l'augmentation de l'*Optical Wave Breaking*.** 96

5.1. Ligne à délai dans la configuration 4f + acousto-optique 105
5.2. Ligne ADL simplifiée et notations associées. 106
5.3. A gauche : conjugaison de S et S' par L_2. A droite : triangle AHA' 108
5.4. De (P') au plan de sortie (M). 111
5.5. Angle mininum ($\theta_{D(35\,MHz)} = 42.3$ mrad)/median ($\theta_{D(57.5\,MHz)} = 69.1$ mrad)/maximal ($\theta_{D(80\,MHz)} = 99.6$ mrad) de délexion de l'AO 115
5.6. Efficacité de diffraction calculée pour un réseau de 1200 tt/mm à l'incidence normale en fonction de la longueur d'onde incidente et de la longueur d'onde de blaze. Polarisation : P. 118
5.7. Efficacité de diffraction calculée pour un réseau de 1200 tt/mm à l'incidence normale en fonction de la longueur d'onde incidente et de la longueur d'onde de blaze pour plusieurs matériaux. Polarisation : P. . . 119
5.8. Schéma expérimental de la ligne à retard acousto-optique 120
5.9. Simulation de la ligne 4f par tracé de rayons 121
5.10. profil spatial et coupe du faisceau en sortie de R 123
5.11. Taille (FWHM) et déplacement relatif du faisceau en fonction de la fréquence RF 123
5.12. Spectre en entrée/sortie de ADL 124
5.13. Efficacité de la ADL en fonction de la fréquence RF 125
5.14. Schéma expérimental interférométrique pour la mesure du chirp induit par la ADL 125
5.15. Interférence entre les deux bras du Mach-Zhender observé au spectromètre 126
5.16. Représentation des trois étapes pour extraire le chirp d'un spectrogramme grâce au traitement FTSI 128
5.17. TF des franges d'interférences avec et sans ZnSe sur le chemin de la ADL 129
5.18. TF et variation de chirp en fonction de la fréquence RF obtenus par FTSI 129
5.19. Delai de groupe en fonction de la fréquence acoustique ne double passage 130

6.1. Schéma de l'expérience ISRS 133

6.2. Schéma du microscope et de la détection du signal Raman FPH : Filtre Passe Haut - DAQ : Carte d'aquisition - AWG : Générateur de fonction - LIA : Lock-In Ampltifier . . . 134
6.3. Durée d'implusion en sortie de ADL et au plan de l'échantillon en fonction du retard du faisceau "sonde" . . . 135
6.4. Trace temporelle et TF associée pour l'échantillon de BGO . . . 137
6.5. Trace temporelle et TF associée pour l'échantillon de KTP . . . 137
6.6. Trace temporelle et TF associée pour l'échantillon d'Antracène . . . 138
6.7. Schéma de principe d'un cube hyperspectral (images hyperspectrales en bleu et vert) . . . 138
6.8. Images hyperspectrales des échantillons de GBO, KTP et l'Antracène . 139
6.9. Détection séléctive entre l'Anthracène et acétaminophène . . . 140
6.10. Spectres Raman obtenue par TF d'un mélange d'anthracène/acétaminophène pour 150, 100, 50 et 25 d'acquisition de la ADL dans la plage de délais de [2,5 ps-7 ps] . . . 141

A.1. Configuration du LIA. . . . 156
A.2. Configuration du LIA dans LabOne. . . . 156
A.3. Configuration de LabOne pour les mesures de "PSD". . . . 158
A.4. Fonction de transfert : LIA. . . . 158
A.5. Configuration avec filtre passe-bas. . . . 159
A.6. Fonction de transfert : filtre passe-bas. . . . 159
A.7. Configuration avec amplificateur. . . . 160
A.8. Fonction de transfert : amplificateur. . . . 160
A.9. Fonctions de transfert des configurations LIA+50 Ω, LPF et amplificateur. 161
A.10. Montage expérimental pour la mesure du bruit laser. . . . 162
A.11. Capture d'écran de LabOne pour la mesure de PSD. . . . 162
A.12. Capture d'écran de LabOne pour la configuration PSD. . . . 163
A.13. PSD mesurée avec le laser allumé. . . . 163
A.14. PSD mesurée avec le laser éteint (bruit noir). . . . 164
A.15. RIN du laser Tangerine. . . . 165
A.16. RIN de la diode laser à 1550 nm. . . . 166

Liste des tableaux

2.1. Résumé des avantages et inconvénients des OPOs et OPAs. 48

3.1. Résumé : comparaison entre les cristaux LBO et BBO 60

4.1. Dispersion des vitesses de groupe (GVD) pour les matériaux SF11 et ZnSe 90

5.1. Méthodes de retard des impulsions femtosecondes adaptées aux configurations pompe-sonde 103

Liste des acronymes

ADL
Agile Delay Line. 101

ANDi
All Normal Dispersive. 63

AOM
Modulateur Acousto-Optique. 88

AWG
Générateur de fonctions Arbitraires. 89

CARS
Coherent Anti-Stokes Raman Scattering. 22

CRS
Coherent Raman Scattering. 20, 22

FROG
Frequency-Resolved Optical Gating. 43

FWHM
Full Width at Half Maximum. 31, 32

FWM
Four-Wave Mixing. 22

GDD
Group Delay Dispersion. 33

ISRS
Impulsive Stimulated Raman Scattering. 22

OPA
Optical Parametric Amplifier. 28

RF
Radiofréquence. 88

RIN
Relative Intensity Noise. 44

SC
Supercontinuum. 36

SFG
Sum Frequency Generation. 34

SHG
Second Harmonic Generation. 33

SNR
Signal-to-Noise Ratio. 22

sOPO
Single-resonant Optical Parametric Oscillators. 45

SRG
Stimulated Raman Gain. 23

SRH
Raman Stimulated Histology. 86

SRL
Stimulated Raman Loss. 24

SRS
Stimulated Raman Scattering. 22

TF
Transformée de Fourier. 27

1. Introduction : Microscopie moléculaire

1.1. État de l'art

La microscopie joue aujourd'hui un rôle scientifique majeur, en particulier dans les domaines de la biologie, de la médecine, de la pharmacologie et de l'étude des matériaux. Au XVIIe siècle, le premier microscope optique voit le jour, permettant d'observer des structures jusque-là invisibles à l'œil nu, telles que les cellules, les bactéries ou les tissus biologiques. Cette avancée a considérablement accéléré la compréhension des mécanismes biologiques fondamentaux, comme par exemple pour la détection de cellules cancéreuses. Depuis cette invention, de nombreuses technologies ont été développées pour améliorer la précision, la résolution et la quantité d'informations obtenues lors de ces études.

Dans les années 1850, la coloration des échantillons biologiques, dite avec marquage, fait son apparition. Des colorants comme l'hématoxyline et l'éosine sont utilisés pour révéler des détails microscopiques dans les tissus [1]. En 1931, le premier microscope électronique [2] permet d'observer des structures à l'échelle nanométrique, surmontant ainsi la limite imposée par la diffraction de la lumière qui restreint la résolution des microscopes optiques à environ 200 nm [3]. Les années 1950 sont marquées par l'introduction des techniques de microscopie à fluorescence, qui permettent de cibler spécifiquement des structures cellulaires grâce à des fluorophores, ouvrant ainsi la voie à de nouvelles perspectives pour l'étude des cellules vivantes [4]. En 1934, la microscopie à contraste de phase [5], première technique sans marquage, permet d'observer des échantillons transparents en exploitant les différences de phase de la lumière traversant l'échantillon. Bien plus tard, en 1990, la microscopie multiphotonique [6] voit le jour, rendant possible l'imagerie en profondeur des tissus vivants tout en minimisant la phototoxicité. Les années 2000 marquent l'apparition de la microscopie de super-résolution (STED, PALM, STORM) [7], fondée sur des méthodes de localisation de fluorophores ou de déplétion stimulée de l'émission. Enfin, en 2008, la microscopie Raman Cohérente, Coherent Raman Scattering (CRS), est introduite, permettant d'obtenir des images en mesurant les vibrations moléculaires et devenant un outil puissant pour observer des échantillons biologiques vivants en temps réel [8].

Bien que les approches avec marquage aient révolutionné l'imagerie biologique et soient encore largement utilisées, elles présentent certaines limitations/inconvénients.

En effet, les méthodes avec marquage nécessitent l'introduction de colorants, de fluorophores, ou de protéines fluorescentes dans les échantillons. Ces étapes peuvent perturber l'environnement cellulaire ou tissulaire naturel. Par exemple, les fluorophores et colorants peuvent interagir chimiquement avec les structures biologiques, ce qui peut altérer leur comportement ou encore modifier les processus cellulaires. Aussi, ces techniques exigent souvent une préparation longue et complexe. Dans le cas de la coloration histologique, les échantillons doivent être fixés, coupés en fines lamelles, et colorés avec des agents chimiques spécifiques avant d'être observés. La microscopie à fluorescence nécessite généralement une étape de marquage avec des anticorps couplés à des fluorophores ou bien l'introduction de gènes codant pour des protéines fluorescentes (comme la GFP) [9], processus qui peut prendre des jours voire des semaines. Ces étapes de préparation sont non seulement chronophages, mais elles introduisent également des risques d'erreurs ou d'artefacts techniques. En effet, les colorants peuvent ne pas se fixer de manière uniforme sur tous les échantillons, les intensités de fluorescence peuvent varier d'un échantillon à l'autre ou encore les fluorophores peuvent se dégrader au fil du temps à cause du photoblanchiment. La reproductibilité avec ce type de processus est alors à remettre en question car ils introduisent des variations importantes dans les résultats, limitant ainsi la durée d'observation et la qualité des données obtenues.

A contrario les techniques sans marquage, comme la microscopie Raman cohérente [10] exploitent les propriétés optiques intrinsèques des molécules sans avoir à perturber l'échantillon. Cela permet d'imager des échantillons sans préparation chimique préalable, d'avoir la possibilité d'observer des processus biologiques en temps réel et de maintenir l'échantillon dans un état plus naturel, en évitant ainsi les artefacts causés par les marqueurs exogènes et offrant donc une meilleure reproductibilité. En mesurant directement les signaux émis par les molécules elles-mêmes, ces techniques permettent une analyse plus objective. Tous ces arguments s'accompagnent d'un gain de temps considérable ce qui rend la procédure beaucoup plus pratique dans des contextes cliniques ou industriels, où la rapidité est cruciale. Les méthodes sans marquage ont démontré des résultats extrêmement prometteurs [11], permettant d'observer des cellules vivantes sur de longues périodes sans les perturber. Cela les rend particulièrement adaptées aux études de suivi temporel, telles que la différenciation cellulaire, les interactions entre protéines, ou encore la dynamique des lipides au sein des membranes. De plus, ces techniques s'avèrent très efficaces pour l'imagerie en profondeur des tissus vivants, un domaine où les techniques de fluorescence sont souvent limitées par la phototoxicité et la diffusion de la lumière. Ces approches ouvrent également de nouvelles perspectives pour des applications dans lesquelles l'utilisation de marqueurs est impraticable, voire impossible, comme dans l'imagerie des tissus humains in vivo. En milieu clinique, par exemple, il est souvent difficile d'introduire des fluorophores ou des colorants dans le corps humain pour observer des processus en temps réel. Dans ces cas, les techniques sans marquage fournissent une alternative non-invasive tout en offrant des informations chimiques précises sur la composition des tissus ou des échantillons biologiques.

Dans ce contexte, nous orientons notre travail vers la microscopie Raman cohérente. Notre objectif est de développer de nouveaux outils pour améliorer la fiabilité, la reproductibilité, la résolution et la rapidité dans ce domaine. Plus spécifiquement, nous concentrons nos efforts sur la spectroscopie, afin d'analyser les propriétés chimiques et intrinsèques des échantillons. Cela permet non seulement d'identifier des composants moléculaires, mais aussi d'accéder à des informations cruciales sur leur organisation structurelle et leur dynamique.

1.2. Spectroscopie Raman Cohérente

La spectroscopie Raman Cohérente CRS exploite plusieurs phénomènes physiques non-linéaires, obtenus grâce à l'interaction de photons avec les molécules d'un échantillon. L'utilisation de sources de photons synchronisés permet d'exciter des modes vibratoires spécifiques, offrant ainsi une analyse chimique précise de l'échantillon. Parmi les phénomènes exploités, on distingue :

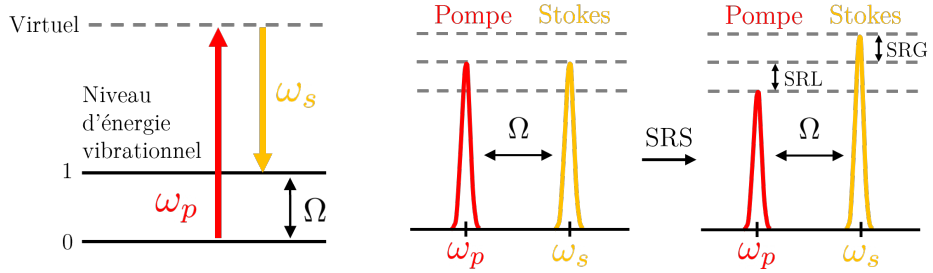
- La Diffusion Raman Cohérente anti-Stokes,Coherent Anti-Stokes Raman Scattering (CARS) [10] : trois photons interagissent avec l'échantillon. Deux photons, dits pompe et Stokes, génèrent une vibration moléculaire cohérente, tandis qu'un troisième photon est diffusé à une fréquence plus élevée, produisant un signal "Anti-Stokes".
- Le Mélange à quatre ondes, Four-Wave Mixing (FWM) [12] : quatre photons interagissent pour générer un signal à une fréquence différente. Bien que cette technique soit sensible aux propriétés des matériaux, son application à la spectroscopie Raman est plus rare.
- La Diffusion Raman stimulée, Stimulated Raman Scattering (SRS) [10] : interaction entre les photons pompe et Stokes, sans produire de signal Anti-Stokes. Au lieu de cela, un transfert d'énergie se produit, déplétant le photon pompe et amplifiant le photon Stokes lorsqu'une vibration moléculaire résonnante est excitée.
- La Diffusion Raman stimulée impulsive, Impulsive Stimulated Raman Scattering (ISRS) [10] : utilise des impulsions laser ultracourtes (cf chap. 2) pour induire des excitations moléculaires impulsives, permettant ainsi d'étudier les dynamiques ultrarapides des vibrations moléculaires à l'aide d'une sonde temporellement retardée.

Dans ce manuscrit, nous nous concentrons spécifiquement sur les techniques SRS et ISRS, qui présentent des avantages significatifs contrairement au deux autres méthodes décrites ci-dessus. En effet, le (I)SRS évite le problème du bruit non-résonant [10] visible dans le CARS et offre une meilleure fidélité spectrale ainsi qu'une grande précision dans l'identification des composés chimiques. De plus, sa linéarité facilite l'analyse quantitative, contrairement au signal quadratique du CARS, ce qui permet un meilleur Rapport signal/bruit, Signal-to-Noise Ratio (SNR), du contraste chimique. Comme expliqué dans le chapitre 2, les sources de photons utilisées pour exciter les molécules sont des lasers à impulsions ultracourtes (de l'ordre de la centaine de fem-

tosecondes). Ainsi, dans les schémas de ce manuscrit, ces sources sont représentées schématiquement par des faisceaux laser et illustrées par une gaussienne, mettant en évidence leur largeur spectrale (cf. chapitre 2).

1.2.1. Principe : Diffusion Raman stimulée (SRS)

Le SRS repose sur une version amplifiée du phénomène de diffusion Raman spontanée [10]. Lorsqu'un faisceau laser pompe, de pulsation ω_p interagit avec une molécule, une petite fraction de la lumière est diffusée à une fréquence différente en raison des transitions vibratoires dans la molécule. Cette diffusion spontanée est cependant très faible et est souvent noyée dans le bruit de fond, ceci rendant sa détection difficile et nécessitant des détecteurs très sensibles. Pour amplifier ce signal, un second laser Stokes, de pulsation ω_s est introduit, permettant une détection plus efficace du signal Raman.



(a) Niveaux vibrationnels pour une transition vibrationnelle Ω

(b) Principe de SRG et SRL avec ω_p et ω_s

FIGURE 1.1. – Schéma de principe du SRS

Comme illustré sur la figure 1.1, les faisceaux laser impulsionnel sont ajustés de manière à ce que leur différence de fréquence corresponde à une fréquence de vibration Ω spécifique à une molécule de l'échantillon. Cette relation est donnée par l'équation suivante :

$$\Omega = \omega_p - \omega_s \tag{1.1}$$

Le faisceau pompe peut alors "stimuler" une transition Raman et transférer de l'énergie à la molécule, amplifiant ou diminuant l'intensité du faisceau Stokes, proportionnellement à la concentration des molécules dans l'échantillon. Pour obtenir le signal Raman résultant de l'interaction avec l'échantillon, le faisceau pompe est filtré, permettant de détecter uniquement la variation d'intensité du faisceau Stokes. Si l'intensité du faisceau Stokes augmente, cela indique qu'il a absorbé de l'énergie du faisceau pompe, phénomène de Gain Raman Stimulé, Stimulated Raman Gain (SRG), cf fig. 1.1b. À l'inverse, si l'intensité du faisceau sonde diminue, cela signifie qu'il transmet de l'énergie au faisceau pompe, un phénomène de Perte Raman Stimulée,

Stimulated Raman Loss (SRL), cf fig. 1.1b. L'équation 1.1 peut être réécrite en fonction des longueurs d'onde pompe et Stokes et on défini alors R_s (exprimé en cm^{-1}) comme le nombre d'ondes Raman :

$$R_s = \frac{10^7}{\lambda_p} - \frac{10^7}{\lambda_s} \tag{1.2}$$

où λ_p/λ_s (exprimés en nm) représentent respectivement les longueurs d'onde du faisceau pompe et du faisceau sonde. Le nombre d'ondes donne directement accès au spectre Raman, représenté de manière arbitraire à la figure 1.2.

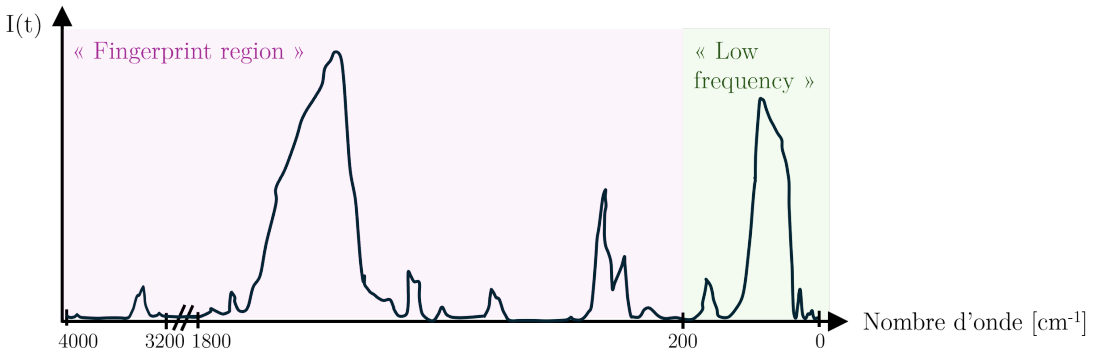


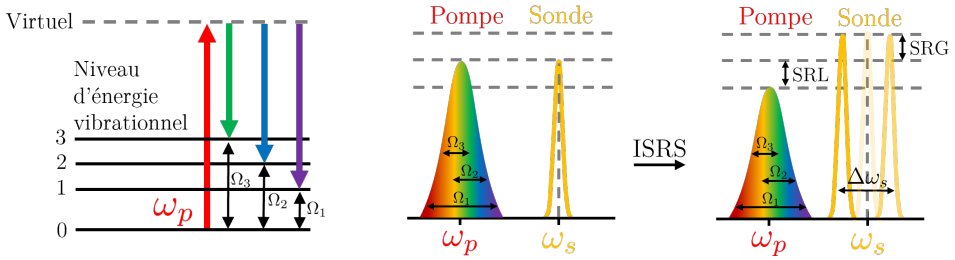
FIGURE 1.2. – Spectre Raman arbitraire

La figure 1.2 et l'équation 1.2 montrent que plus la différence de longueur d'onde entre les faisceaux laser est grande, plus le nombre d'ondes sera élevé. À l'inverse, une faible différence de longueur d'onde entre ces derniers correspond à un faible nombre d'ondes. Cela révèle que les "bas nombres d'ondes Raman" (*Low frequency region*, > 200 cm^{-1}) sont difficilement accessibles par la méthode SRS. En effet, les longueurs d'onde deviennent trop proches spectralement (recouvrement spectral), rendant difficile le filtrage du faisceau pompe lors de la détection (cf sec. 1.2.3). Le SRS est donc une technique robuste pour exciter les vibrations moléculaires strictement < à 200 cm^{-1}), que l'on appelle la *fingerprint region*. Dans l'objectif d'observer un spectre Raman complet, nous introduisons l'ISRS pour la mesure des basses fréquences Raman (> à 200 cm^{-1}).

1.2.2. Principe : Diffusion Raman Stimulée Impulsive (ISRS)

Contrairement au SRS, où deux faisceaux laser interagissent pour stimuler des vibrations spécifiques, l'ISRS utilise une approche différente qui consiste à exciter plusieurs modes vibratoires simultanément. Lors d'un processus d'ISRS [13], une première impulsion ultracourte (de l'ordre de la centaine de femtosecondes et donc dotée d'un large spectre de fréquences, cf chap. 2), excite simultanément de multiples vibrations moléculaires au sein de l'échantillon (cf niveaux vibrationels de la figure 2.3a). Par

exemple, dans les expériences décrites au chapitre 6, pour un laser émettant à 1045 nm avec une durée d'impulsion de 170 fs (environ 10 nm de largeur spectrale), il est possible d'exciter simultanément toutes les fréquences vibratoires comprises entre 0 et environ 160 cm^{-1}. Ce résultat est obtenu à partir de la théorie de la diffusion Raman à basse fréquence décrite dans [13] qui modélise la variation de l'indice de réfraction comme une réponse impulsive.



(a) Niveaux vibrationnels pour des transitions vibratoires $\Omega_{1,2,3}$

(b) Principe de SRG et SRL avec ω_p et ω_s, combiné avec le décalage spectral de ω_s

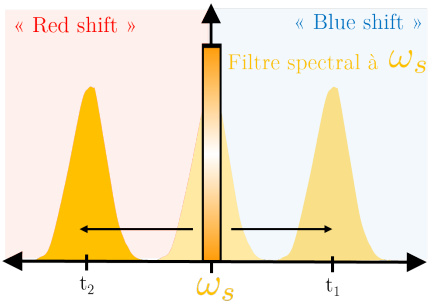
FIGURE 1.3. – Schéma de principe de l'ISRS

Sous l'effet du champ électrique généré par l'impulsion laser, les molécules de l'échantillon subissent des déformations qui induisent l'oscillation des atomes au sein de ces dernières. Cela modifie leur distribution de charges et, par conséquent, leur polarisabilité. La polarisation microscopique du milieu, directement liée à la position des atomes, fluctue en fonction des vibrations moléculaires. Ce phénomène engendre une variation transitoire de l'indice de réfraction dans la région où le faisceau laser est focalisé, un effet connu sous le nom d'indice de réfraction transitoire. Chaque vibration moléculaire induite par l'impulsion laser se traduit par une oscillation de l'indice de réfraction, observable dans la trace temporelle de la figure 1.4b, qui illustre l'évolution de cet indice en fonction du temps après l'excitation de la molécule. Ces oscillations persistent le temps de la vibration cohérente avant de s'atténuer. Mathématiquement, cette variation de l'indice de réfraction peut être modélisée par l'équation de Lorentz-Lorenz, qui exprime l'indice de réfraction $n(t)$ en fonction de la polarisabilité $\alpha(t)$ et de la densité moléculaire N de l'échantillon :

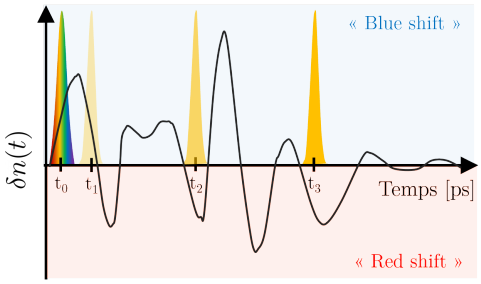
$$\frac{n(t)^2-1}{n(t)^2+2} = \frac{4\pi}{3} N\alpha(t) \tag{1.3}$$

Expérimentalement, la mesure de la trace temporelle des vibrations moléculaires nécessite l'utilisation d'un second faisceau laser, appelé faisceau sonde. Après un délai très court, de l'ordre de quelques picosecondes, ce faisceau est dirigé vers l'échantillon. Il subit alors des modifications dues aux oscillations de l'indice de réfraction générées par les vibrations moléculaires. Parmi ces modifications, on peut notamment observer :

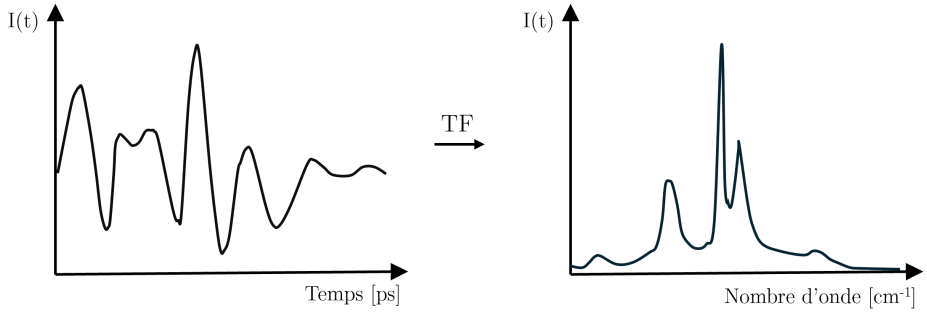
— Changement de phase : La magnitude du changement de phase dépend de l'amplitude des vibrations et du temps écoulé après l'excitation.
— Changement de spectre : élargissement spectral causé par la modulation rapide des vibrations ou un décalage spectral en fonction de l'indice de réfraction relatif.
— Variation d'intensité : modulation de l'intensité du faisceau sonde, due à l'interférence constructive ou destructive avec les ondes vibratoires.
— Effet sur la polarisation : modification de l'orientation de la polarisation du faisceau sonde.



(a) Décalage spectral de ω_s en fonction du changement d'indice de réfraction $\delta n(t)$



(b) Variation arbitraire de l'indice de réfraction en fonction du temps d'excitation de la molécule (trace temporelle) en noir, l'impulsion pompe ω_p et l'impulsion sonde ω_s à plusieurs délai en jaune



(c) Intensité d'un signal Raman arbitraire mesurée au photodétecteur en fonction du temps et transformé de fourier (TF) associé (Spectre Raman)

FIGURE 1.4. – Principe d'ISRS pour l'obtention du spectre Raman

En retardant progressivement l'impulsion sonde par rapport à l'impulsion pompe et en mesurant les changements de phase, de spectre ou d'intensité du faisceau sonde à chaque délai, il est possible de cartographier l'évolution temporelle des vibrations moléculaires excitées. Dans le chapitre 6, nous choisissons de nous concentrer sur la mesure du décalage spectral, car elle permet de distinguer clairement les contributions des différents modes vibratoires grâce à une bonne résolution spectrale. Cette approche est privilégiée par rapport à la mesure des variations de polarisation, de phase ou d'intensité, qui peuvent être affectées par des interférences ou des effets

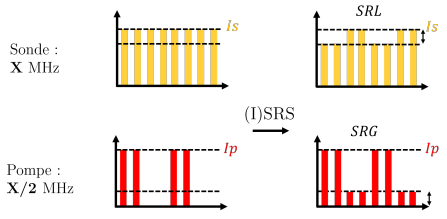
non linéaires, rendant la distinction entre les modes vibratoires plus difficile. Pour cela, un filtre spectral est placé après l'échantillon, ajusté à la longueur d'onde du faisceau sonde (ω_s). Lorsque le faisceau sonde est affecté par une diminution de l'indice de réfraction, sa fréquence diminue également, phénomène connu sous le nom de décalage vers le rouge ou *red shift* (cf fig. 1.4a et 1.4b). En revanche, si l'indice de réfraction augmente, la fréquence du faisceau sonde augmente aussi, entraînant un décalage vers le bleu ou *blue shift* (cf fig. 1.4a et 1.4b). Ces décalages vers le rouge et vers le bleu sont respectivement associés aux processus Stokes et anti-Stokes [10]. Ainsi, à mesure que le faisceau sonde balaie l'échantillon dans le temps, des signaux positifs et négatifs apparaissent (cf fig 1.4b) au cours de l'excitation de la molécule, permettant de suivre la trace temporelle induite par le faisceau pompe. Ces variations se manifestent sur le photodétecteur sous forme de fluctuations d'intensité lumineuse (cf fig 1.4c, partie gauche). En appliquant une Transformée de Fourier (TF) à la réponse temporelle du faisceau sonde, il est possible d'extraire le spectre Raman, révélant ainsi les fréquences vibratoires caractéristiques de l'échantillon (cf. fig 1.4c, partie droite).

1.2.3. Méthode de détection

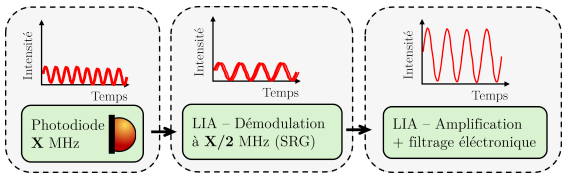
Pour détecter le signal Raman (I)SRS, plusieurs méthodes peuvent être envisagées [10] :

- Détection par absorption différentielle : le signal Raman est détecté en mesurant la différence d'intensité du faisceau sonde avec et sans excitation du faisceau pompe
- Détection par interférences avec un signal de référence : un signal de référence est combiné avec le faisceau sonde après son interaction avec l'échantillon, produisant des interférences détectables
- Auto-hétérodyne : le faisceau sonde sert de référence pour détecter les interférences provoquées par l'interaction SRS, permettant une détection interférentielle des variations de phase et d'amplitude du signal
- Modulation-démodulation : décrite ci-dessous

Ici, pour maximiser le SNR, nous avons choisi la méthode de modulation-démodulation (cf fig 1.5), une technique reconnue pour son efficacité dans la détection du signal Raman stimulé grâce à sa capacité à améliorer le SNR.



(a) Principe de SRL et SRG pour un faisceau pompe modulé à la moitié de la cadence du faisceau sonde



(b) Chaîne de détection pour la méthode de "modulation-démodulation"

FIGURE 1.5. – Principe de détection du signal Raman

Modulation-démodulation :

La modulation-démodulation est une technique largement utilisée dans les expériences (I)SRS pour améliorer la sensibilité et réduire le bruit de fond optique. Elle permet d'isoler le signal Raman, souvent très faible (SNR $\simeq 10^{-6}$), des autres sources de bruit. Durant l'expérience, le faisceau pompe est modulé à une fréquence spécifique. En modulant à une fréquence précise (par exemple, à la moitié de la cadence de mesure), le signal peut être amélioré d'un facteur 2 [14]. Dans notre cas, la modulation est réalisée à l'aide d'un AOM (voir chap. 4, sec. 4.1.1) alimenté par une onde sinusoïdale de fréquence correspondante.

Après avoir traversé l'échantillon, l'interaction entre le faisceau pompe modulé, le faisceau sonde et l'échantillon induit une variation d'intensité dans les deux faisceaux. Le faisceau pompe présente un signal de Raman stimulé en perte (SRL) à la fréquence de modulation (cf fig. 1.5a), tandis que le faisceau sonde présente un signal de Raman stimulé en gain (SRG) à cette même fréquence (cf fig. 1.5a). Un filtrage spectral est ensuite appliqué pour isoler le faisceau sonde, lequel porte la signature du processus Raman stimulé, avant détection via un photodétecteur.

Bien que les sources utilisées atteignent le niveau de bruit *shot-noise* (cf. sec. 2.4.1) à ces fréquences, le signal peut néanmoins être masqué par le bruit de fond optique provenant d'autres sources (thermiques, électroniques et lumineuses). Pour extraire efficacement le signal SRS, nous utilisons un détecteur synchrone (Lock-In Amplifier ou LIA) qui filtre sélectivement les signaux correspondant à la fréquence de modulation, en appliquant un principe de démodulation. En supprimant les composantes à d'autres fréquences, le détecteur isole les variations spécifiques au processus Raman stimulé, augmentant ainsi de manière significative le SNR. De plus, un amplificateur de signal peut être ajouté pour augmenter davantage le SNR.

1.3. Objectif de la thèse

Ce manuscrit décrit la mise en œuvre de nouvelles technologies à haute résolution pour le Raman cohérent (SRS et ISRS), ainsi que leurs applications sur des échantillons biomédicaux et pharmacologiques. La structure du document est organisée comme suit :

- **Chapitre 2** : Introduction à la photonique non linéaire et présentation du contexte des technologies explorées.
- **Chapitre 3** : Développement d'une source paramétrique accordable, Optical Parametric Amplifier (OPA), à bas bruit et haute cadence (40 MHz), conçue pour cibler les fréquences vibrationnelles supérieurs à 200 cm^{-1}.
- **Chapitre 4** : Applications de spectroscopie et d'imagerie SRS pour l'histologie, utilisant cette source OPA.
- **Chapitre 5** : Conception et développement d'une ligne à retard agile ultra-rapide dédiée aux fréquences vibrationnelles inférieures à 200 cm^{-1}.

— **Chapitre 6** : Applications de spectroscopie et d'imagerie ISRS pour des études pharmacologiques, exploitant cette ligne à retard agile ultra-rapide.

Collaboration industrielle

À travers une bourse CIFRE (Conventions industrielles de formation par la recherche), ce travail est une collaboration entre le groupe de biophotonique Mosaic de l'Institut Fresnel (Université Aix-Marseille, France) pour l'étude des processus Raman cohérent et l'entreprise Fastlite By Amplitude (Antibes, France), spécialisée dans les sources ultra-courtes et la métrologie femtoseconde, pour le développement des nouvelles technologies présentées ci-dessus. Ce partenariat donne ainsi lieu à des avancés en photonique ultra-rapide mais aussi en biophotonique.

2. Introduction : Photonique ultrarapide

Les sources de photons utilisées en microscopie (I)SRS sont des lasers fonctionnant soit en mode continu, soit en mode impulsionnel, avec des durées d'impulsions pouvant varier de la femtoseconde (fs) à la picoseconde (ps), selon les applications et la méthode spectroscopique choisie.

2.1. Optique Linéaire et Non-Linéaire

En optique linéaire [15], l'interaction entre la lumière et la matière est proportionnelle au champ électrique incident, générant une polarisation à la même fréquence. Le champ électrique d'une onde électromagnétique monochromatique s'exprime comme suit :

$$E(t) = E_0 \cos\big(\omega t + \phi\big), \tag{2.1}$$

où E_0 désigne l'amplitude du champ électrique, ϕ la phase initiale, et ω la fréquence angulaire, définie par $\omega = \frac{2\pi c}{\lambda}$, avec λ la longueur d'onde et c la vitesse de la lumière. La réponse lumière-matière engendre une polarisation P du matériau, exprimée par :

$$P = \epsilon_0 \chi^{(1)} E, \tag{2.2}$$

où ϵ_0 est la permittivité du vide, et $\chi^{(1)}$ représente la susceptibilité électrique linéaire (d'ordre 1) du matériau. La polarisation ainsi induite oscille à la même fréquence que le champ appliqué. Cela implique que, dans ce régime, le matériau ne produit que des réponses à la fréquence du champ incident.

Les lasers continus (Continuous-Wave, CW) [16] produisent une onde lumineuse stable dans le temps, avec une largeur spectrale extrêmement fine, le spectre étant concentré autour d'une seule fréquence. Cette finesse spectrale s'explique par la relation d'incertitude fréquence-temps :

$$\Delta\nu \cdot \Delta t \geq \frac{1}{2\pi}, \tag{2.3}$$

où $\Delta\nu$ représente la largeur spectrale et Δt, la durée d'observation du signal. Un laser continu, émettant de manière stable, se caractérise par une largeur spectrale étroite, ce qui le rend idéal pour des applications exigeant une source stable en fréquence et sans

fluctuations temporelles. Ces sources fonctionnent grâce au maintien d'une inversion de population stable au sein du milieu amplificateur, assuré par un pompage continu. La stabilité de l'émission laser est atteinte lorsque le gain compense exactement les pertes dans la cavité. Une technologie largement utilisée dans ce contexte est celle des lasers à diode, reconnus pour leur compacité et leur efficacité énergétique. Ces lasers, souvent accordables, couvrent des longueurs d'onde dans le proche infrarouge et sont fréquemment employés comme sources Stokes [17]. Bien que les lasers continus puissent atteindre une puissance moyenne élevée, leur puissance crête reste faible, car le faisceau est distribué de manière constante dans le temps, ce qui constitue une limitation importante dans notre cas.
Lorsque l'intensité lumineuse dépasse un certain seuil, la réponse de la matière cesse d'être proportionnelle au champ incident, et l'interaction entre la lumière et le matériau devient non linéaire. Dans ce contexte, la polarisation P du matériau n'est plus une fonction linéaire du champ E, mais s'exprime comme une série de puissances :

$$P = \epsilon_0 \left(\chi^{(1)} E + \chi^{(2)} E^2 + \chi^{(3)} E^3 + \dots \right) \tag{2.4}$$

où $\chi^{(2)}$ et $\chi^{(3)}$ désignent les susceptibilités non linéaires d'ordre supérieur. Dans ce manuscrit, nous explorerons les phénomènes d'optique non linéaire d'ordre 2 et 3, en mettant particulièrement l'accent sur les effets qui en résultent.

2.2. Propriétés d'une impulsion ultracourte

Pour pallier la faible puissance crête des lasers continus, les lasers impulsionnels ont été développés. Ces dispositifs permettent de générer des impulsions lumineuses dont la durée varie de l'ordre de la microseconde (µs) à la femtoseconde (fs), ce qui leur vaut l'appellation de lasers "ultracourts". En concentrant l'énergie lumineuse dans des intervalles de temps extrêmement brefs, ils atteignent des puissances crêtes très élevées [18], pouvant aller jusqu'à plusieurs gigawatts, voire térawatts dans des cas extrêmes [19]. Ces impulsions sont caractérisées par leur durée, leur puissance crête, leur taux de répétition (cadence), et leur longueur d'onde (ou fréquence). À la sortie de ces sources impulsionnelles, le champ électrique $E(t)$ est généralement modélisé sous la forme d'une impulsion gaussienne [20], comme illustré dans la figure 2.1 :

$$E(t) = E_0 \exp\left(-\frac{t^2}{2\sigma^2}\right) \exp(i\Phi(t)). \tag{2.5}$$

Avec ω_0 représentant la fréquence centrale, σ la largeur spectrale, Δt la durée de l'impulsion à mi-hauteur, Full Width at Half Maximum (FWHM), et $\Phi(t)$ la phase instantanée, les impulsions de forme gaussienne possèdent des propriétés optimales en termes de relation d'incertitude. C'est-à-dire qu'elles minimisent la relation entre la largeur spectrale ($\Delta\nu$) et la durée temporelle (Δt) de l'impulsion. Pour une impulsion

gaussienne, cette relation atteint sa limite théorique idéale, donnée par $\Delta\nu \cdot \Delta t \approx 0.44$ [21].

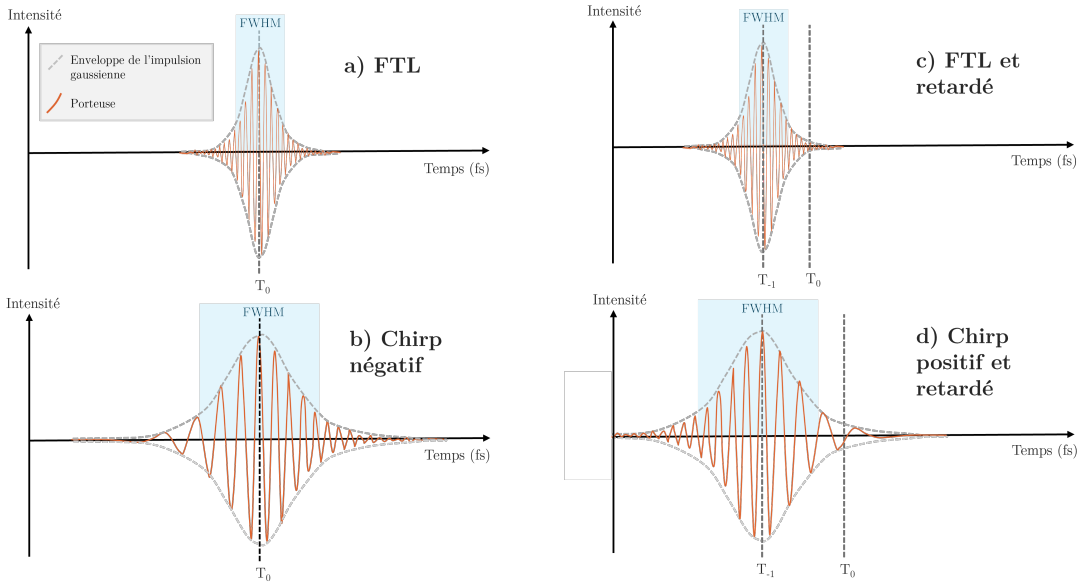


FIGURE 2.1. – Représentation d'impulsions gaussiennes et de leurs porteuses pour différents cas : a) Impulsion FTL, b) Impulsion *chirp*ée négativement, c) Impulsion FTL retardée temporellement, d) Impulsion *chirp*ée positivement et retardée temporellement.

Théoriquement, une impulsion gaussienne est dite Limitée par la Transformée de Fourier, Fourier Transform-Limited (FWHM), lorsqu'elle est temporellement aussi brève que le permet sa largeur spectrale (selon $\Delta\nu \cdot \Delta t$, ce qui correspond à une phase constante ou linéaire en fréquence (cf fig 2.1a). Cependant, dans certains cas, la phase peut varier de manière non linéaire en fonction du temps ($\Phi(t)$) ou de la fréquence ($\Phi(\omega)$). La phase temporelle ($\Phi(t)$) représente la phase instantanée de l'impulsion au cours du temps et décrit comment la phase de l'onde évolue avec le temps. En revanche, la phase spectrale ($\Phi(\omega)$) est définie dans le domaine des fréquences et décrit la variation de la phase en fonction de la fréquence des composantes spectrales de l'impulsion. Cette phase spectrale détermine la manière dont les différentes composantes fréquentielles se combinent pour produire la forme temporelle de l'impulsion. La relation entre $\Phi(t)$ et $\Phi(\omega)$ est donnée par une TF (cf. sec. 2.3.7), exprimée de la manière suivante :

$$E(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{E}(\omega) e^{-i\omega t}\, d\omega \tag{2.6}$$

avec $\tilde{E}(\omega)$ le champ électrique de l'impulsion dans le domaine fréquentiel.

2.2.0.1. Phase spectrale ($\Phi(\omega)$)

) Théoriquement, $\Phi(\omega)$ se décompose en série deTaylor autour de la fréquence centrale ω_0 [[15]]

$$\phi(\omega) = \underbrace{\phi(\omega_0)}_{1} + \underbrace{\frac{d\phi}{d\omega}(\omega-\omega_0)}_{2} + \underbrace{\frac{1}{2}\frac{d^2\phi}{d\omega^2}(\omega-\omega_0)^2}_{3} + \underbrace{\frac{1}{6}\frac{d^3\phi}{d\omega^3}(\omega-\omega_0)^3}_{4} + \dots \tag{2.7}$$

— **1)** $\phi(\omega_0)$ **:** est une constante de phase (elle n'affecte pas la forme de l'impulsion)
— **2)** $\frac{d\phi}{d\omega}$ **:** correspond au délai de groupe τ_g de l'impulsion tel que $\tau_g = \frac{d\phi}{d\omega}$. Il représente un décalage temporel global de l'impulsion. Si l'on fait varier ce terme, on déplace simplement l'impulsion dans le temps sans en modifier sa forme ni sa durée (cf fig. 2.1c et 2.1d).
— **3)** $\frac{d^2\phi}{d\omega^2}$ **:** Ce terme correspond à la dispersion de délai de groupe, Group Delay Dispersion (GDD), qui traduit la variation du délai de groupe en fonction de la fréquence. Il est responsable de l'apparition d'un *chirp* dans l'impulsion. Si le terme de GDD est positif, l'impulsion est chirpée positivement (cf fig 2.1d), tandis que si ce terme est négatif, l'impulsion est chirpée négativement (cf fig 2.1b). Ce terme quadratique élargit également la durée de l'impulsion dans le domaine temporel en étirant la distribution des fréquences dans le temps. L'impact sur la durée d'impulsion est visible sur les figures 2.1a et 2.1b, où la FWHM de l'impulsion varie entre une impulsion FTL et une impulsion chirpée. Cette modulation temporelle due au *chirp* affecte de manière significative les propriétés de l'impulsion, en augmentant ou en diminuant sa durée selon le signe de la dispersion.
— **4)** $\frac{d^3\phi}{d\omega^3}$ **:** correspond à la dispersion de troisième ordre (Third-Order Dispersion, TOD). Ce terme crée une asymétrie dans la structure de l'impulsion et peut introduire des effets complexes de distorsion dans la forme temporelle de l'impulsion mais ne sera pas utilisé dans ce manuscrit.

2.3. Effets Non-linéaires

On définit ci-dessous les différents effets non-linéaires utilisés dans ce manuscrit et tirés de [15, 21, 22].

2.3.1. Génération de seconde harmonique (SHG)

La génération de seconde harmonique, Second Harmonic Generation (SHG), est un processus de conversion non linéaire au cours duquel deux photons de fréquence ω interagissent pour produire un photon de fréquence doublée 2ω. Ce phénomène se manifeste lorsque un faisceau lumineux est focalisé dans un milieu présentant une

susceptibilité non linéaire d'ordre 2 ($\chi^{(2)}$), entraînant une polarisation non linéaire microscopique. Cette polarisation, décrite par l'équation 2.1 développée jusqu'au second ordre, constitue la source de la génération d'un champ électromagnétique à la fréquence 2ω. Pour qu'un champ macroscopique soit effectivement généré par cette polarisation non linéaire, il est impératif de satisfaire les lois de conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement. Cela implique une condition d'accord de phase entre les ondes fondamentales et harmoniques (cf sec. 2.3.3), selon la relation suivante :

$$2\omega = \omega_1 + \omega_2 \tag{2.8}$$

2.3.2. Génération de somme de fréquences (SFG)

La génération de somme de fréquences, Sum Frequency Generation (SFG), est un processus dans lequel deux ondes lumineuses interagissent dans un matériau non linéaire pour produire une troisième onde lumineuse dont la fréquence est égale à la somme des fréquences des ondes incidentes. Ce phénomène appartient également aux processus d'optique non linéaire d'ordre 2. La polarisation non linéaire, oscillant à la fréquence

$$\omega_3 = \omega_1 + \omega_2 \tag{2.9}$$

agit comme une source qui génère une onde électromagnétique à cette nouvelle fréquence. Pour que ce processus ait lieu, la conservation de la quantité de mouvement (accord de phase, cf sec. 2.3.3) doit également être respectée.

2.3.3. Accord de phase

L'accord de phase est une condition essentielle pour l'efficacité des processus non linéaires (dans les matériaux non linéaires). Il implique que les différents vecteurs d'onde interagissant dans le processus non linéaire soient alignés afin de maximiser le transfert d'énergie. Pour que la SHG soit efficace, il est nécessaire que les phases de l'onde fondamentale et de la seconde harmonique soient accordées. Cela signifie que le vecteur d'onde de l'onde fondamentale, $k(\omega)$, et celui de la seconde harmonique, $k_{2\omega}$, sont liés par :

$$k_{2\omega} = 2k_\omega \tag{2.10}$$

Où les vecteurs d'onde k sont liés à l'indice de réfraction n du milieu et à la longueur d'onde λ (elle-même reliée à la fréquence) par la relation :

$$k = \frac{2\pi n}{\lambda} \tag{2.11}$$

Sans cet accord, des déphasages se produisent, entraînant des interférences destructives qui réduisent considérablement l'efficacité du processus. Cette condition

d'accord de phase est obtenue en adaptant l'indice du milieu non-linéaire (orientation, biréfringeance, ...). Pour que la SFG soit efficace, des conditions similaires s'appliquent. Dans ce cas, il est nécessaire de satisfaire la condition suivante :

$$k_{\omega_3} = k_{\omega_1} + k_{\omega_2} \tag{2.12}$$

Dans ce contexte, les fréquences $\omega_{1/2/3}$ restent cohérentes au cours de leur propagation dans le cristal non linéaire, maximisant ainsi l'efficacité de la conversion.
Dans ce manuscrit, nous utilisons uniquement des cristaux non linéaires biréfringents, tels que le BBO (BaB_2O_4, beta-borate de baryum) ou le LBO (LiB_3O_5, triborate de lithium). Contrairement aux matériaux isotropes (comme le verre), où la vitesse de la lumière est identique dans toutes les directions, les cristaux biréfringents possèdent une structure atomique asymétrique. Cela signifie que la lumière polarisée dans différentes directions traverse ces cristaux avec des indices de réfraction distincts. En orientant les polarisations des ondes de manière adéquate, il devient alors possible de manipuler l'indice de réfraction. Pour un signal de fréquence ω, une onde peut être polarisée en mode ordinaire (indice n_o) et l'autre en mode extraordinaire (indice n_e). Cela permet d'atteindre un équilibre tel que $k_{2\omega} \approx 2k_\omega$, et donc le déphase $\Delta k = 0$ (cf sec. 2.3.6) dans le cas de la SHG.

2.3.4. Coefficient non linéaire effectif d_{eff} et indice de réfraction non linéaire n_2

Les propriétés non linéaires d'un matériau, telles que le coefficient non linéaire effectif d_{eff} et l'indice de réfraction non linéaire n_2, jouent un rôle crucial dans les processus optiques non linéaires.

2.3.4.1. Coefficient non linéaire effectif d_{eff}

Le coefficient non linéaire effectif (d_{eff}) est une propriété intrinsèque des cristaux non linéaires, mesurant l'efficacité des processus de conversion de fréquence dans les interactions optiques non linéaires. Il correspond à la composante du tenseur de susceptibilité non linéaire de second ordre, $\chi^{(2)}$, impliquée dans le couplage entre les faisceaux. Ce coefficient dépend de l'orientation des faisceaux par rapport aux axes cristallins et de la condition d'accord de phase. Le coefficient d_{eff} se calcule en tenant compte de l'orientation du cristal par rapport aux faisceaux et de la condition d'accord de phase :

$$d_{\text{eff}} = d_{ijk} \cos(\theta) \sin(\phi) \tag{2.13}$$

avec d_{ijk} représente un élément du tenseur $\chi^{(2)}$ du cristal, et θ et ϕ sont les angles internes du cristal définissant l'alignement du faisceau par rapport aux axes cristallins.

2.3.4.2. Indice de réfraction non linéaire n_2

L'indice de réfraction non linéaire (n_2) décrit la modification de l'indice de réfraction d'un matériau en fonction de l'intensité de la lumière. Il s'agit d'une mesure de la non-linéarité de troisième ordre, $\chi^{(3)}$, qui décrit par l'effet Kerr (cf sec. 2.3.5). Ce phénomène est à l'origine de plusieurs effets non linéaires qui se manifestent dans le domaine spatial et temporel, tels que l'autofocalisation et la génération de Supercontinuum (SC). L'indice de réfraction non linéaire n_2 est lié à la non-linéarité de troisième ordre $\chi^{(3)}$ et peut être exprimé par la relation :

$$n_2 = \frac{3}{4n_0^2\epsilon_0 c}\mathrm{Re}(\chi^{(3)}) \tag{2.14}$$

avec n_0 est l'indice de réfraction linéaire, ϵ_0 est la permittivité du vide, et c la vitesse de la lumière.

2.3.5. Effet Kerr

L'effet Kerr est un phénomène dans lequel l'indice de réfraction d'un matériau dépend de l'intensité de la lumière qui le traverse. Lorsqu'une lumière intense interagit avec un matériau non linéaire, le champ électrique oscillant de la lumière déforme de façon non linéaire la structure électronique du matériau. Cela signifie que la réponse du matériau n'est plus proportionnelle au champ électrique, mais dépend également des puissances supérieures de ce champ. Le terme d'ordre 3 ($\chi^{(3)}$) dans l'expression de la polarisation d'un matériau non linéaire (équation 2.1) est le terme dominant, car il introduit la dépendance de l'indice de réfraction à l'intensité. L'indice de réfraction devient alors :

$$n = n_0 + n_2 I \tag{2.15}$$

avec $I = |E|^2$ l'intensité de la lumière dans le matériau.

2.3.5.1. Auto-focalisation

L'effet Kerr peut générer un profil d'indice de réfraction similaire à celui d'une lentille pour un faisceau laser de forme spatiale gaussienne intense, conduisant à un phénomène d'auto-focalisation (*self-focusing*). Lorsque l'intensité du faisceau est suffisamment élevée, cette variation de l'indice de réfraction induite par l'effet Kerr crée une lentille à l'intérieur du matériau. La partie centrale du faisceau, où l'intensité est maximale, perçoit un indice de réfraction plus élevé que les bords du faisceau. Cela conduit à un profil d'indice de réfraction qui est maximal au centre du faisceau et décroît vers les bords, formant ainsi un profil en « lentille de gradient d'indice ».

2.3.5.2. Modulation de phase auto-induite (SPM – Self-Phase Modulation)

L'auto-modulation de phase (SPM) est l'un des phénomènes non linéaires fondamentaux qui influencent la propagation des impulsions ultracourtes dans les fibres optiques. Ce mécanisme résulte de l'effet Kerr, où l'indice de réfraction du milieu varie en fonction de l'intensité locale du champ électrique. Cette variation d'indice induit une modulation dynamique de la phase de l'impulsion au cours de sa propagation, ce qui se traduit par un élargissement du spectre de l'impulsion.

Mécanisme de l'auto-modulation de phase :

Lorsqu'une impulsion lumineuse de forte intensité traverse un millieu non linéaire, l'effet Kerr induit une augmentation locale de l'indice de réfraction proportionnelle à l'intensité instantanée de l'impulsion. Cette variation se traduit par une modulation temporelle de la phase : les parties de l'impulsion ayant une intensité plus élevée accumulent plus de phase que les parties de moindre intensité. Ce phénomène entraîne une conversion d'énergie spectrale par effet Doppler intra-impulsionnel. Plus précisément, les bords avant et arrière de l'impulsion subissent des décalages de fréquence opposés :

- Sur le front montant de l'impulsion, l'augmentation d'intensité induit une dérivée temporelle positive de la phase, générant ainsi une dérive vers des fréquences plus élevées (décalage vers le bleu).
- Sur le front descendant, l'intensité diminue, entraînant une dérive vers des fréquences plus basses (décalage vers le rouge).

L'élargissement du spectre qui en résulte est symétrique et dépend directement de l'intensité de l'impulsion ainsi que de la longueur de propagation dans la fibre. Plus l'intensité initiale de l'impulsion est élevée, plus l'élargissement spectral est important.

SPM et génération de supercontinuum :

L'auto-modulation de phase est souvent l'un des premiers mécanismes non linéaires à se manifester lorsqu'une impulsion courte pénètre dans un millieu non linéaire. Contrairement à des effets comme la fission de solitons, qui sont spécifiques aux régimes de dispersion anormale, la SPM peut intervenir aussi bien en dispersion normale qu'en dispersion anormale, bien que son effet soit optimisé dans le premier cas. Dans les fibres All Normal Dispersive (ANDi), cf sec 3, la SPM constitue un moteur essentiel de l'élargissement spectral. En l'absence de solitons, la dynamique spectrale repose principalement sur la combinaison de la SPM et du mélange à quatre ondes (FWM), permettant un élargissement progressif et stable du spectre. Dans les fibres à dispersion anormale, l'élargissement spectral induit par la SPM peut être combiné à la formation de solitons et à d'autres interactions non linéaires. Cependant, cet environnement favorise des dynamiques complexes et souvent instables, où l'interaction entre SPM, effet Raman et interactions soliton-soliton peut générer des fluctuations spectrales difficiles à maîtriser.

2.3.5.3. SPM et cohérence du supercontinuum :

Un avantage majeur de l'auto-modulation de phase est qu'elle conserve la cohérence spectrale du signal généré. Contrairement à la fission de solitons, qui peut induire un comportement chaotique dans le supercontinuum, la SPM agit de manière déterministe, garantissant un élargissement spectral contrôlé et répétable. Cependant, la SPM seule ne suffit pas toujours à générer un supercontinuum large et homogène. Son effet est limité par la dispersion de la fibre, qui tend à disperser les composantes temporelles de l'impulsion, réduisant ainsi son efficacité spectrale. Dans ce contexte, elle est souvent couplée à d'autres effets non linéaires, comme la modulation de phase croisée (XPM), l'*optical wave breaking* (OWB) et le mélange à quatre ondes (FWM), qui permettent d'optimiser la conversion spectrale et d'étendre le spectre de manière plus efficace.

2.3.5.4. Effet Raman auto-induit

L'effet Raman résulte de l'interaction entre la lumière et les vibrations moléculaires du matériau constituant la fibre optique. Lorsqu'une impulsion courte et intense se propage, elle peut transférer une partie de son énergie à des longueurs d'onde plus grandes, générant ainsi un décalage spectral progressif vers le rouge. Ce phénomène devient particulièrement prépondérant dans les régimes solitoniques, où l'énergie initialement contenue dans un soliton se redistribue progressivement vers des fréquences plus basses. L'impact principal de cet effet réside dans son influence sur la stabilité spectrale. En régime de supercontinuum basé sur la fission de solitons, l'effet Raman contribue à un éparpillement incontrôlé de l'énergie optique, rendant le spectre généré d'autant plus sensible aux fluctuations des conditions initiales. Cependant, dans des fibres à dispersion normale comme les fibres All Normal Dispersive (ANDi), cet effet est annulé, permettant une meilleure cohérence spectrale.

2.3.5.5. Modulation de phase croisée (XPM – Cross-Phase Modulation)

Lorsqu'une impulsion lumineuse coexiste avec une autre impulsion de longueur d'onde différente, elles peuvent interagir via l'effet Kerr, entraînant une modulation mutuelle de leur phase. Ce phénomène, appelé modulation de phase croisée (XPM), se traduit par des variations de phase qui influencent la propagation et l'élargissement spectral des impulsions concernées. Dans les fibres ANDi, la modulation de phase croisée joue un rôle crucial dans le processus d'élargissement spectral. En modulant dynamiquement la phase des différentes composantes spectrales de l'impulsion, elle favorise une expansion homogène et cohérente du spectre. Contrairement aux mécanismes de fission de solitons, cette dynamique ne repose pas sur un régime chaotique, ce qui contribue à la réduction du bruit spectral et à l'amélioration de la stabilité du supercontinuum généré.

2.3.5.6. Élargissement spectral par mélange à quatre ondes (FWM – Four-Wave Mixing)

Le mélange à quatre ondes est un mécanisme fondamental dans la génération de supercontinuum, particulièrement efficace en régime de dispersion normale. Ce processus repose sur l'interaction entre plusieurs photons, où deux photons incidents interagissent pour générer deux nouveaux photons à des longueurs d'onde différentes, selon des relations précises de conservation de l'énergie et de l'impulsion. Dans les fibres ANDi, le mélange à quatre ondes joue un rôle prépondérant dans la génération de nouvelles composantes spectrales. Contrairement à la fission de solitons, qui engendre un élargissement spectral abrupt et souvent incohérent, le mélange à quatre ondes permet un élargissement progressif et stable du spectre. Cette dynamique garantit une meilleure répétabilité des expériences et une plus grande robustesse vis-à-vis des fluctuations des conditions initiales.

2.3.5.7. *Optical wave breaking* (OWB)

L'*Optical Wave Breaking* (OWB), ou rupture d'onde optique, est un phénomène non linéaire qui se produit lorsqu'une impulsion optique intense se propage dans une fibre optique à dispersion normale. Ce phénomène est analogue à la rupture d'onde en hydrodynamique, où une onde devient instable et se déforme sous l'effet de la non-linéarité. Dans une fibre optique, lorsque l'intensité d'une impulsion est suffisamment élevée, l'effet Kerr devient significatif, ce qui entraîne une modulation de phase non linéaire de l'impulsion. En présence d'une dispersion normale (c'est-à-dire lorsque les composantes de fréquences plus élevées voyagent moins vite que celles de fréquences plus basses), cela conduit à un élargissement spectral asymétrique et à la distorsion de l'impulsion. Avec une puissance encore plus élevée, le profil de l'impulsion devient instable et subit une fragmentation en sous-structures plus complexes, ce qui constitue la rupture de l'onde optique.

Conséquences et Effets :

— Élargissement spectral rapide : Contrairement à une propagation classique où l'élargissement spectral suit une évolution progressive, ici l'élargissement est brusque et asymétrique.
— Formation de structures complexes : L'impulsion se déforme et donne naissance à des sous-impulsions.
— Perturbation du transport d'énergie : Ce phénomène peut limiter l'efficacité de certaines applications en télécommunications et en génération de supercontinuum.

2.3.5.8. Régime solitonique

Un soliton dans une fibre optique est une onde lumineuse qui se propage sans déformation grâce à un équilibre entre la dispersion chromatique et les non-linéarités

optiques. Le régime solitonique apparait en régime de dispersion anormale, c'est à dire lorsque que les fréquences les plus élevées de l'impulsion voyagent plus vite que les fréquence les plus basses. La dispersion chromatique provoque un étalement temporel de l'impulsion car les différentes composantes spectrales voyagent à des vitesses différentes tandis que la non-linéarité optique due à l'effet Kerr provoque un étalement temporal de signe opposé. En régime de dispersion anormale, les effets dispersifs qui tendent à élargir l'impulsion sont compensés par les effets non-linéaires qui tendent à la comprimer maintenant ainsi une impulsion stable appelée soliton optique.

Fission de solitons :

Dans une fibre à dispersion anormale, une impulsion de forte intensité peut se comporter comme un soliton d'ordre élevé, où l'équilibre entre dispersion et non-linéarité est maintenu. Cependant, en présence d'effets de dispersion d'ordre supérieur et d'interactions non linéaires, cette impulsion devient instable et se fragmente en plusieurs solitons de plus faible ordre. Ce phénomène, appelé fission de solitons, est souvent amplifié par l'effet Raman, qui introduit un décalage spectral différentiel entre les solitons nouvellement formés. L'un des effets majeurs de la fission de solitons est la forte instabilité spectrale et temporelle qu'elle induit. En effet, chaque soliton généré peut subir un décalage Raman auto-induit distinct, entraînant une dynamique complexe où les solitons s'éloignent progressivement les uns des autres en fréquence. Cette variabilité spectrale rend difficile la génération d'un supercontinuum stable et répétable, en particulier lorsque les conditions initiales ne sont pas rigoureusement contrôlées.

Interactions soliton-soliton :

Lorsque plusieurs solitons coexistent dans une fibre, ils peuvent interagir via divers mécanismes non linéaires. Ces interactions peuvent être attractives ou répulsives selon leurs phases relatives et leurs positions spectrales. L'un des effets les plus marquants réside dans le décalage différentiel induit par l'effet Raman, qui tend à séparer progressivement les solitons dans le domaine spectral. Cependant, d'autres interactions, telles que des interférences non linéaires ou des variations transitoires de vitesse de groupe, peuvent également influencer leur dynamique. Ces interactions compliquent la formation d'un spectre de supercontinuum cohérent, en introduisant des fluctuations spectrales et temporelles imprévisibles. Dans les fibres PCF, où la génération de supercontinuum repose largement sur la fission de solitons, ces interactions représentent une source majeure d'instabilité. En revanche, dans les fibres ANDi, où le supercontinuum est principalement généré par des effets non solitoniques, ces interactions sont largement absentes, garantissant une meilleure stabilité temporelle et spectrale.

2.3.6. Gain paramétrique dans un Amplificateur Paramétrique Optique (OPA)

Dans un processus paramétrique, tel qu'un amplificateur paramétrique optique (OPA), trois ondes interagissent : la pompe, le signal et l'idler (cf chap 3). Les relations entre les fréquences et les vecteurs d'onde de ces trois ondes obéissent aux lois de conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement tels que

$$\omega_p = \omega_s + \omega_i \tag{2.16}$$

avec $\omega_{p/s/i}$ représentent respectivement les fréquences de la pompe, du signal et de l'idler. De même, la conservation de la quantité de mouvement (accord de phase) implique :

$$k_p = k_s + k_i \tag{2.17}$$

où $k_{p/s/i}$ sont les vecteurs d'onde associés à la pompe, au signal et à l'idler. Nous en déduisons alors la relation de conservation d'énergie en termes de longueurs d'onde :

$$\frac{1}{\lambda_p} = \frac{1}{\lambda_s} + \frac{1}{\lambda_i} \tag{2.18}$$

Amplitude du champ dans un processus paramétrique

Dans l'approximation du « petit signal » (c'est-à-dire lorsque l'onde amplifiée, ou signal, est initialement très faible par rapport à la pompe), l'amplification du signal est proportionnelle à l'intensité de la pompe. Le gain paramétrique G est donné par :

$$G = \exp\big(gL\big) \tag{2.19}$$

où g représente le coefficient de gain (voir section suivante) et L est la longueur du cristal non linéaire.

Coefficient de gain paramétrique g

Le coefficient de gain g peut s'exprimer en fonction des caractéristiques du cristal, de l'intensité de la pompe et de l'onde incidente comme suit :

$$g = \frac{\omega_s d_{\text{eff}}}{n_s n_i c} \big(I_p\big)^{1/2} \tag{2.20}$$

où $n_{s/i}$ désignent les indices de réfraction du signal et de l'idler respectivement, et I_p est l'intensité de la pompe.

Variation de phase dans l'interaction non linéaire Δk

Le déphasage Δk entre les ondes de la pompe, du signal et de l'idler joue un rôle crucial dans l'efficacité du processus paramétrique :

$$\Delta k = k_p - k_s - k_i \tag{2.21}$$

Lorsque la correspondance de phase ($\Delta k = 0$) est parfaitement réalisée, le gain est maximisé. Si $\Delta k \neq 0$, l'efficacité de l'amplification diminue et n'est plus optimisée.

2.3.7. Transformée de Fourier (TF)

La Transformée de Fourier (TF) [23] est un outil mathématique permettant de décomposer une fonction ou un signal en une somme de sinusoïdes ou d'exponentielles complexes de diverses fréquences. Pour un signal temporel $f(t)$, la transformée de Fourier $F(\omega)$ est définie par :

$$F(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} f(t)\, e^{-i\omega t}\, \mathrm{d}t \tag{2.22}$$

où $F(\omega)$ est la transformée de Fourier de la fonction $f(t)$, et $e^{-i\omega t}$ représente une sinusoïde complexe de fréquence angulaire ω. Ce terme permet de décomposer $f(t)$ en ses composantes fréquentielles.

La transformée de Fourier effectue un passage du domaine temporel (ou spatial) au domaine fréquentiel, révélant l'amplitude et la phase de chaque composante fréquenquentielle présente dans le signal d'origine. Cette transformation est réversible : il est possible de revenir au domaine temporel en appliquant la transformée de Fourier inverse, définie par :

$$f(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} F(\omega)\, e^{i\omega t}\, \mathrm{d}\omega$$

Ainsi, la transformée de Fourier et sa forme inverse offrent une représentation complète d'un signal, facilitant l'étude de ses caractéristiques fréquentielles essentielles.

2.3.8. Techniques de caractérisation

Nous présentons ci-dessous les méthodes de caractérisation utilisées dans ce manuscrit.

2.3.8.1. Autocorrélateur

Un autocorrélateur est un dispositif permettant de mesurer la durée d'une impulsion laser ultracourte. Pour cela, l'impulsion traverse un montage de type Michelson [24] : elle est divisée en deux répliques après son passage dans un séparateur de faisceau (idéalement 50/50). L'un des faisceaux traverse une platine de translation, tandis que le chemin optique de l'autre est compensé. Les deux faisceaux passent ensuite à travers une lentille qui les focalise au centre d'un cristal non linéaire. Lorsqu'ils se recouvrent temporellement, ils génèrent de SHG, représentée par un faisceau vert incliné sur la figure 2.2. Seul le faisceau de somme de SFG est détecté, représentée

par un faisceau violet sur l'axe de propagation de la figure 2.2, par un détecteur de photons, tel qu'une photodiode. Cette dernière convertit l'intensité lumineuse en un signal électrique proportionnel, permettant de tracer l'intensité en fonction du décalage temporel entre les impulsions (accessible en ajustant le chemin optique entre les deux bras de l'interféromètre à l'aide de la platine de translation), et donnant ainsi accès à la durée de l'impulsion.

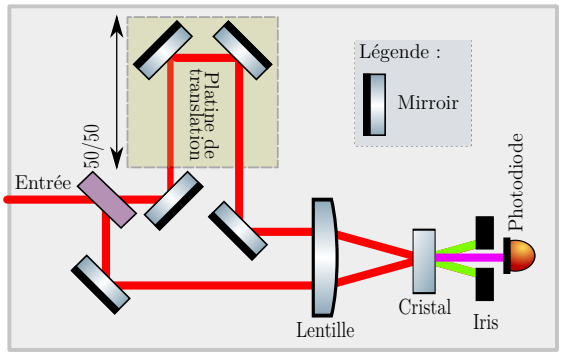


FIGURE 2.2. – Shcéma d'un autocorrélateur

2.3.8.2. FROG

La technologie Frequency-Resolved Optical Gating (FROG) [25] est une méthode avancée de caractérisation des impulsions laser ultrarapides. Le dispositif FROG est similaire à l'autocorrélateur, à la différence que la photodiode est remplacée par un spectromètre. Le signal généré par l'interaction non linéaire est mesuré en fonction du retard et de la fréquence, d'où l'appellation "résolu en fréquence". Ce spectre temporellement dépendant est appelé "trace FROG". L'analyse de cette trace permet de récupérer non seulement l'intensité temporelle de l'impulsion, mais aussi sa phase, offrant ainsi une caractérisation complète de l'impulsion.

2.4. Etats de l'art des sources pour la microscopie (I)SRS

Le travail présenté dans ce manuscrit se concentre exclusivement sur la technologie des lasers impulsionnels, en raison de leur grande adéquation avec les applications nécessitant des intensités instantanées élevées. Dans notre cas, cela concerne principalement l'optique non linéaire et la spectroscopie Raman cohérente pour l'excitation sélective de transitions moléculaires spécifiques. Contrairement aux lasers continus, et comme mentionné précédemment, les lasers impulsionnels émettent des impulsions brèves et intenses. L'une des méthodes les plus courantes pour générer ces impulsions est le *mode-locking* (synchronisation de phase). Ce procédé établit une relation de phase fixe entre les différents modes de résonance présents dans la cavité

laser, permettant leur addition constructive à intervalles réguliers. Ce mécanisme produit des impulsions ultracourtes, typiquement de l'ordre de la femtoseconde (fs) ou de la picoseconde (ps), et se caractérisant par une énergie élevée, ce qui les rend particulièrement adaptées aux phénomènes optiques non linéaires.

Parmi les technologies de lasers impulsionnels, on retrouve :
— **Lasers à fibre** : Ils offrent une puissance moyenne élevée et une grande stabilité. Un exemple notable est celui des lasers à fibre dopés à l'ytterbium (Yb) [26].
— **Lasers à état solide** : Ces lasers sont reconnus pour leur puissance élevée et leur robustesse. On peut citer, par exemple, les lasers Nd :YAG (Néodyme dopé à l'Yttrium Aluminium Grenat) [17] et les lasers Titane :Saphir (Ti :Sapph) [27].

Le choix des lasers impulsionnels pour la microscopie (I)SRS peut inclure l'utilisation d'un tandem de lasers synchronisés, chacun opérant à une fréquence unique ω_p/ω_s. Toutefois, pour améliorer la résolution spectrale et temporelle (cf. chapitres 4 et 6) et permettre un ajustement précis des bandes vibrationnelles spécifiques, il est crucial que l'un des lasers soit accordable en longueur d'onde.

Aussi, un point fondamental pour espérer détecter le signal Raman en fin de chaîne de détection est que le niveau du bruit d'intensité relative, Relative Intensity Noise (RIN), soit aussi bas que possible, idéalement limité au *shot-noise* à la cadence de répétition du laser.

2.4.1. Bruit d'intensité en fréquence

Lorsqu'un laser émet de la lumière cohérente, il est soumis à différentes sources de bruit, avec pour source fondamentale le *shot-noise* (ou bruit de grenaille) [28]. Ce bruit provient des fluctuations quantiques associées à la nature discrète des photons. Lorsqu'on détecte de la lumière, on détecte des photons arrivant aléatoirement. Même si l'intensité lumineuse est constante, le nombre de photons détectés dans un intervalle de temps donné fluctue légèrement autour de sa valeur moyenne, suivant une statistique de Poisson [29] tel que

$$\delta N = \sqrt{N} \tag{2.23}$$

avec N le flux moyen de photons par seconde. Ce bruit se manifeste dans le détecteur lorsqu'un faisceau laser est converti en courant électrique (ici via la photodiode). Le *shot-noise* dépend du courant moyen I_{avg} généré par les photons du laser et de la largeur de bande de détection Δf, et est proportionnel à l'intensité moyenne du faisceau. La puissance de ce bruit est donnée par

$$< i^2 >= \frac{2qI_{avg}}{\Delta f} \tag{2.24}$$

où q est la charge élémentaire de l'électron. La densité spectrale du courant induit par

le laser est définie par :

$$S_i(f) = 2qI_{avg} \tag{2.25}$$

ou q est la charge électrique élémentaire. L'unité de $S_i(f)$ est A^2/Hz. La densité spectrale de la puissance électrique dissipée dans une charge R (la densité spectrale de puissance, en W/Hz) est alors $RS_i(f)$. Le bruit d'intensité relative (RIN) du bruit de phase au *shot-noise* est obtenu en divisant $RS_i(f)$ par la puissance électrique moyenne RI_{avg}^2, de sorte que le RIN du *shot-noise* s'écrit :

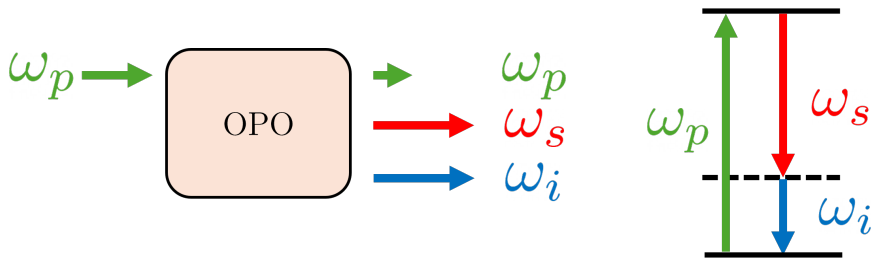
$$RIN_{shot\text{-}noise} = \frac{2q}{I_{avg}} \tag{2.26}$$

Le bruit de phase d'un laser correspond aux fluctuations de la phase de l'onde optique, ce qui peut être interprété comme une instabilité en fréquence. Ce bruit est plus prononcé aux basses fréquences et tend à décroître lorsque la fréquence augmente, suivant généralement une loi en $1/f$ (où f représente le taux de répétition de la source laser). Cette tendance s'explique par le fait que les fluctuations à basse fréquence proviennent souvent de phénomènes lents au sein du système laser, tels que des variations thermiques, des vibrations mécaniques ou des fluctuations de courant dans la source de pompage. À haute fréquence, les effets des fluctuations lentes deviennent négligeables, car elles sont essentiellement "filtrées" par la réponse rapide du détecteur ou de la cavité laser. La composante de bruit qui persiste à haute fréquence est alors le bruit de *shot-noise*, qui est fondamental et indépendant de la fréquence. Ce type de bruit représente ainsi la limite de bruit du laser dans ces plages de haute fréquence. Pour des applications nécessitant une stabilité extrême, comme dans les mesures de spectroscopie Raman stimulée (I)SRS, il est essentiel de travailler à des fréquences élevées (taux de répétition > 1 MHz) afin de minimiser le bruit de phase et de s'approcher du niveau de *shot-noise*.

2.4.2. Sources pour le ISRS

Les oscillateurs paramétriques optiques simplement résonnants, Single-resonant Optical Parametric Oscillators (sOPO), sont aujourd'hui les sources les plus couramment utilisées pour ce type d'application [30, 31]. Ces dispositifs offrent l'avantage d'être accordables en longueur d'onde tout en présentant un RIN proche du *shot-noise*.

2.4.2.1. Oscillateur Parametrique optique simplement résonant (sOPO)



(a) Principe OPO

(b) Niveaux vibrationnels

FIGURE 2.3. – Schémas de principe de l'sOPO

Le sOPO est un dispositif qui permet la génération de longueurs d'onde ajustables à partir d'un laser de pompe. Basé sur le processus de conversion paramétrique dans un milieu non linéaire, l'OPO divise un photon incident, de fréquence ω_p, en deux photons de plus basse énergie : le signal, de fréquence ω_s, et l'idler, de fréquence ω_i. Ces deux photons résultants respectent la conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement (accord de phase), cf fig. 2.3 :

$$\omega_p = \omega_s + \omega_i \tag{2.27}$$

$$\vec{k_p} = \vec{k_s} + \vec{k_i} \tag{2.28}$$

Un sOPO se compose d'une cavité réglable contenant un cristal fortement non linéaire, tel que le BBO, le LBO ou le KTP ($KTiOPO_4$, titanyle phosphate de potassium), qui permet la résonance de l'onde signal. La longueur de la cavité doit être ajustée pour permettre une oscillation stable de l'onde signal à la longueur d'onde désirée. Pour rendre le système accordable, la longueur de la cavité est modifiée afin de respecter les conditions de résonance (c'est-à-dire d'accord de phase). Cela permet d'obtenir un large éventail de longueurs d'onde, couvrant le visible ou l'infrarouge ou, dans certains cas, l'ultraviolet, en fonction du type de cristal et de la longueur d'onde du faisceau de pompe. Ces dispositifs sont généralement pompés par des lasers à fibre Ytterbium (Yb) à verrouillage de mode, établis comme sources fiables d'impulsions picosecondes ou femtosecondes à haut taux de répétition [30].

2.4.2.2. Choix du laser de pompe et de l'sOPO

Pour exciter la bande "Low-frequency" ($> 200\,\mathrm{cm}^{-1}$) du spectre Raman, la durée d'impulsion du laser de pompe doit être comprise entre 100 et 200 fs [13]. Pour répondre aux critères de longueur d'onde, taux de répétition, durée d'impulsion et puissance moyenne des experiences réalisées au chapitre 6, l'offre commerciale oriente

vers un laser de pompe à 800 nm, d'une durée d'impulsion de 170 fs, à une cadence de 80 MHz, avec une puissance moyenne de 3 W et un RIN au *shot-noise* à partir de quelques MHz (Chameleon, Coherent). Ce laser est ensuite couplé à la ligne de retard agile développée dans le chapitre 5 afin d'ajuster le retard temporel. Une partie de ce laser sert à pomper un OPO (Chameleon Compact OPO, Coherent), accordable entre 1030 et 1045 nm, avec une durée d'impulsion de 170 fs, un taux de répétition de 80 MHz, une puissance de 3 W et un RIN au *shot-noise* à partir de quelques MHz.

2.4.3. Sources pour le SRS

Cette fois, nous souhaitons avoir un laser de pompe et un laser accordable rapidement pour pouvoir exciter les bandes vibrationnelles souhaitées (contrairement au ISRS, ou les bandes vibrationelles sont excité grâce au laser de pompe). Deux solutions se présentent alors pour répondre à ces exigences : l'utilisation d'sOPO ou d'Amplificateurs Paramétriques Optiques (OPA) alimentés par un supercontinuum (SC), tous deux étant pompés par un laser ultracourt.

L'inconvénient de ces sOPOs est la nécessité d'une synchronisation à long terme entre la longueur de la cavité du sOPO et le taux de répétition. De plus, en tant que dispositif résonant, les sOPOs nécessitent des miroirs très spécifiques pour fournir une rétroaction optique à la longueur d'onde du signal et/ou de l'idler. La cavité doit également être adaptée pour permettre une correspondance entre les modes spatiaux des ondes paramétriques résonantes et celui de la pompe. Cela se traduit par une mise en œuvre complexe et un coût élevé du système. Les sOPOs nécessitent également un contrôle actif de la longueur de la cavité pour obtenir une puissance de sortie et une stabilité spectrale maximales. Cela augmente les exigences de fonctionnement. Plus récemment, les sOPOs à fibre (FOPO) [32] ont atteint une maturité technique. Ils sont utilisés pour le Raman cohérent (CARS et SRS) avec un RIN proche de la limite du shot noise, mais la puissance de sortie reste limitée [32] (quelques centaines de mW).

C'est dans ce contexte que l'idée de développer un OPA pour ce type d'application est née. Bien qu'exigeant également un alignement précis, les OPA sont moins sensibles aux légers désalignements car ils amplifient simplement le signal existant sans nécessité de cavité, ce qui offre une meilleure stabilité à long terme. La bande passante spectrale est également plus large, surtout lorsqu'ils sont pompés avec un SC, et leur accordabilité est plus rapide (mouvement mécanique). Enfin, en raison de la simplicité de leur architecture, les OPA sont généralement plus compacts et moins coûteux. Les avantages et les inconvénients des sOPO et OPA sont résumé au tableau 2.1
Bien que très avantageux, le principal problème des OPA dans ce contexte est la disponibilité d'une source de SC synchronisée avec des impulsions de l'ordre du nanojoule (nJ). En effet, la génération de SC est généralement obtenue par filamentation [33] dans des cristaux non-linéaires. Dans le régime des impulsions nJ, il est nécessaire d'utiliser des fibres photoniques (cf. chapitre 3) pour générer un SC avec si peu d'énergie par impulsion. De plus, pour maintenir un RIN proche du *shot-noise*, ces fibres doivent

Critère	sOPO	OPA
Alignement	Alignement très précis requis	Alignement précis, moins sensible aux légers désalignements
Stabilité	Moins stable à long terme (présence de cavité)	Plus stable (pas de cavité nécessaire)
Bande passante	Faible	Plus grande
Amplification	Aller-retour	Simple passage
Coût	+	-
Architecture	Complexe	Simple

TABLEAU 2.1. – Résumé des avantages et inconvénients des OPOs et OPAs.

minimiser le bruit additionnel. Ces fibres photoniques (All Normal Dispersive Fiber, ANDi) sont des technologies très récentes, ce qui explique l'impossibilité antérieure de réaliser des OPA nJ et *shot-noise*. Dans ce contexte nous développons une source OPA fonctionnant à haut taux de répétition (régime nJ), pompé par un laser ultracourt.

Le choix du laser de pompe de l'OPA est crucial pour la réussite du développement de la source. Nos choix se sont portés sur :

— Les impulsions doivent avoir une durée inférieure à 200 fs [34] pour obtenir une résolution temporelle élevée pour le SRS, une large bande spectrale et un pompage efficace de l'OPA.
— Une longueur d'onde de 1030 nm car elle est adaptée à de nombreux cristaux non linéaires courament utilisés dans les OPA, comme LBO, BBO et YAG ($(Y_3Al_2(AlO_4)_3$, grenat d'yttrium et d'aluminium).
— Une puissance moyenne élévée (superieur à une dizaine de Watts) pour pomper efficacement l'OPA et obtenir des signaux amplifiés avec une intensité d'environ 1 W. Une puissance de sortie élevée améliore la qualité du signal et la résolution spectrale pour le SRS.
— Un taux de répétition du train d'impulsion élevée (de la dizaine de MHz) pour obtenir une stabilité en énergie extrême (RIN au *shot-noise*). L'objectif est d'avoir un RIN limité par la statistique de photons, et ceux à la moitié de la fréquence de répétition, pour optimiser la detection du signal SRS (cf chap 4).

Le choix du laser de pompe de l'OPA s'est fait en reprenant les conditions présentées précédemment. Les lasers Ti :Sapph, bien qu'idéaux pour générer des impulsions ultracourtes, requièrent un pompage optique par un autre laser comme le Nd :YAG, augmentant ainsi la complexité et le coût du système. De plus, il n'existe pas de laser Ti :Sapph à une puissance moyenne supérieure a quelques dizaine de Watts. Les lasers Nd :YAG, quant à eux, produisent des impulsions plus longues (~1 ns) à une longueur d'onde de 1064 nm. Les options privilégiées sont soit les lasers à fibre, qui offrent une bonne stabilité et des impulsions courtes, soit les lasers dopés à l'Ytterbium, capables de générer des impulsions extrêmement courtes (souvent inférieures à 200 fs), avec une longueur d'onde centrale à 1030 nm, une puissance de sortie élevée et une compacité notable. Grâce à leur pompage par diode, ces lasers sont réputés pour leur stabilité et leur fiabilité, offrant une opération stable et une longue durée de vie, réduisant ainsi les besoins en maintenance. Récemment, des oscillateurs de ce type ont été développés pour une cadence élevée (20 MHz, 40 MHz, 80 MHz) avec une stabilité en energie extrême, atteignant le *shot-noise* à partir de quelques MHz. Le laser de pompe

choisi est donc un oscillateur dopé à l'Ytterbium (Flint, Light Conversion) avec les caractéristiques suivantes : longueur d'onde centrale de 1026 nm, 20 W de puissance moyenne, impulsions de 160 fs et cadence de 40 MHz limitée au *shot-noise* à partir d'1 MHz, avec une technologie à verrouillage de modes par effet Kerr.

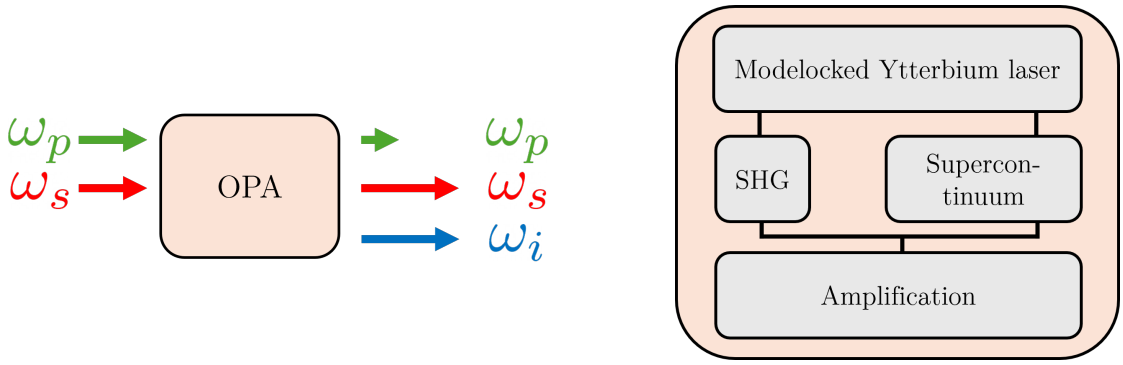
Au regard de l'état de l'art, l'originalité de cette source femtoseconde tient à sa cadence de répétition particulièrement élevée pour un OPA - et à sa forte puissance moyenne. L'objectif est de produire, à partir du laser de pompe, des impulsions de durée <100 fs et de longueur d'onde accordable entre 750 nm et 1 µm, avec une puissance moyenne >1W, tout en conservant les propriétés du bruit de phase du laser de pompe.

3. Amplificateur Paramétrique Optique bas bruit à 40MHz

Dans ce chapitre, les étapes de développement de l'Amplificateur Paramétrique Optique (OPA) à 40 MHz utilisé pour les mesures de Diffusion Raman Stimulée (SRS) (cf chap. 1 et 4) sont décrites. Le SRS est un phénomène optique non-linéaire nécessitant deux ondes : une onde Pompe (de fréquence ω_p) et une onde Stokes (de fréquence ω_s). Pour exciter les différentes vibrations moléculaires au sein d'un milieu, ces deux ondes doivent être suffisamment intenses (quelques centaines de W/cm^2). En pratique, pour atteindre un tel régime, des impulsions ultracourtes (femtosecondes (fs) à picosecondes (ps)) sont utilisées. Aussi, les ondes doivent être synchronisées temporellement et avoir un bruit *shot-noise* (cf chap. 1). Les spécificités mentionnées ci-dessus ont orienté fortement les options de développement de cette source.

3.1. Théorie de l'OPA

L'OPA développé est un OPA chirpé, c'est-à-dire une forme particulière d'OPA [21] qui, au lieu d'amplifier une unique longueur d'onde, amplifie les différentes longueurs d'onde d'une impulsion chirpée. Cela permet d'augmenter considérablement la puissance des impulsions [35] tout en maintenant un système accordable en longueur d'onde. En disposant d'un spectre large à l'entrée d'un OPA, la longueur d'onde à amplifier peut être sélectionnée (fig. 3.2). La pompe et le *seed* sont générés à partir du laser 1030 nm (cf sec. 2.4.3). Le faisceau de pompe est généré à partir de la SHG et le faisceau *seed* grâce à la génération d'un SC (génération de nouvelles longueurs d'onde). Ces deux faisceaux, pompe et *seed*, sont ensuite recombinés pour obtenir l'amplification. Les processus décrits ci-dessous sont inspirés de [36], [21], [37].



(a) Processus d'amplification paramètrique optique (OPA) (b) Schéma de l'OPA

FIGURE 3.1. – Schémas simplifiés de l'OPA

3.1.1. Génération de supercontinuum (SC)

La génération de SC est un phénomène qui résulte de différents processus non-linéaires [38]. En focalisant un faisceau intense dans un matériau non-linéaire d'ordre trois ($\chi^{(3)}$, la susceptibilité non-linéaire du troisième ordre) son spectre s'élargit très fortement et on obtient un continuum de lumière blanche allant de quelques centaines de nanomètres à quelques micromètres (environ une octave). En fonction du type de matériau utilisé et des paramètres de couplage, plusieurs effets peuvent se produire simultanément au sein du matériau non-linéaire :

— l'automodulation de phase (SPM) liée à l'effet Kerr : cf chap. 2
— la dispersion : cf chap. 2
— le mélange à quatre ondes (FWM) : cf chap. 1
— ou encore de la diffusion Raman stimulée, également due au transfert d'énergie entre photons et vibrations moléculaires, créant de nouvelles fréquences.

La génération de supercontinuum (SC) dans des cristaux non linéaires tels que le YAG ou le PPLN repose sur le phénomène de filamentation [33]. Ce dernier correspond à une propagation du faisceau laser sans diffraction apparente sur une certaine distance dans un milieu transparent. Cette absence de diffraction est due à l'effet Kerr optique (cf. chap. 2), qui compense l'effet de la diffraction. Lorsqu'un champ laser intense est présent, l'indice de réfraction du matériau non linéaire varie de manière transverse, générant une lentille convergente. L'autofocalisation (cf. chap. 2), combinée à la défocalisation plasma, résulte en une alternance entre le *self-focusing* (effet Kerr) et l'autofocalisation. Cette dynamique permet au faisceau de maintenir un diamètre très réduit (quelques μm) sur une distance beaucoup plus longue (de l'ordre du millimètre) que la zone de Rayleigh. Ce confinement spatial favorise l'apparition d'effets non linéaires supplémentaires, induisant une modulation non linéaire de la phase qui élargit le spectre, ce qui est à l'origine de la génération du SC. Par ailleurs, la dispersion chromatique du milieu provoque une propagation à des vitesses différentes des diverses longueurs d'onde composant l'impulsion. Ce phénomène induit un étalement temporel de l'impulsion, désynchronisant ainsi les différentes composantes spectrales

(phénomène de *chirp*).

3.1.2. OPA chirpé

Le principe de l'OPA repose sur un transfert d'énergie/puissance entre une onde pompe (ω_p) et une onde signal (ω_s). L'idée est de propager un faisceau laser à amplifier (ω_s) avec un faisceau pompe (ω_p) de longueur d'onde plus courte dans un cristal non-linéaire [21]. Les photons de la pompe (ω_p), de haute énergie, sont convertis en deux photons de plus basse énergie dans le cristal non-linéaire. À l'angle d'accord de phase (cf chap. 2) et pour une tolérance de Δk de quelques degrés, ce processus conserve l'énergie et le moment (cf fig. 3.1a) tel que

$$\omega_p = \omega_s + \omega_i \tag{3.1}$$

$$k_p = k_s + k_i \tag{3.2}$$

où $\omega_{p/s/i}$ sont respectivement les fréquences des photons de pompe, signal et Idler et $k_{p/s/i}$ sont respectivement leurs vecteurs d'onde. Dans le cas de l'OPA chirpé, la sélection en longueur d'onde (différentes ω_s en sortie du milieu amplificateur) se fait en optimisant les conditions d'accord de phase et en ajustant le délai temporel entre la pompe et un SC chirpé, ceci permet de sélectionner la longueur d'onde du SC à amplifier (cf fig. 3.2).

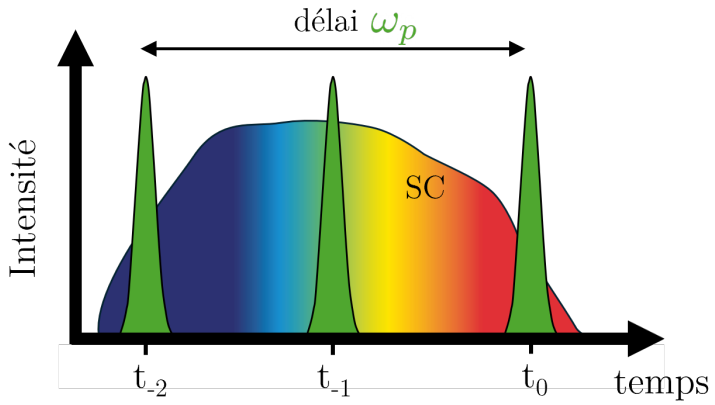


FIGURE 3.2. – Principe d'amplification et selection en longueur d'onde avec un faisceau signal SC chirpé

3.1.3. Cristaux non-linéaires

Pour des OPA pompés avec une impulsion pompe à 515 nm, seuls 4 cristaux non-linéaires sont à considérer compte tenu de leur maturité technologique, de leur disponibilité commerciale et de leurs performances optiques : le triborate de lithium

(LiB_3O_5, LBO), le β-borate de barium (BaB_2O_4, BBO), le dihydrogénophosphate de potassium (KDP) et le niobate de lithium retourné périodiquement (PPLN). Le KDP est d'emblée écarté en raison de son absorption à 1030 nm et donc chauffe à haute puissance. Contrairement aux deux cristaux massifs (BBO et LBO), le PPLN est un cristal structuré. Il se présente, en général, sous une forme dopée MgO pour limiter les effets photoréfractifs (MgO :PPLN). L'intérêt du PPLN pour cette amplification paramétrique est multiple :

— Il présente une forte non-linéarité (14 pm/V vs 0.85 pm/V pour le LBO) permettant, en principe, de travailler à basse intensité sur le cristal
— Absence de décalage spatial : la lumière se propage suivant un axe cristallographique
— Absence d'accord de phase par biréfringence : on peut chauffer/translater le cristal pour atteindre le quasi-accord de phase [21])
— Le PPLN a été utilisé dans les OPA pompé à 515 nm à haute cadence [39]

Le PPLN présente également des contraintes de fabrication qui limitent l'ouverture transverse à typiquement 3 mm. Cette dimension est compatible avec un faisceau de pompe Gaussien de ~1.2 mm. Pour une intensité crête de 50 GW/cm2, ce diamètre permet de pomper avec une énergie maximale de 100 µJ, ce qui est satisfaisant. Cependant le recouvrement temporel dans les structures de PPLN en quasi-accord de phase de type I pour entre un faisceau pompe de 515 nm et un faisceau signal entre 800 nm et 1500 nm, varie de 0.7 à 1 ps/mm. C'est typiquement 5 à 10 fois plus que dans le BBO ou le LBO. Le laser 1030 nm ayant une durée d'impulsion de 100 fs à 515 nm, il est nécessaire de travailler avec des cristaux de PPLN extrêmement courts pour préserver le recouvrement temporel entre les impulsions de pompe, signal et *Idler* : de 100 à 150 µm typiquement. C'est une contrainte forte, car des cristaux non-linéaires aussi fins ne peuvent être obtenus compte tenu du processus de fabrication du PPLN. Il est bien entendu possible de travailler avec des cristaux longs mais seule la partie centrale contribuera au processus paramétrique. De plus, il reste à déterminer si les autres effets non-linéaires (photoréfractifs, SHG parasite, etc), qui, eux, se produisent sur toute la longueur du cristal, ne l'emportent pas sur l'effet d'amplification paramétrique recherché. En raison de son faible recouvrement temporel comparé aux cristaux de BBO et LBO, le cristal de PPLN ne sera pas utilisé dans l'OPA. Pour les deux cristaux restant (BBO et LBO), l'absorption, l'épaisseur, le seuil de dommage, la transparence, le gain paramétrique et le rendement maximal seront étudiés afin de déterminer le cristal de choix pour l'OPA.

Absorption et pompage à 515nm

Dans l'OPA, la longueur d'onde de pompe est de 515 nm et l'absorption linéaire à cette longueur d'onde par le cristal non-linéaire est une caractéristique importante. La comparaison entre BBO et LBO à 515 nm a été publiée par [40]. Le LBO semble avoir une absorption à 515 nm environ 10 % inférieure au BBO. On souhaite obtenir un signal de longueur d'onde entre 0.75 μm et 1 μm. La conservation des fréquences optiques impose une relation entre les longueurs d'onde signal (<1.03 µm) et *Idler*

(>1.03 µm) tel que décrit au chapitre 2 [21] :

$$\frac{1}{0.515} = \frac{1}{\lambda_s} + \frac{1}{\lambda_i} \tag{3.3}$$

L'absorption de l'*Idler* dans le cristal limite indirectement la longueur d'onde signal minimum à ~640 - 650 nm et la plage spectrale d'accordabilité des OPA pompés à 515 nm se situe typiquement entre 640 nm et 2.6 μm (bord de bande) dans le LBO.

Coefficient non-linéaire effectif d_{eff} et Indice de réfraction non-linéaire n_2

Nous suivons ici la présentation faite dans [21]. Le coefficient non-linéaire effectif d_{eff} (cf chap. 2) du cristal représente l'efficacité du couplage entre les faisceaux optiques pompes et signal dans le processus d'amplification paramétrique. Il dépend du tenseur de susceptibilité non-linéaire $\chi^{(2)}$, ainsi que de l'alignement du cristal et des faisceaux pompe et signal pour satisfaire la condition d'accord de phase. Le BBO a un coefficient non-linéaire relativement élevé, avec d_{eff} atteignant environ 2,05 pm/V dans certaines orientations optimales pour la génération de seconde harmonique ou l'amplification paramétrique. Bien que présentant un d_{eff} plus faible, le LBO atteint des valeurs de 0,85 pm/V, mais est apprécié pour sa grande stabilité thermique et ses propriétés d'accord de phase, ce qui en fait un choix adapté pour des sources de forte puissance.

L'indice de réfraction non-linéaire n_2 (cf chap. 2) est un paramètre clé dans les processus de troisième ordre, tels que l'auto-modulation de phase (cf chap. 2), qui influence indirectement les performances de l'OPA. Un n_2 élevé peut entraîner des effets indésirables comme l'autofocalisation (cf chap. 2), surtout à des intensités lumineuses élevées. Le BBO à un n_2 relativement faible, autour de $2{,}2 \times 10^{-16} cm^2/W$, ce qui en fait un choix intéressant pour éviter les effets de distorsion dus à l'intensité. Le LBO quant à lui présente un n_2 encore plus faible, autour de $1{,}1 \times 10^{-16} cm^2/W$, ce qui minimise davantage les effets non-linéaires indésirables à haute puissance, le rendant particulièrement adapté pour des applications de forte puissance et haute énergie.

Seuil de dommage

Le gain paramétrique ainsi que la bande spectrale croissent avec l'intensité de la pompe. Il est donc favorable de travailler avec un éclairement de pompe maximal. Cet éclairement est en pratique limité par le seuil de dommage du cristal non-linéaire (ou celui des traitements anti-reflet). D'autres effets peuvent également limiter l'éclairement comme la saturation de l'OPA, les effets non-linéaires indésirables (fluorescence paramétrique, SPM, lentille Kerr, absorption à deux photons) dans le cristal d'OPA ou encore les effets thermiques (absorption, effets photoréfractifs, etc). Le seuil de dommage reste cependant la principale limite physique. Selon le fabricant Eksma (Lituanie), les seuils de dommage sont :

— Pour le BBO : ~ $50\, GW/cm^2$ pour des impulsions de 1 ps à 1064 nm

— Pour le LBO : pas de valeurs publiées à 1 ps mais supérieur à 100 GW/cm^2 d'après le retour d'expérience à Fastlite sur les systèmes OPCPA

Transparence

Les plages de transparences des deux types de cristaux sont (plage totale de transmission, même partielle) :

— LBO : 155 – 3200 nm
— BBO : 189 – 3500 nm

En réalité, le BBO est très transparent de ~250 nm à ~ 2.3 µm et en dehors de cette plage il commence à absorber [41]. Le LBO présente des caractéristiques proches mais avec un "cut-off" plus bas dans l'Ultra-violet (UV) ainsi que dans l'infrarouge (~ 2.5 µm). L'absorption infrarouge du LBO est détaillée dans [42].

Gain paramétrique

L'épaisseur optimale des cristaux non-linéaire résulte d'un compromis entre plusieurs critères :

— La largeur spectrale du gain paramétrique (cf chap. 2) : celle-ci varie, au premier ordre, comme l'inverse de l'épaisseur du cristal. Il faut donc privilégier des cristaux fins (100 à 500 μm) pour amplifier des impulsions les plus courtes possibles [21] ;
— Le gain paramétrique linéaire : le gain à petit signal croît exponentiellement avec l'épaisseur du cristal et avec la racine carrée de l'intensité crête. Un gain minimal impose donc une épaisseur minimale de 1 à 5 mm [36] ;
— La longueur quasi-statique : le recouvrement temporel des impulsions pompe/signal/*Idler*. Le cristal doit rester plus fin que la longueur d'interaction quasi-statique soit de 10 à 20 mm [43] ;
— La longueur de saturation : idéalement, l'épaisseur du cristal doit être adaptée afin d'extraire autant d'énergie que possible de l'impulsion de pompe – sans néanmoins dégrader le profil spectral ni le profil spatial, les valeurs se situent autour de 5 à 10 mm [20].

Rendement maximal

Indépendamment des accords de phase et du recouvrement spatio-temporel, il est important de considérer les rendements possibles d'un processus OPA. Ceux-ci sont décrits par les relations de Manley-Rowe [21] à l'équation 3.4. En termes d'énergies par impulsion, ces relations s'écrivent :

$$\frac{E_s}{E_p} = \frac{\lambda_p}{\lambda_s}, \quad \frac{E_i}{E_p} = \frac{\lambda_p}{\lambda_i} \tag{3.4}$$

où $\lambda_{p,s,i}$ sont les énergies par impulsion pour les faisceaux pompe, signal et *Idler* et $\lambda_{p,s,i}$ sont les longueurs d'onde associées aux faisceaux pompe, signal et *Idler*. Ces

équations imposent une relation entre $E_{p,s,i}$ et les profils gaussiens de faisceaux qui limitent le rendement quantique tel que

$$\begin{cases} \lambda_p E_p = \eta \lambda_s \Delta E_s \\ \lambda_p E_p = \eta \lambda_i \Delta E_i \end{cases} \tag{3.5}$$

où η = 0.24 le facteur de rendement quantique de référence utilisé à Fastlite (expériences passées montrant que ce paramètre est en adéquation avec les résulats obtenus) et $\Delta E_{s,i}$ est la variation de l'énergie des faisceaux signal et *Idler*. η est un chiffre empirique qui indique la fraction maximale d'énergie de la pompe qui peut être convertie en signal et *Idler*, sous des conditions idéales (faisceaux gaussiens, accord de phase parfait, recouvrement spatial et temporel optimal, etc.). En pratique, cette valeur est rarement atteinte à cause d'imperfections dans l'alignement, les pertes dans le cristal, les effets de vitesse de groupe, et l'absorption des ondes signal et *Idler*. $\Delta E_{s,i}$ est décrit comme une variation et non pas comme une simple dépendance $E_{s,i}$ car l'amplification générée dans le cristal est caractérisée par une variation d'énergie (ΔE) entre le début et la fin du processus d'amplification. L'utilisation de ΔE_s et ΔE_i dans les équations reflète donc la contribution spécifique du processus OPA à l'amplification de l'énergie. Le rendement de conversion théorique (pompe vers signal d'intérêt) d'un OPA est compris entre 4.75 % (à 2.6 μm) et 19.3% (à 640 nm). En pratique (Fastlite) ces nombres ne sont pas atteints en dehors de la plage 680 nm – 2.3 μm à cause de l'absorption du signal et de l'*Idler*.

3.1.4. Décalage spatial et angulaire

Décalage spatial (*walk-off*)

À une cadence de 40 MHz, une puissance moyenne de 9 W à 515 nm correspond à une énergie par impulsion de 225 nJ : c'est le faisceau pompe que nous allons utiliser dans notre montage. Afin d'atteindre sur le cristal non-linéaire un éclairement cible suffisant (100 GW/cm2 cf sec. 3.1.3) il est nécessaire de focaliser le faisceau de pompe sur une petite surface. Dans l'approximation « toute gaussienne », la formule liant les paramètres de faisceau à l'intensité crête [20] est :

$$I \cong 0.65 \frac{4E}{\pi D^2 \tau} \tag{3.6}$$

avec D = ~2 mm le diamètre du faisceau à $1/e^2$ à 1030 nm en sortie de laser, τ = 100 fs (à 515 nm, soit après SHG) la durée d'impulsion et E = 200 nJ/impulsion l'énergie d'une impulsion. Il est donc nécessaire de focaliser la pompe avec un diamètre de 40 µm pour atteindre un éclairement de 100 GW/cm^2 sur le cristal non-linéaire. La relation entre diamètre incident (w_0) à $1/e^2$ d'un faisceau et son diamètre (D) au foyer d'une lentille de focale f est dans l'approximation gaussienne :

$$\omega_0 = 4 \frac{\lambda f}{\pi D} \tag{3.7}$$

Pour λ = 1030 nm . Il est donc nécessaire de focaliser le faisceau avec lentille au minimum de focale f de 150 (éclairement minimal) et au maximum de 250 mm (seuil de dommage du cristal). Pour ce diamètre de faisceau sur le cristal, la longueur de Rayleigh est de

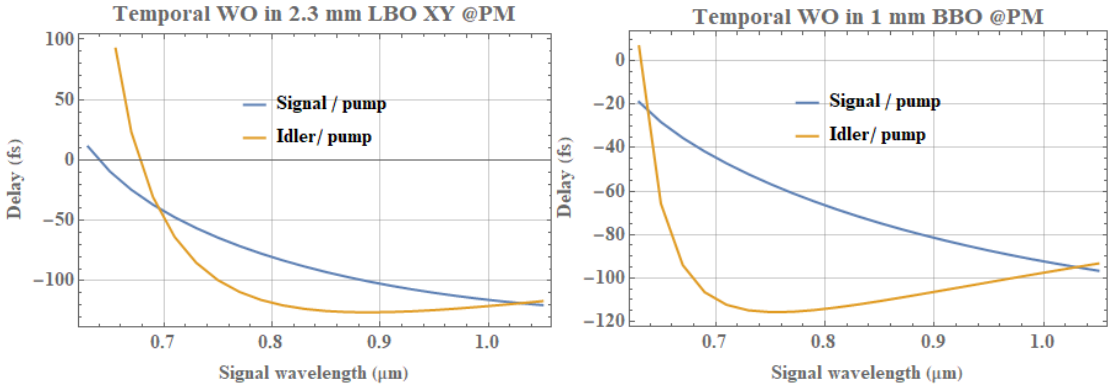
$$L_g = \frac{\pi\omega_0^2}{\lambda/n}$$

ce qui équivaut à 16.2 mm dans du BBO (n=1,66) et 15.6 mm dans du LBO (n=1,6).

Le décalage spatial dans les cristaux de BBO et de LBO dépend de la biréfringence et de la coupe cristalline. Ce paramètre dépend ici faiblement de la longueur d'onde si bien que le décalage spatial peut se résumer à une seule valeur (calculée pour un accord de phase à 800 nm) : Pour le BBO : ~ 56 mrad et pour le LBO : ~ 7 mrad (à 20°C). Le décalage spatial est 10 fois inférieur dans LBO que BBO dans les conditions d'accord de phase d'intérêt. Ce résultat s'explique par la plus faible biréfringence de LBO mais aussi par le fait que l'accord de phase dans LBO se produit au voisinage d'un axe propre. Concrètement, le décalage spatial induit un déplacement relatif du faisceau de pompe de : 56 µm pour un BBO de 1 mm et 16 µm pour un LBO de 2.3 mm. Compte tenu du diamètre de faisceau de pompe envisagé (40 µm), le décalage spatial est un facteur fortement limitant qui favorise grandement l'usage du LBO.

Décalage angulaire (*walk-off angle*)

Le décalage angulaire est calculé dans le BBO et LBO (cf fig.3.3 inspiré de [44]) en prenant en compte des épaisseurs différentes afin de compenser la différence de non-linéarité (cf fig. 3.3a et inspiré de [44]). On compare donc le décalage angulaire à gain équivalent dans des conditions de pompe équivalentes.



(a) Temporal WO LBO

(b) Temporal WO BBO

FIGURE 3.3. – décalage angulaire dans le LBO et le BBO

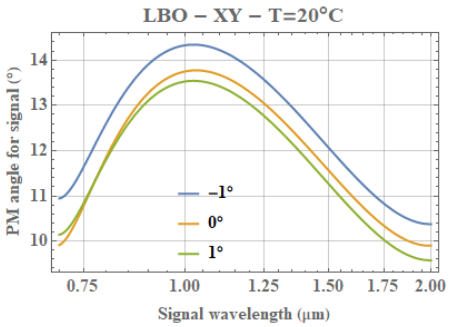
On peut retenir des graphiques des figures 3.3 que, pour un signal entre 650 et 1000 nm, le décalage angulaire est plus ou moins équivalent dans les deux cristaux et que

celui-ci est de l'ordre de 100-150 fs au pire, pour une durée d'impulsion initiale de 100 fs. En pratique, cela signifie que l'épaisseur utile est celle considérée dans les simulations. Utiliser un cristal plus long ne permet pas d'augmenter l'interaction non-linéaire.

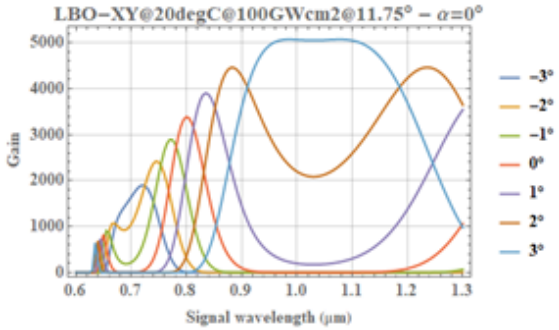
Le cristal non linéaire sélectionné est le LBO, choisi pour son faible décalage spatial. Son épaisseur maximale étant d'environ 2 mm, nous limitons ainsi les calculs présentés par la suite au cas d'un LBO de cette dimension.

Angle d'accord de phase

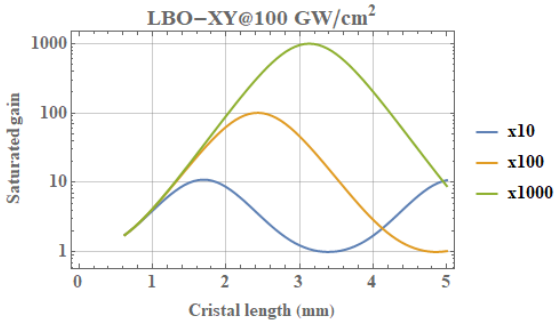
L'angle d'accord de phase dans le LBO (pompé à 515 nm) en fonction de l'angle entre la pompe et le signal maximal tolérable est représenté à la figure 3.4a. L'angle d'accord de phase (interne) varie faiblement. Pour une coupe cristalline vers ϕ=12° et à une température de 20°C, on peut atteindre l'accord de phase sur la totalité de la bande 0.7-1 μm en tournant le cristal de seulement ± 2.8° (angle externe, cf fig. 3.4b).



(a) Angle d'accord de phase dans du LBO pour différents angles entre la pompe et le signal



(b) Courbe de gain "linéaire" d'un LBO de 2.3 mm pompé à 100 GW/cm2 en fonction de l'orientation externe du cristal par rapport à la direction des faisceaux pompe et signal.



(c) Longueur de saturation pour différents gains saturés

FIGURE 3.4. – Calcul de l'accord de phase, de gain et de longueur de saturation dans du LBO

Angle non colinéaire maximal

De la même manière que le décalage spatial, un petit angle entre la pompe et le signal peut provoquer un déplacement spatial relatif (Δ_θ) entre les faisceaux pompe et signal. Pour des petits angles :

$$\Delta_y = \frac{L\Delta_\theta}{n}$$

avec Δ_y=16 μm le décalage angulairespatial dans le LBO, L la longueur du cristal. Pour un cristal de LBO de L=2.3 mm, on trouve Δ_θ=1 mrad soit 0.64° (externe). A titre de comparaison, pour un cristal de BBO de L=1 mm, on trouve Δ_θ=26 mrad soit 1.5° (externe). La colinéarité est donc plus critique pour un cristal de LBO.

Gain paramétrique non saturé

Ceci se vérifie en calculant directement le gain paramétrique « petit signal » de l'OPA (cf fig. 3.4b) par les formules des ondes planes monochromatiques (cf chap. 2 et [45]) fonction de la longueur d'onde et de l'orientation du cristal (cf fig. 3.4b). On remarque que le gain paramétrique est plus faible vers 700 nm que vers 1000 nm et que la bande de gain évolue de manière non-triviale : le gain est large bande à 700 nm et à partir de 900 nm, avec un minimum vers 800 nm.

Gain saturé et longueur de saturation

En simplifiant l'interaction non-linéaire à celles de trois ondes planes, on peut évaluer pour quelles épaisseurs de cristal on aurait un transfert d'énergie de 100 % entre l'onde pompe et les ondes signal/*Idler*. Cette longueur de saturation dépend du rapport d'intensité entre les ondes pompe et signal à l'entrée du cristal et de l'intensité de la pompe. Il faut évidemment pondérer ces valeurs pour prendre en compte la nature gaussienne des impulsions et des faisceaux. La règle empirique à suivre est de prendre un facteur 1.25 en plus par rapport aux longueurs calculées. Avec cette correction, pour une pompe à 100 GW/cm^2, on trouve les résultats de la figure 3.4c. A 100 GW/cm^2, un cristal de 2.3 mm de LBO ne permet qu'un gain saturé de ~ 100. Si ce gain n'est pas suffisant alors il est nécessaire de cascader plusieurs étages d'OPA. Ce calcul d'ondes planes monochromatiques, ne prend pas en compte l'ensemble des effets (densité spectrale du continuum, chirp etc) mais donne tout de même un ordre de grandeur.

Conclusion sur le choix du cristal

À première vue, les PPLN ne constituent pas de bons milieux amplificateurs pour cet OPA en raison de la durée d'impulsion du laser à 1030 nm. Le succès rapporté par [46] repose sur le fait que ce laser délivre des impulsions "longues" de 1 ps. En tenant compte de la durée d'impulsion, de la cadence et de la puissance du laser 1030 nm, ainsi que de la bande spectrale visée, le cristal non linéaire retenu pour cet OPA est le LBO. L'épaisseur maximale du cristal, limitée par le décalageangulaire

et la durée d'impulsion de la pompe, est de 2.3 mm. Ces contraintes restreignent le gain saturé par OPA à environ un facteur x100. L'OPA est conçu avec un unique étage d'amplification, car une extraction efficace dans un seul étage nécessite un signal à amplifier (SC) disposant d'une énergie minimale par impulsion. Cette énergie, calculée à partir de l'équation 3.5, est de E_{SC} = 0.3 nJ par impulsion dans la bande spectrale d'intérêt (environ 100 nm). Cependant, atteindre cette énergie avec un SC généré à une cadence de 40 MHz reste un défi. Les spécifications comparatives entre le LBO et le BBO, sont résumées dans le tableau 3.1.

Caractéristiques	**LBO**	**BBO**
Absorption et pompage à 515 nm	$< 10^3$ ppm cm^{-1}	$< 10^4$ ppm cm^{-1}
Coefficient effectif (d_{eff})	0.85 pm/V	2.2 pm/V
Indice de réfraction non-linéaire	$1.1 \times 10^{-16} cm^2/W$	$2{,}2 \times 10^{-16} cm^2/W$
Seuil de dommage	100 GW/cm^2	50 GW/cm^2
Transparence	155-3200 nm	189-3500 nm
Gain paramétrique	Elevé	Élevé
Rendement maximal	~ 5 – 20%	~ 5 – 20%
Décalage spatial	~ 7 mrad	~ 56 mrad
Décalage angulaire	< 150 fs	< 150 fs
Angle d'accord de phase	~ 23°	~ 22°
Angle non colinéaire maximal entre pompe/signal	1 mrad	1.5 mrad
Gain saturé	100	Non communiqué
Longueur possible	23 mm	1 mm

TABLEAU 3.1. – Résumé : comparaison entre les cristaux LBO et BBO

3.2. Architecture de l'OPA

Pour rappel (cf chap. 2), nous avons choisi comme laser initial un laser Ytterbium à 1030 nm, de durée d'impulsion 160 fs, avec un taux de répétition de 40 MHz et délivrant 20 W de puissance moyenne (FLINT, Light Conversion). Dans la suite du document ce laser ce dénommé "laser 1030nm". Le schéma complet de l'OPA, pompé par ce laser, est représenté à la figure 3.5. Trois parties seront développées : la génération de la seconde harmonique de la pompe, la génération du supercontinuum et l'amplification paramétrique, le tout est complété par une caractérisation complète de la source (durée d'impulsion, qualité du faisceau, puissance moyenne, spectre, stabilité long à terme).

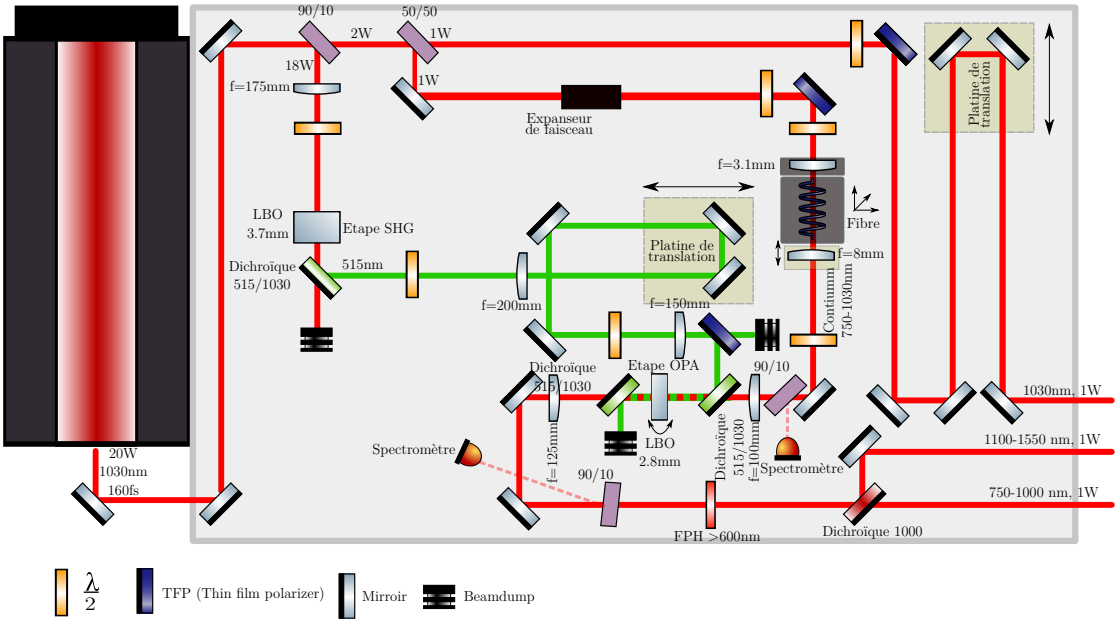


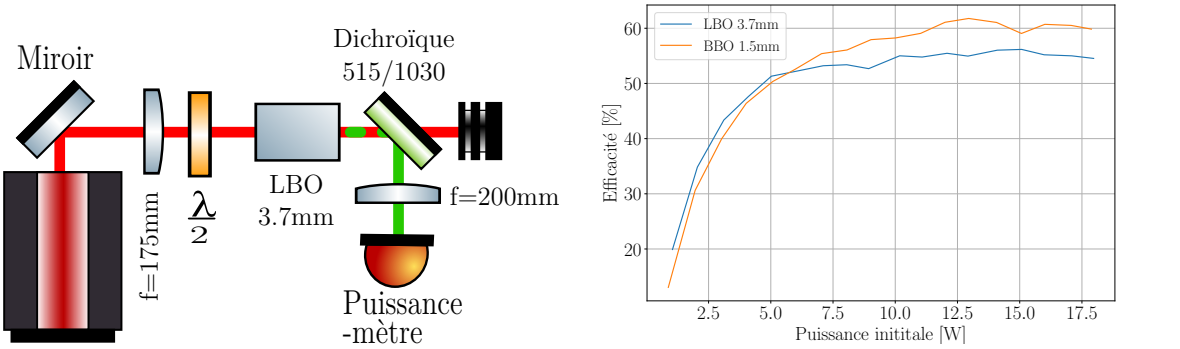
FIGURE 3.5. – Schema complet de l'OPA

3.2.1. Seconde harmonique de la pompe

Pour la génération du faisceau de pompe, deux cristaux sont particulièrement adaptés (cf sec. 3.1.3 et tableau 3.1) : le BBO et le LBO. Nous cherchons à atteindre une densité de puissance de 50 GW/cm² [47], et en tenant compte de l'énergie disponible et du seuil de dommage du cristal, un ajustement du foyer est nécessaire. La puissance maximale disponible pour le laser à 1030nm est de 18 W (sur les 20 W disponibles, 1 W est utilisé pour le SC, cf sec. 3.2.2.2, et 1 W à 1030 nm est gardé pour l'onde Stokes nécessaire au SRS, cf chap. 4). À une fréquence de 40 MHz, cela correspond à une énergie par impulsion de 450 nJ. Utilisant l'équation 3.6, la densité de puissance équivalente à 54 GW/cm² est atteinte avec un faisceau incident de 2 mm à 1/e². Afin de ne pas endommager le cristal et d'optimiser l'efficacité, une lentille de focalisation de 175 mm est choisie. Cette focale produit un faisceau de 115 μm à 1/e² au foyer de la lentille (situé dans le cristal de LBO). Après focalisation, un faisceau à 515 nm est généré, comme illustré à la figure 3.6a, puis séparé à l'aide d'un miroir dichroïque. Le faisceau est collimaté par une lentille de 200 mm afin de conserver les mêmes propriétés spatiales, et mesuré par un puissance-mètre (UP25N-40S-H9-D0, Gentec).

Le BBO a une longueur de cohérence (distance sur laquelle l'onde conserve ses propriétés), ce qui signifie que l'interaction SHG efficace se limite à de petites sections du cristal. Cela conduit à une utilisation de cristaux plus fins (de l'ordre de 0,5 à 3 mm) pour minimiser les effets de désaccord de phase. Cependant, cette limitation peut être compensée par son d_{eff} élevé, qui permet toujours d'obtenir une conversion efficace avec un cristal fin. Le LBO, en revanche, a une longueur de cohérence plus

grande, ce qui permet l'utilisation de cristaux plus épais (de l'ordre de 3 à 10 mm) sans risquer le désaccord de l'accord de phase trop important. En raison de son seuil de dommage plus élevé et de sa capacité à supporter des puissances élevées sans distorsion du faisceau, le LBO est souvent préféré pour des applications à haute puissance et lorsque la qualité spatiale du faisceau est critique. La figure 3.6b montre l'efficacité de la génération de seconde harmonique (SHG) en fonction de la puissance incidente pour un cristal de LBO de 3,7 mm de type 1 et un cristal de BBO de 1,5 mm de type 1. Bien que le BBO atteigne une efficacité de 60 % (contre 55 % pour le LBO à 18 W), le LBO est choisi, car le BBO dégrade le profil spatial du faisceau à haute intensité : le faisceau devient elliptique). Ainsi, le LBO de 3,7 mm est préféré. Après cette étape de SHG, la puissance disponible dans le faisceau pompe pour l'étage d'amplification est de 9,5 W.



(a) Schéma de la génération de la SHG

(b) Efficacité expérimentale de la SHG dans des cristaux de BBO et de LBO

FIGURE 3.6. – Schéma et efficacité de la SHG

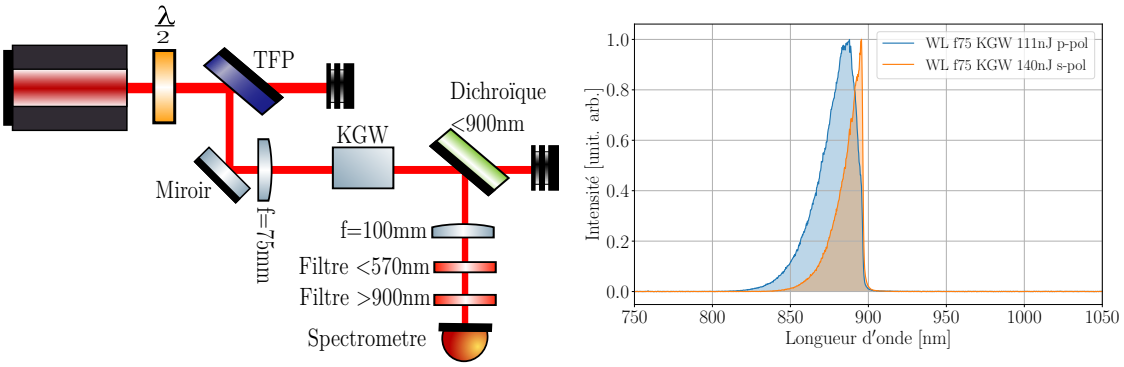
3.2.2. Génération du supercontinuum

Pour générer le supercontinuum, plusieurs approches ont été envisagées : la filamentation dans des cristaux non-linéaire et l'automodulation de phase dans des fibres optique ANDi.

3.2.2.1. Filamentation (cristaux)

La génération de SC par filamentation est possible dans les cristaux non-linéaire, des gaz ou encore des liquides. Généralement dans les OPA, pour des raisons pratiques (seuil, compacité, stabilité, ...), la génération de SC par filamentation est produit dans les cristaux. Pour cela un faisceau avec des impulsions de l'ordre du μJ et d'environ 500 fs est focalisé dans un cristal de YAG [38], [33]. Ici, la faible énergie par impulsion disponible à 40 MHz nécessite de sélectionner des cristaux très non-linéaires ($n_2 > 1 \times 10^{-16} cm^2/W$ [48]). Le YAG, le KGW et le YVO_4 semblent être les meilleurs candidats. Il n'est cependant pas certain que ces cristaux supportent les densités de

puissance moyenne à 40 MHz et le gradient thermique associé. A priori, le KGW et le YAG possèdent de meilleures propriétés thermo-mécaniques. Des tests préliminaires ont été réalisés avec un laser à 1 MHz 350 fs, (Tangerine, Amplitude) focalisé dans différents cristaux. En sortie de cristal, le spectre est mesuré à l'aide d'un spectromètre (STS-NIR, Ocean Insight) en filtrant le laser 1030 nm à l'aide d'un miroir dichroïque (DMLP900, Thorlabs) et en ajoutant deux filtres pour éliminer les résidus à 515 nm et 1030 nm. Le faisceau entrant dans le spectromètre est recollimaté pour éviter une focalisation interne. Un polariseur à couche mince (TFP) et une lame demi-onde ont été ajoutés avant le montage pour ajuster la polarisation (cf fig. 3.7b). On démontre que l'énergie minimum pour générer un SC (bande de 500-1000 nm) dans un cristal de YAG de 8 mm est de 800 nJ (NB : plus l'épaisseur augmente, plus l'énergie nécessaire à la génération du SC est grande), pour une lentille de focalisation de 100 mm. Quant au KGW, une énergie minimale de 230 nJ (lentille de focalisation de 50 mm) est nécessaire pour élargir une bande (600-900 nm). Le TeO2 (Tellurium Dioxide) de 10 mm a aussi été testé et l'énergie minimale pour élargir la bande 750-1000 nm est de 290 nJ avec une lentille de focalisation de 50 mm. Pour une cadence de 40 MHz et d'après [49], il est possible de générer un SC à partir de 150 nJ (ce qui équivaut dans notre cas à 10 W à 40 MHz) dans différents cristaux. En tentant de générer le SC dans du BBO de 5 mm avec 10 W (en utilisant différentes lentilles de focalisation), on observe de la fluorescence (un halo orange en dehors de l'axe optique) sans élargissement du spectre ou génération de SC. Pour le PPLN, YAG et le TeO2, il n'y a pas non plus d'élargissement du spectre. Cependant, en focalisant avec une lentille de focale 75 mm dans un cristal de KGW de 10 mm, un léger élargissement est observé (cf fig. 3.7b). Le continuum généré est représenté pour les deux polarisations "s" et "p" avec des énergies respectives de 140 nJ (5.6 W) et 111 nJ (4.45 W). Le spectre ne s'étend que jusqu'à 850 nm, ce qui n'est pas suffisant pour le SRS (cf chap. 4). Afin d'élargir considérablement le spectre avec peu d'énergie par impulsion, une autre solution a été envisagée : l'utilisation de fibres photoniques à Dispersion Normal, All Normal Dispersive (ANDi).



(a) Schéma de la génération du SC dans du KGW (b) Spectrogramme expérimental du SC généré dans du KGW

FIGURE 3.7. – Génération du SC par filamentation dans du KGW

3.2.2.2. Elargissement spectral dans une fibre photonique

Le recours à une fibre photonique représente une alternative viable à l'élargissement par filamentation dans un cristal massif, comme démontré dans [50]. Malheureusement, aucune fibre adaptée à 1030 nm et 40 MHz pour la génération de SC n'était commercialement disponible au début de cette thèse. Une solution consiste à utiliser des fibres télécom SMF-28, qui présentent un étranglement de 5 µm sur 8 cm [51] (typiquement, pour une fibre SMF standard le diamètre du mode fondamental est de 8 µm). Une autre alternative consiste à utiliser desdes fibres à cristal photonique (PCF, Photonic Crystal Fibers) ou les fibres à dispersion normale (ANDi, All Normal Dispersive fibers). Ces deux types de fibres diffèrent significativement en termes de dynamique de propagation, de régime de dispersion et de stabilité du bruit, ce qui impacte directement leur aptitude à générer un SC large et stable dans un contexte de faible énergie d'impulsion. Les fibres PCF sont caractérisées par une dispersion anormale dans certaines plages spectrales, ce qui favorise l'apparition d'impulsions solitoniques. Dans ce cadre, la génération de SC repose sur des mécanismes tels que la fission de solitons, l'effet Raman auto-induit, l'automodulation de phase (SPM) et les interactions soliton-soliton. L'élargissement spectral est alors principalement dû à la dynamique des solitons et aux effets non linéaires associés. Toutefois, l'efficacité de ce processus dépend fortement de conditions de couplage spécifiques entre la dispersion de la fibre, la longueur d'onde centrale et l'énergie des impulsions. Lorsque l'énergie des impulsions est faible (250 nJ ou moins), il devient difficile d'atteindre le régime solitonique optimal. Cette sensibilité aux conditions initiales entraîne une forte variabilité du spectre généré, rendant le SC instable en présence de fluctuations expérimentales. De plus, la nature chaotique de la fission de solitons introduit un bruit d'intensité relative (RIN) élevé, limitant ainsi les applications nécessitant une cohérence spectrale et temporelle élevée. Les fibres ANDi, quant à elles, possèdent une dispersion normale sur toute la plage spectrale utilisée. Dans ce régime, la génération de SC repose principalement sur des effets non linéaires progressifs tels que l'automodulation de phase (SPM), la modulation de phase croisée (XPM) et l'élargissement spectral par mélange à quatre ondes (FWM). L'absence de solitons permet d'obtenir une dynamique d'élargissement spectral plus progressive et cohérente, limitant ainsi la formation de fluctuations aléatoires du spectre. En conséquence, l'utilisation des fibres ANDi présente plusieurs avantages pour la génération de SC en régime de faible énergie d'impulsion :

— Une stabilité spectrale accrue : le spectre généré est moins sensible aux fluctuations expérimentales, ce qui garantit une meilleure reproductibilité.
— Un bruit d'intensité réduit : l'absence de solitons limite les instabilités du RIN, rendant le SC plus adapté aux applications exigeant un signal faible bruit.
— Une mise en œuvre plus souple : contrairement aux PCF, qui nécessitent un ajustement précis des conditions de couplage, les fibres ANDi permettent une génération efficace de SC sans contrainte expérimentale sévère.

Dans le cadre de cette étude, où l'objectif est de générer un SC en régime de faible énergie (≈ 250 nJ) tout en minimisant le bruit d'intensité, l'utilisation des fibres ANDi

apparaît comme une solution optimale. Plusieurs discussions avec le Max Planck Institute for the Science of Light (Erlangen, Allemagne), l'Institut FEMTO-ST (Besançon, France) et le Laboratoire PHLAM (Lille, France) ont permis d'identifier et d'accéder à des fibres à dispersion normale [52] fabriquées par des laboratoires de recherche susceptibles de générer des SC à 1030nm lorsqu'elles sont pompées par des oscillateurs lasers. Ces fibres microstructurées ANDi, sont fabriquées en utilisant de la silice pure et la méthode d'empilement et d'étirage [53] pour générer la microstructure visible à la figure 3.14b. Le diamètre des trous et leur espacement sont ajustés pour obtenir une dispersion normale parabolique autour de la longueur d'onde du laser 1030 nm, afin de maintenir une dispersion constante non nulle dans la plage spectrale visée. Ce régime de dispersion permet de garantir un régime stable d'élargissement spectral avec l'auto-modulation de phase comme principal effet non-linéaire. Comme démontré par [52], cette fibre permet un élargissement du SC plat sur une bande de 750 nm à 1.3 µm.

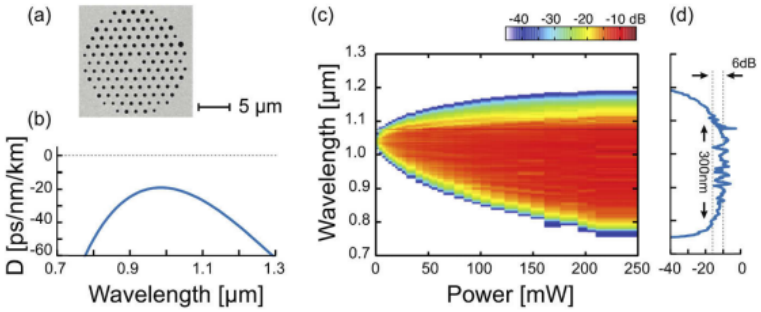


Fig. 1. (a) SEM of the end face of the ANDi fibre used here, (b) the calculated dispersion for this fibre, and (c) the experimental power-dependent output spectrum using a ~140 fs pulse from an Yb-doped solid-state laser operating at 1042 nm, with pulse energies up to 13.2 nJ. (d) A typical output spectrum generated using 254 mW input pump power.

FIGURE 3.8. – Figure tirée de [52]

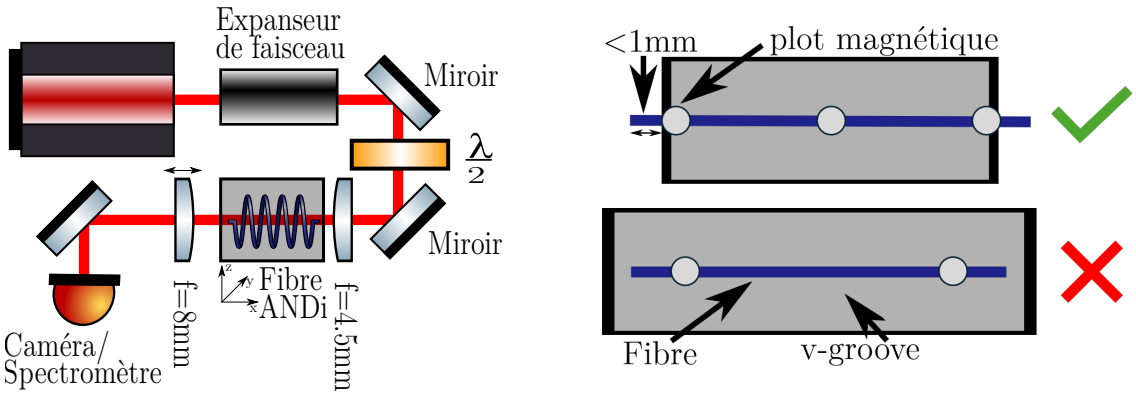
3.2.2.3. Fibre ANDi non-PM

Les premières fibres utilisées sont les mêmes que celles utilisées dans [52] et représentées à la figure 3.8. La dispersion normale de ces fibres est optimisée à 1049 nm, avec un espacement entre les trous dans la gaine de Λ = 1,42 μm. Le diamètre des trous (d = 0.55 μm) a été sélectionné de manière à ce que le rapport d/Λ soit de 0,39 et le cœur mesure 2,2 μm.

Les paramètres de couplage, notamment la focale de la lentille, sont calculés en utilisant la formule 3.7. Le faisceau de pompe est élargi à 2,7 mm à $1/e^2$ et avec des paramètres cités précédemment, il en résulte que la lentille de focalisation idéale est de 4,55 mm. Dans l'approximation des petits angles et en relation avec l'équation 3.7, l'ouverture numérique (NA) est définie comme :

$$NA = \tan\frac{2\lambda}{\pi\omega_0} \approx 0.29 \tag{3.8}$$

L'étude des différentes lentilles disponibles commercialement montre que la lentille idéale pour répondre aux paramètres mentionnés ci-dessus est celle avec une focale de $f = 4{,}5\,\text{mm}$, une ouverture numérique NA = 0,40 et une distance de travail de $WD = 1{,}6\,\text{mm}$ (C350TMD-B, Thorlabs).

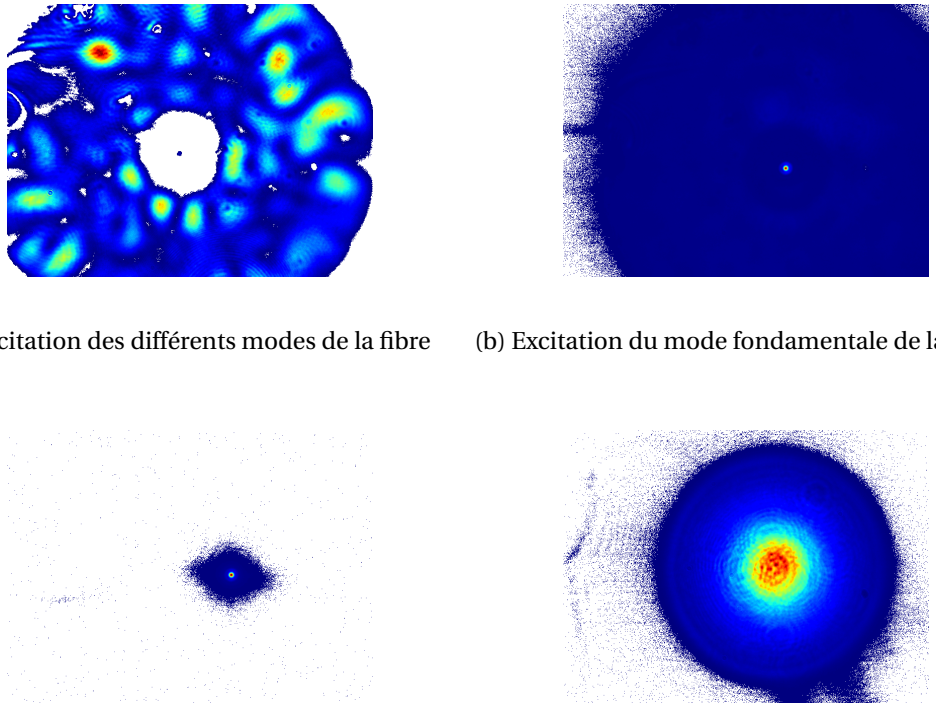


(a) Schéma de la génération du SC dans une fibre ANdi

(b) Fixation de la fibre dans le v-groove

FIGURE 3.9. – Schémas du montage expérimental de la génération du SC dans une fibre ANDi

Expérimentalement (cf fig. 3.9a), le faisceau en sortie du laser 1030 nm est élargi jusqu'à 2,7 mm à $1/e^2$ à l'aide d'un beam expander (BE052-B, Thorlabs). Ensuite, on y ajoute deux miroirs de renvoi, une lame demi-onde (pour ajuster la polarisation d'entrée dans la fibre), la lentille de focalisation f=4.5 mm, la fibre phonique puis une lentille de colimation f=8 mm et enfin le signal en sortie de fibre est dirigé dans une caméra/spectromètre.



(a) Excitation des différents modes de la fibre

(b) Excitation du mode fondamentale de la fibre

(c) Optimisation du mode fondamentale de la fibre

(d) Faisceau collimaté en sortie de fibre

FIGURE 3.10. – Étape de couplage dans une fibre ANdi

La fibre ANDi de diamètre externe de 200 μm est maintenue dans un V-groove (HFV002 ou HFF001 et HFV001, Thorlabs selon la longueur de la fibre), lequel est fixé sur une monture 3 axes (MBT616D, Thorlabs). Une lentille de focale 8 mm (A240TM-B, Thorlabs) est placée en sortie de fibre pour collimater le faisceau SC généré. La fibre est clivée "à la main", c'est-à-dire qu'une section d'environ 10 cm est rompue par flexion depuis la bobine issue de la fabrication et sur laquelle la fibre est enroulée. Ensuite, la gaine est retirée aux deux extrémités à l'aide d'une lame de rasoir, puis les deux extrémités sont clivées à $\sim 0°$ à l'aide d'une lame en rubis (S90R, Thorlabs). La fibre est ensuite placée dans le V-groove, en veillant à ce que les extrémités soient correctement maintenues (par des plots magnétiques ou un fermoir, cf fig. 3.9b), avec une section libre < 1 mm pour limiter les distorsions thermo-mécanique induite par la forte puissance moyenne du faisceau 1030 nm focalisé ($\approx 40\ TW/cm^2$ à une puissance moyenne de 500 mW). Si cette précaution n'est pas respectée, le couplage dans la fibre se dégrade lentement au fil du temps, entraînant une réduction progressive de la largeur du spectre en quelques minutes, ainsi qu'une instabilité du spectre, observée par un phénomène de "respiration" associé à une grande sensibilité aux fluctuations de l'air ambiant. D'après [52], l'énergie par impulsion pour générer un continuum est de 13,2 nJ (soit 520 mW à 40MHz) à 140 fs.

Alignement

Pour ne pas endommager la fibre, l'alignement se fait à basse énergie 0.5 nJ (20 mW). La puissance d'entrée dans la fibre est ajustée en atténuant la puissance interne du laser directement via le logiciel du laser 1030 nm. A la sortie de la fibre et après la lentille de collimation (cf fig. 3.9a) on place une caméra (a2A2590-60umBAS, Basler taille de pixel 1.85 μm) pour l'alignement initial, cette dernière étant placée à une distance de la lentille de collimation permettant d'imager plus ou moins la face de la sortie de la fibre. Les quatre étapes de couplage sont illustrées à la figure 3.10. Le processus commence par une figure de speckle, causée par l'excitation de différents modes de gaines (cf fig. 3.10a). Ensuite, la position de la fibre est optimisée (d'abord en X/Y puis selon l'axe de propagation Z) pour que le faisceau soit focalisé en son cœur et excite ainsi l'unique mode fondamental (cf fig.3.10b et 3.10c). À la figure 3.10d, le faisceau est couplé au maximum dans son mode fondamental et collimaté à l'aide de la platine de translation positionnée sous la lentille de collimation (cf fig. 3.9a). Typiquement une efficacité de couplage de 50 % est obtenue. La caméra est ensuite remplacée par un spectromètre (STS-NIR, Ocean Insight). Le spectre obtenu à 20 mW est représenté par la courbe verte de la figure 3.11. La puissance est ensuite augmentée (via le logiciel du laser 1030 nm), et les spectres correspondant à des puissances d'injection de 100 mW (2.5 nJ en orange) et 175 mW (4.3 nJ en bleu) sont également représentés à la figure 3.11. Plus l'énergie injectée dans la fibre est élevée, plus le spectre s'élargit ; atteignant 700 nm à 1100 nm pour une puissance 500 mW (12.5 nJ) représenté à la figure 3.20.

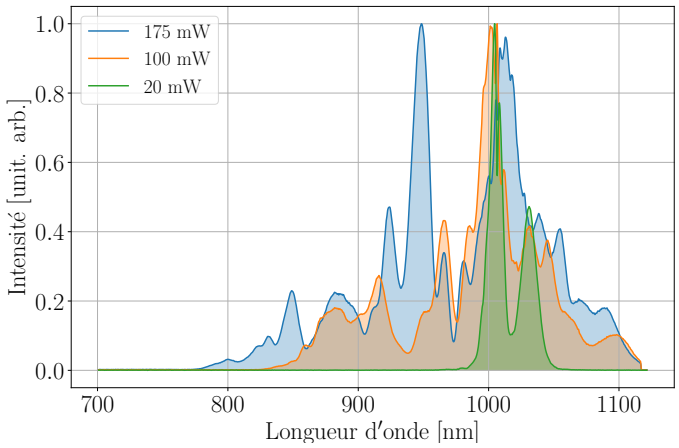


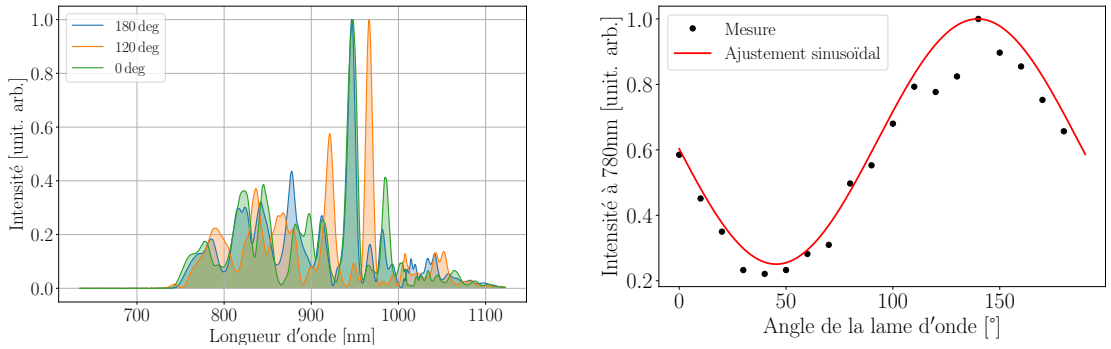
FIGURE 3.11. – Spectrogramme de la génération du SC dans ~ 10 cm de fibre ANDi pour une puissance d'entrée de 20 mW, 100 mW et 175 mW ((Laser 1030 nm, 40 MHz, 160fs)

Avec la même méthode de clivage que précédemment décrite, plusieurs longueurs de fibres ont été testées : 70 mm, 80 mm, 100 mm et 120 mm. Les fibres de 70 mm et 80 mm ont présenté un faible taux de couplage (respectivement inférieur à 10 % et

environ 30 %), tandis que celles de 100 mm et 120 mm ont montré un taux de couplage similaire, d'environ 50 %. Aucune fibre plus longue que 120 mm n'a pu être testée, car la monture de la fibre n'était pas assez longue pour les maintenir rectilignes au moment de l'expérience. Le faible taux de couplage observé dans les fibres de 70 mm et 80 mm n'est pas nécessairement dû à leur longueur. En effet, étant donné la méthode "à la main" de clivage, nous avons constaté qu'il était plus difficile de cliver des fibres courtes que des fibres plus longues. Cependant, n'ayant pas de moyen de vérifier ce point, nous ne pouvons pas conclure quant à l'influence de la taille de la fibre. Une étude plus approfondie devrait être menée pour clarifier cette question.

3.2.2.4. Etat de polarisation

Comme illustré sur la figure 3.12a, à puissance constante du laser 1030 nm (300 mW), et en ajustant la polarisation à l'aide de la lame demi-onde située avant la fibre (cf fig. 3.9a), la polarisation est tournée entre 0 ° et 180 °. Pour une polarisation particulière (on positionne une lame demi-onde devant le spectromètre), on observe que le spectre du SC varie en fonction de la polarisation d'entrée, et que les pics d'intensité SC ne se trouvent plus aux mêmes longueurs d'onde. La figure 3.12b montre l'intensité du SC à 780 nm pour des angles de polarisation entre 0 ° et 180 °, révélant une variation sinusoïdale en fonction de la polarisation qui est dû au fait que l'état de polarisation est variable avec la longueur d'onde. Ceci à pour conséquence que, lors de l'amplification paramétrique (OPA) (cf sec. sur l'accord de phase 2.3.3) des différentes longueurs d'onde du SC, il sera nécessaire d'ajuster la polarisation d'entrée pour maximiser le signal à chaque longueur d'onde en sortie de l'OPA. Pour palier à ce probleme, nous utiliserons des fibres ANDi à maintien de polarisation (PM), développé à la section 3.2.2.6.



(a) SC générés pour une puissance d'entrée du laser 1030 nm de 300 mW pour différents angles de polarisation : 0 °, 120 ° et 180 °

(b) Intensité du SC à 780 nm pour des angles de polarisation entre 0 ° et 180 °

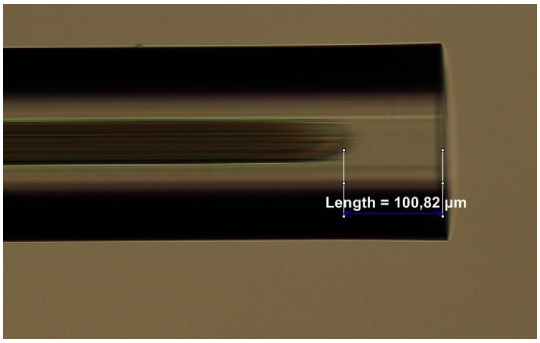
FIGURE 3.12. – Influence de la polarisation du SC des fibres ANDi-non PM

Généralement, après une journée d'utilisation, une usure prématurée de la fibre est

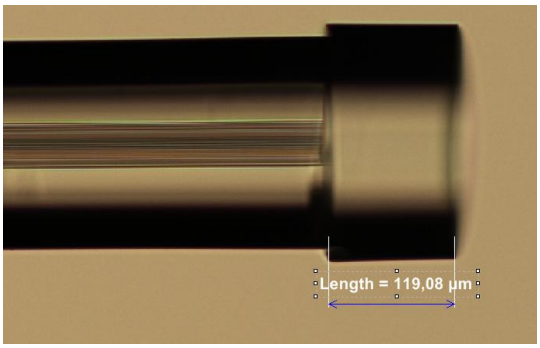
observée. Lorsque la puissance est augmentée (500 mW), la densité de puissance devient très élevée. Dès qu'un choc externe survient (vibration, variation de température, impact d'un objet contre la table optique, échauffement du bout de la fibre, poussière, etc), la fibre se désaligne et se détériore. Une fois endommagée, la fibre perd son efficacité de couplage et l'efficacité de couplage intiale (50 %) n'est jamais retrouvée, ce qui entraîne une réduction de l'élargissement spectral. Pour retrouver le même élargissement qu'avec une fibre non endommagée, il devient nécessaire d'augmenter la puissance, ce qui aggrave encore plus la dégradation prématurée de la fibre. Ce problème peut être partiellement résolu en dénudant et en clivant à nouveau la fibre. Cette solution n'est néanmoins pas viable industriellement. Pour éviter ce problème, des "endcaps" (tronçons de verre ajoutés aux extrémités de la fibre ANDi) sont installés afin de protéger l'extrémité de la fibre.

3.2.2.5. Protection des fibres

Pour protéger les fibres des différents chocs possibles (cf section précédente), nous avons cherché à réaliser des embouts (également appelés "endcaps") fixés de chaque côté de la fibre pour protéger la fibre des pollutions externes. Deux méthodes principales sont utilisées pour réaliser ces endcaps. Les premières étapes sont communes aux deux méthodes : la fibre est d'abord dénudée, puis clivée à 0,5 ° (précision de 0,1 °) afin d'éviter les réflexions indésirables. Une fibre PCF (Photonic Crystal Fiber) standard de même diamètre est également clivée et placée dans une soudeuse avec la fibre ANDi. Un arc électrique est généré pour éliminer les poussières et nettoyer les fibres, après quoi elles sont alignées et fusionnées thermiquement (par fonte de la silice). A partir de cette étape, la première méthode utilise une température plus élevée pour faire fondre les trous de la structure de la fibre sur une centaine de microns (cf fig.3.13a), avant de recliver l'extrémité de la fibre PCF, on parle alors du « collapse » des trous. La deuxième méthode, en revanche, consiste à coller les deux fibres à une température plus basse, évitant ainsi la fusion des trous. Une centaine de microns de la fibre PCF sera alors utilisée comme endcap (cf fig. 3.13b).Les mêmes étapes sont ensuite répétées de l'autre côté de la fibre, avec un polissage des faces si nécessaire. En termes d'efficacité de couplage, les deux méthodes sont équivalentes, la qualité du colmatage des trous jouant un rôle crucial. Si celui-ci est mal réalisé, une surchauffe de la structure peut entraîner un phénomène de dispersion de la lumière dans ces "endcaps".



(a) Méthode 1 d'"endcaps" par colapse des trous sur ~100 μm

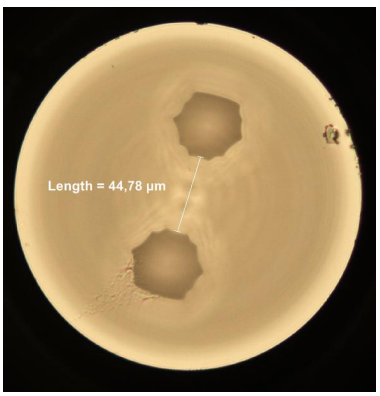


(b) Méthode 2 d'"endcaps" par ajout de silice sur ~100 μm

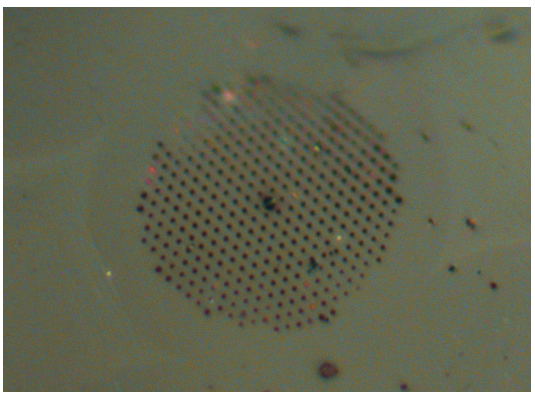
FIGURE 3.13. – Vus de profil des fibres ANDi avec les deux méthodes de protections

3.2.2.6. Fibre ANDi-PM

Pour palier aux problèmes de polarisation rencontrés dans les fibres ANDi classiques, nous avons eu accès à une fibre ANDi à maintien de polarisation (PM-ANDi) réalisée par l'Institut Femto-ST (non-linéaire-1050-NEG-PM, NKT Photonics). Cette fibre possède un diamètre de cœur de 2,4 μm, un rapport diamètre des trous/espacement de $d/\Lambda = 0{,}45$, et un espacement entre trous de $\Lambda = 1{,}44$ μm. Elle présente un coefficient non-linéaire de 27 $W^{-1}km^{-1}$ et une biréfringence élevée de $4{,}7 \times 10^{-4}$ à 1030 nm, induite principalement par la structure elliptique de sa structure ainsi que les tiges de contrainte (barreaux de Bore) visibles sur la figure 3.14a. La dispersion de cette fibre ANDi-PM suit un profil parabolique normal, avec un pic de -13 ps/nm/km à 1040 nm [54], génèrant un SC s'étendant de 0,75 μm à 1,3 μm (cf fig. 3.20 à 500 mW de puissance d'entrée moyenne), tout en maintenant un état de polarisation strictement linéaire, contrairement aux fibres ANDi non PM.



(a) Représentation des barreaux de bore

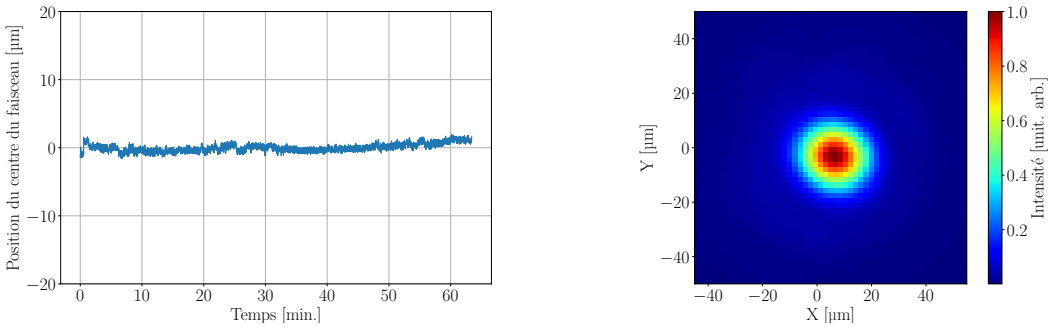


(b) Représentation de la microstructure endommagé au centre

FIGURE 3.14. – Vu de face des fibres ANDi-PM

Pour mesurer la forme et la taille du faisceau laser 1030 nm au foyer de la lentille de focalisation, on remplace la fibre par une caméra. La taille cible du faisceau au foyer est de 2,4 μm, mais étant donné que la taille d'un pixel sur la caméra (a2A2590-60umBAS, Basler) est de 1,85 μm, il est impossible de visualiser correctement cette taille de faisceau. Pour résoudre ce problème, nous projetons l'image du faisceau focalisé sur la caméra à l'aide d'un objectif de microscope à grossissement x40 (160/0.17/WD0.6, Nikon), accompagné d'un tube de la distance nécessaire pour projeter l'image du faisceau sur la caméra. L'ensemble est monté sur une monture à trois axes pour permettre un ajustement précis. Lors de l'observation, nous avons comparé le profil spatial du faisceau pour différentes lentilles asphériques : une lentille de focale 4,5 mm/NA = 0,4 (C350TMD-B, Thorlabs), une lentille de 4,03 mm/NA = 0,64 (C340TMD-B, Thorlabs), et une lentille de 3,1 mm/NA = 0,7 (C330TMD-B, Thorlabs). Pour des lentilles de grande focale et de faible ouverture numérique, le faisceau présente des effets de bord ou de "bavure", tandis qu'une lentille à courte focale avec une ouverture numérique plus grande produit un mode d'entrée propre et gaussien. Par conséquent, pour maximiser le couplage du mode fondamental dans le cœur de la fibre et éviter d'endommager les bords du cœur dus à l'étalement du faisceau et d'abîmer prématurément les fibres, la lentille de 3,1 mm et de NA = 0.70 sera privilégiée. Le profil du faisceau au foyer de la lentille est illustré à la figure 3.15b. La taille du faisceau à $1/e^2$ est d'environ 100 μm sur la caméra, ce qui correspond à une taille réelle de 2,5 μm après division par le grossissement de 40. Il est cependant difficile d'obtenir une taille exacte de 2,5 μm au foyer, car les calculs de la taille du faisceau reposent sur l'hypothèse d'un faisceau parfaitement gaussien. De plus, la position de la lentille par rapport à l'axe de propagation du faisceau joue un rôle crucial. Si le faisceau n'est pas parfaitement centré sur la lentille, le faisceau focalisé devient elliptique.

Pour remédier à ce problème, la lentille est fixée sur la platine de translation de la fibre après alignement précis du faisceau sur cet axe. Ce positionnement sera vérifié à l'aide du montage de l'objectif de microscope pour s'assurer que le faisceau est bien gaussien et exempt d'aberrations. Étant donné le changement de lentille, la taille du faisceau d'entrée est ajustée à 1,85 mm à $1/e^2$. À l'exception de cette modification, le montage expérimental reste identique à celui illustré à la figure 3.9a. Selon [54], les dommages à cette fibre surviennent à une puissance moyenne de 2 W pour un laser Chameleon (Coherent, 140 fs, 80 MHz, 1040 nm). Dans notre cas, les dommages semblent survenir autour de 1 W de puissance moyenne (160 fs, 40 MHz, 1026 nm), ce qui semble cohérent compte tenu de la différence de cadence, et prenant en compte un endommagement non-linéaire. L'efficacité de couplage reste de 50%, et nous avons mesuré la stabilité à long terme du faisceau incident (cf fig. 3.15a) au foyer de la lentille de focalisation en utilisant le montage précédent avec l'objectif de microscope. La stabilité a été mesurée sur une heure en observant la variation de la position relative du faisceau par rapport à sa position moyenne. La déviation standard (std) est de 0,6 μm sur la caméra, ce qui correspond à une valeur réelle de 0,015 μm après division par le grossissement de 40. Cette déviationpeut être considérée comme négligeable, car elle représente moins de 1 % de la taille du faisceau.



(a) Stabilité spatiale sur 1 heure (grossisement 40x)

(b) Profil spatial du faisceau (grossisement 40x)

FIGURE 3.15. – Stabilité et profil spatial du faisceau au foyer de la lentille de focalisation de la fibre à l'aide du système imageur (grossisement 40x)

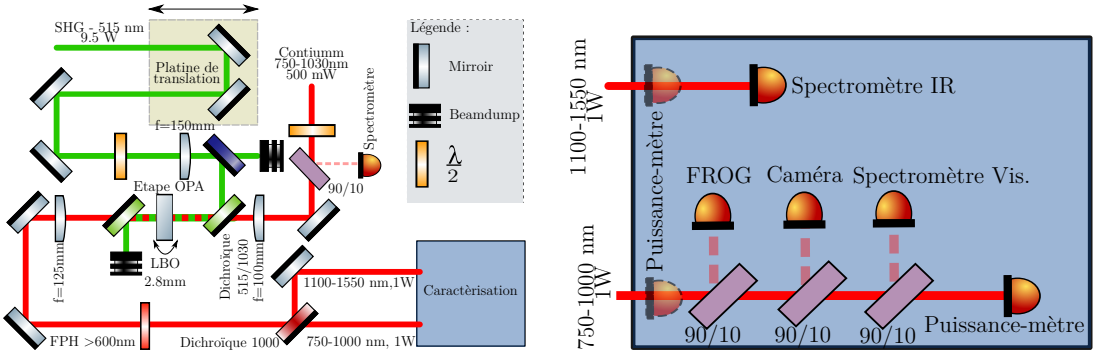
Étant donné que la fibre est aléatoirement orientée sur le support, il n'est pas possible de déterminer visuellement l'axe rapide de la fibre (c'est-à-dire l'axe sur lequel la polarisation est maintenue). Deux méthodes s'offrent à nous pour identifier cet axe :

— Maximisation du spectre du SC : on commence par ajuster la lame demi-onde située avant la fibre. En tournant cette lame, il est possible d'identifier l'orientation correcte de la polarisation en cherchant à obtenir un spectre le plus étendu possible, tout en restant stable et sans modulation (spectre plat). Cette méthode permet de pousser le spectre jusqu'à la limite imposée par le seuil de dommage de la fibre [54].

— Mesures du bruit de phase : une autre méthode consiste à effectuer des mesures du bruit d'intensité relative (RIN) pour ajuster la polarisation. On tourne la polarisation jusqu'à obtenir un RIN correspondant au bruit *shot-noise*, ce qui indique que la polarisation est alignée sur l'axe rapide de la fibre. Si la polarisation est mal orientée, alors on rajoute une source de bruit, ce qui dégrade le RIN (cf fig. 3.27) et il n'est plus minimal.

Après avoir ajusté la polarisation d'entrée, le spectre obtenu en injectant 500 mW (soit 12,5 nJ) est représenté en bleu sur la figure 3.20.

3.2.3. Amplification paramétrique et caractérisation de l'OPA

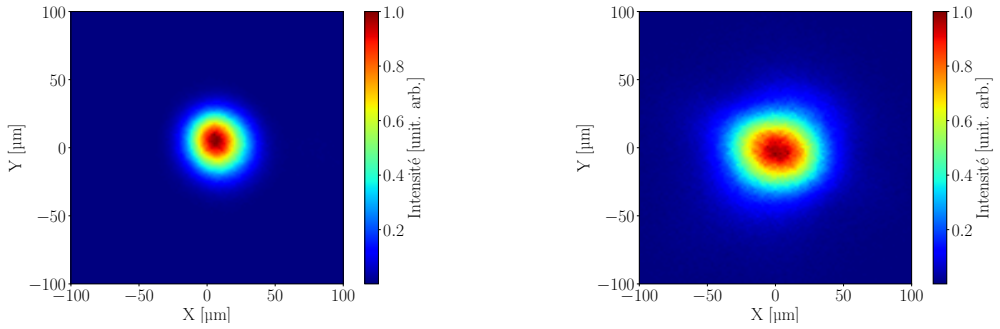


(a) Schéma l'étage d'amplification

(b) Schéma de la caractérisation de l'OPA

FIGURE 3.16. – Schéma de l'étage d'amplification et de sa caractérisation

Une fois que le faisceau de pompe et le supercontinuum (SC) ont été générés, la prochaine étape consiste à les combiner pour amplifier les différentes bandes du SC. Comme rappelé dans la section 3.1.3, le cristal de choix est le LBO et l'énergie nécessaire pour espérer amplifier le SC est d'environ 100 GW/cm², ce qui, pour une pompe de 9,5 W à 515 nm, correspond à une taille de faisceau dans le cristal d'au minimum 60 μm. Le schéma expérimental est présenté à la figure 3.16a : les deux faisceaux laser (515 nm pompe et SC) se rencontrent colinéairement dans un cristal de LBO de 2.8 mm (Type I, avec des angles de coupe de $\theta = 90°$ et $\phi = 11°$). Le faisceau de pompe à 515 nm, collimaté de polarisation horizontale, passe à travers un couple lame demi-onde/TFP pour ajuster la quantité de puissance avant le cristal, suivi d'une lentille de focale f = 150 mm, atteignant ainsi un diamètre de 40 μm (cf fig.3.17a) au centre du cristal. Le supercontinuum (SC) issu de la fibre ANDi, est collimaté et polarisé verticalement, puis focalisé à l'aide d'une lentille de focale f = 100 mm, pour atteindre un diamètre de 35 μm au foyer (cf fig. 3.17b), similaire au faisceau pompe à 515 nm. Le délai pompe-signal est contrôlé à l'aide d'une ligne à retard mécanique (Fastlite), capable de parcourir une distance de 30 mm (aller-retour) à une vitesse maximale de 0,9 mm/s, sur le trajet du faisceau à 515 nm. Dans cette configuration, une amplification d'environ un facteur 15 a été obtenue en prenant en compte à la fois le signal et l'*Idler* (avec une puissance injectée initiale du SC de 100 mW, et une puissance amplifiée signal + *Idler* de 1.5 W).



(a) Faisceau pompe à 515 nm (40 μm à 1/e^2)

(b) Faisceau signal SC (35 μm à 1/e^2)

FIGURE 3.17. – Tailles des faisceaux (515 nm pompe et SC) dans le cristal amplificateur

Les faisceaux de pompe et de SC sont spatialement recombinés en champ proche et en champ lointain à l'aide d'un dichroïque (HR515/HT625-2600, Eksma) qui réfléchit le 515 nm et transmet le visible pour que les deux faisceaux soient colinéaires. Le recouvrement temporel est ajusté à l'aide de la ligne à retard sur le chemin de la pompe. Ce recouvrement temporel est d'abord ajusté approximativement avec une photodiode (DET025AL/M, Thorlabs) et un oscilloscope rapide de 500 MHz (Wavevesurfer 3054, Teledyne Lecroy) avec une précision d'environ 100 ps. Une fois le délai approximatif entre les deux impulsions trouvé, le cristal non-linéaire LBO est placé de manière à ce que le foyer des faisceaux soit au centre du cristal. Pour vérifier le recouvrement temporel, un spectromètre résolu autour de 515 nm (450-650 nm) (AvaSpec-ULS2048L, Avantes) est positionné à la sortie du cristal pour détecter la pompe (515 nm) et la partie doublée du SC. Lorsque les impulsions commencent à se recouvrir temporellement, des franges d'interférence sont observées, résultant de l'interférence entre la pompe à 515nm et le doublement en fréquence du SC au voisinage de 515nm. En ajustant la distance entre les deux bras avec la ligne à retard mécanique, on atteint la "teinte plate" pour laquelle les impulsions sont au même délai (recouvrement parfait des impulsions). Une fois ce "délai zéro" trouvé, le spectromètre est remplacé par un dichroïque qui réfléchit la pompe et transmet le signal + *Idler*, suivi d'une lentille de collimation de f = 125 mm. Enfin, un dichroïque (DMSP1000, Thorlans) est utilisé pour séparer le signal de l'*Idler* et plusieurs prélévement de faisceaux servent à la caractérisation dans les parties du spectre visible et infrarouge, comme représenté sur le schéma de la figure 3.16b.

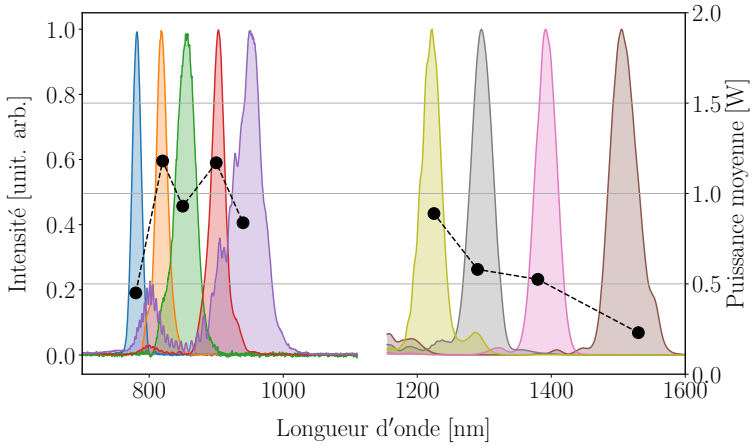
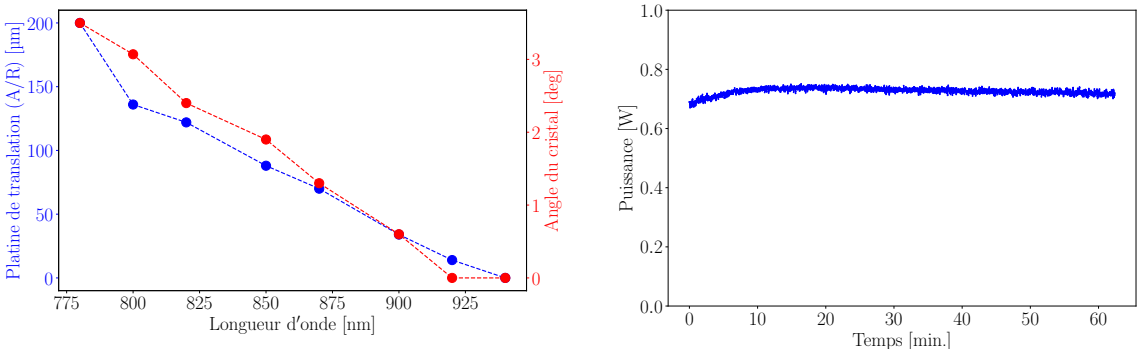


FIGURE 3.18. – Accordabilité de l'OPA et la puissance moyenne associée pour les parties visible et l'IR en fonction de la longueur d'onde

La dispersion intrinsèque du supercontinuum (SC) généré, combinée à celle des lentilles de collimation et de focalisation, allonge la durée de l'impulsion du SC à 600 ps (bande spectrale de 750-1000 nm, cf fig.3.19a). Comme expliqué dans la section 3.1.2 et illustré par les figures 3.2 et 3.19a, l'accordabilité du système s'effectue en ajustant le délai à l'aide d'une platine de translation entre la pompe et le SC, ainsi qu'en modifiant l'angle d'accord de phase par la rotation du cristal amplificateur. Les différentes longueurs d'onde sont ainsi sélectionnées par bandes (cf fig. 3.18), ce qui entraîne une variation linéaire du retard pompe-SC (courbe bleue de la figure 3.19a) et de l'accord de phase (courbe rouge de la figure 3.19a) en fonction de la longueur d'onde amplifiée. Comme représenté à la figure 3.18, la puissance moyenne mesurée pour la partie 1 μm (*Idler*) atteint 500 mW, mesurés à l'aide d'un puissance-mètre de 5W (S405C, Thorlabs), temporairement positionné sur le chemin du signal et de l'*Idler*. Cela correspond à une efficacité de conversion de l'ordre de 15 %, variable selon la longueur d'onde sélectionnées. En utilisant une lentille de focalisation de la pompe avec une focale plus courte, permettant une taille de faisceau au foyer plus petite (donc plus d'intensité par surface), nous avons atteint une puissance moyenne de 2 W dans la partie 1μm de l'ordre de 1W (cf fig. 3.16a).



(a) Variation du délai (à gauche en bleu) et de l'accord de phase (à droite en rouge) en fonction de la longueur d'onde amplifiée. Les 200 μm de course de la platine de translation correspondent à une longueur d'impulsion SC de 600 ps environ

(b) Stabilité du faisceau à 800 nm au cours du temps

FIGURE 3.19.

On représente à la figure 3.19b la stabilité du faisceau signal en sortie de l'OPA pendant une heure à la longueur d'onde de 800 nm, avec une injection du SC de 200 mW et une puissance de sortie de 750 mW mesurée au puissance-mètre en fin de chaîne (cf fig. 3.16b).

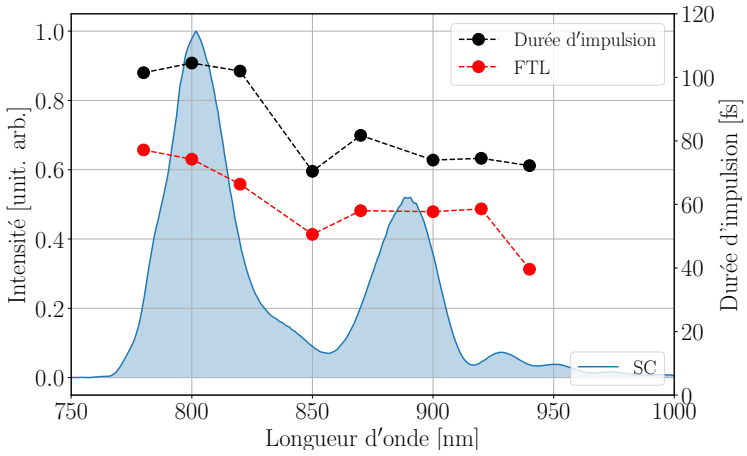
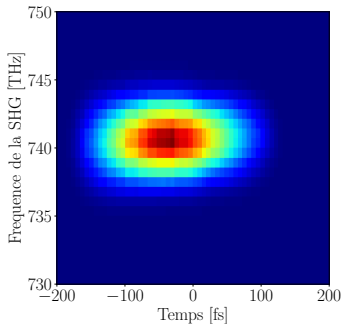


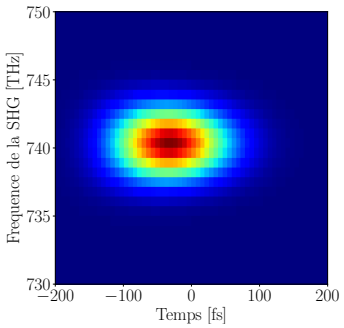
FIGURE 3.20. – Puissance de l'OPA, mesure FROG de la durée d'impulsion, avec en bleu le SC

L'écart-type de la puissance mesurée est d'environ 8 mW. Cette mesure a été réalisée dans des conditions contrôlées, sans présence humaine dans le laboratoire, afin de minimiser les variations de température et les fluctuations de l'air ambiant. La durée d'impulsion en sortie de l'OPA a été mesurée à l'aide d'un FROG (cf chap. 2 et le schéma de caractérisation présenté à la figure 3.16b). Le logiciel associé, Frozzer

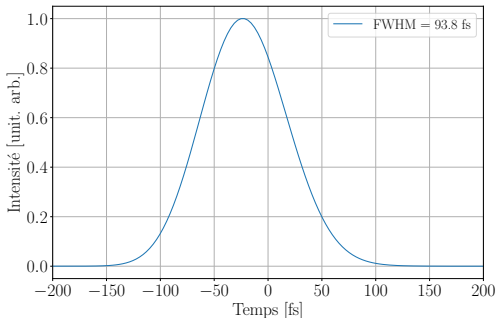
(Fastlite), permet d'analyser la trace FROG et de déterminer la durée de l'impulsion, ainsi que le spectre et la phase associés à la mesure. Dans un premier temps, une trace FROG a été réalisée à 800 nm (mesure présentée à la figure 3.21a) et la reconstruction de cette trace est montrée à la figure 3.21b. De cette analyse, une durée d'impulsion de 93 fs à mi-hauteur a été déduite (cf la figure 3.21c), ainsi que le spectre et la phase quadratique associés, représentés à la figure 3.21d. Enfin, la variation de la durée d'impulsion en fonction de la longueur d'onde a été étudiée, comme représentée à la figure 3.20. En sortie d'OPA, la durée d'impulsion varie de 100 à 80 fs, avec une durée FTL de 80 à 40 fs.



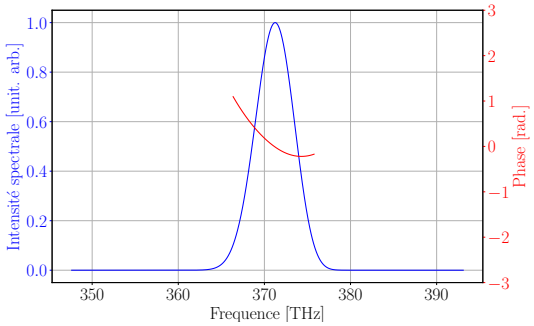
(a) Trace FROG mesurée



(b) Trace FROG reconstruite



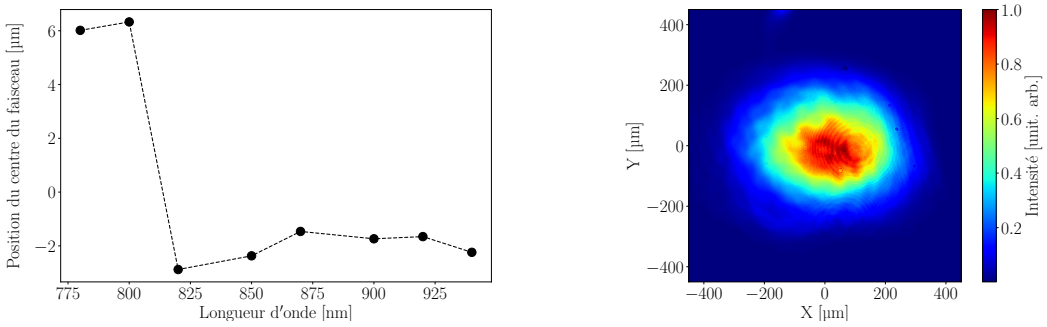
(c) Durée d'impulsion retrouvée



(d) Spectre et phase retrouvée

FIGURE 3.21. – Trace FROG mesurée à l'aide du Frozzer (Fastlite)

Enfin, le faisceau signal, légèrement déformé lors de l'amplification, en sortie de l'OPA est représenté à la figure 3.22b et l'on observe la position relative du faisceau en fonction de la longueur d'onde à la figure 3.22a. Cette position varie d'une dizaine de micromètres sur toute la plage de longueurs d'onde, pour une taille de faisceau d'environ 500 μm à $1/e^2$. Cette variation est d'environ 2 % par rapport à la taille totale du faisceau, ce qui est négligeable.



(a) Mouvement du faisceau signal en fonction de la longueur d'onde

(b) Profil spatial du faisceau en sortie d'OPA à 800 nm

FIGURE 3.22. – Dérive et profil spatial du faisceau signal en sortie d'OPA

3.3. Caractérisation du bruit d'intensité en fréquence

Matériel

Dans cette section, nous procédons à la caractérisation du bruit d'intensité relatif (RIN, voir chap. 2) du laser 1030 nm qui opère à une fréquence de répétition de 40 MHz, du SC généré par la fibre ANDi-PM, ainsi que du signal sortant de l'OPA. Pour quantifier le RIN, nous avons développé une méthodologie de mesure (annexe A et schéma fig. 3.23) basé sur [28]. Le banc de mesure comprend :

— Une photodiode rapide InGaAs (DET10N2, Thorlabs) : elle est polarisée (5 V), couplée en courant continu, avec un temps de monté de 5 ns et une largeur de bande de 70 MHz. Le photocourant de saturation est spécifié à 5 mA. L'efficacité quantique de cette photodiode à 1030 nm étant d'environ 0,7 A/W, la puissance optique moyenne maximale du détecteur doit être inferieur à 7 mW à 1030 nm. Une charge de 50 Ω est connectée directement à la sortie de la photodiode pour en ajuster l'impédance.

— Un filtre passe-bas (FPB) à 25 MHz (BLP-25, 15542, Mini-circuits), utilisé pour filtrer le taux de répétition de 40 MHz et les harmoniques du train d'impulsions optiques. La perte d'insertion est d'environ 0,5 dB, avec une coupure de -3 dB à 28 MHz et une rejection de 34 dB à 40 MHz.

— Un amplificateur Lock-in (LIA) (HF2LI, Zurich Instrument), que nous utilisons comme analyseur de spectre RF, de largeur de bande 50 MHz (DC-50 MHz) et avec un taux d'échantillonnage de 210 MSa/s.

— Un amplificateur à faible bruit (ZFL-500LN-BNC+, Mini-Circuits). La gamme dynamique du LIA n'étant pas suffisante pour atteindre la densité spectrale de puissance visée, un pré-amplificateur de tension est nécessaire. Nous utilisons un amplificateur à faible bruit avec un gain de > 24 dB sur 0,1-500 MHz. Avec

une alimentation de 15 V, le gain théorique est 28 dB. La puissance de sortie maximale (à une compression de -1 dB) est d'environ 8 dBm (6 mW, ou 1,6 V crête à crête sur 50 Ω).

— Un oscilloscope (Wavesurfer 3054 500Mhz 4GS/s Teledyne Lecroy), pour mesurer la tension aux bornes de la photodiode et ajuster la puissance optique envoyée sur celle-ci afin d'éviter la saturation.

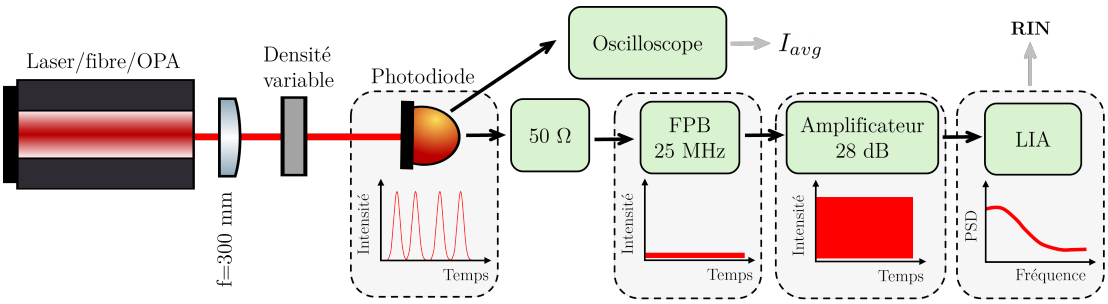


FIGURE 3.23. – Schéma expérimental de la mesure de RIN du laser 1030 nm du SC et du signal sortant de l'OPA

Calibration

Afin de calibrer la chaîne de détection, nous avons mesuré la fonction de transfert des différents composants du système de détection de bruit : l'amplificateur lock-in (LIA), le filtre passe-bas (FPB), et l'amplificateur. La fonction de transfert représente le gain ou la perte d'insertion en fonction de la fréquence. Pour ce faire, le LIA génère une onde sinusoïdale à une fréquence donnée, puis enregistre la densité spectrale de puissance (power spectral density, PSD) à cette même fréquence. En balayant la fréquence sur une plage de 0,1 à 40 MHz et en comparant le signal avec et sans l'élément considéré inséré, nous déterminons la fonction de transfert de chaque composant (cf fig. 3.24).

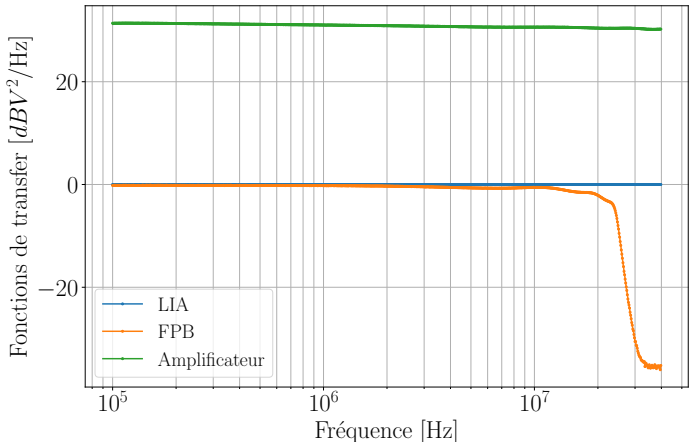


FIGURE 3.24. – Fonctions de transfert du LIA avec une résistance de charge de 50 Ω, du filtre passe bas (LPF) et de l'amplificateur

Ensuite, le laser a été focalisé à l'aide d'une lentille de focale longue (f = 300 mm) sur la photodiode (cf schéma fig. 3.23), et la tension moyenne en sortie a été mesurée par l'oscilloscope. La puissance optique a été augmentée jusqu'à observer des effets de saturation. Avec la photodiode DET10N2, la tension moyenne mesurée était de U_{avg} = 140 mV, ce qui correspond à un photocourant moyen de I_{avg} = 1.9 mA, et à un niveau de tension crête-à-crête de 705 mV. Pour minimiser les sources de bruits parasites, plusieurs précautions ont été prises, telles que la fixation des câbles à la table optique (c'est-à-dire près d'un plan conducteur), l'utilisation de câbles blindés 50 Ω, la mise à la terre de la table optique et la réduction du nombre de connecteurs. On rappelle que le RIN du *shot-noise* est déféni (cf eq. 2.26) comme :

$$RIN_{shot\text{-}noise} = \frac{2q}{I_{avg}} \tag{3.9}$$

Dans la pratique, les unités logarithmiques sont calculées selon la convention dB = 10Log$_{10}$(). Pour le photocourant moyen mesuré de I_{avg} = 1.9 mA, nous attendons donc :

$$PSD_{shot\text{-}noise} = -213 \text{ dBW/Hz} \tag{3.10}$$

$$RIN_{shot\text{-}noise} = -156 \text{ dB/Hz} \tag{3.11}$$

Résultats :

Le bruit du laser 1030 nm, de la fibre et du signal sortant de l'OPA sont représenté à la figure 3.25. Le RIN est analysé entre 100 kHz et 40 MHz. A 25 MHz on observe bien la coupure du filtre passe bas. La ligne rouge à $RIN_{shot\text{-}noise} = -156$ dB/Hz représente le RIN au *shot-noise*. Au delà de ≈ 1 MHz le bruit du signal OPA et de la fibre SC suivent

celui de la pompe. On retrouve effectivement les résultats de [54] du RIN du SC issu de la fibre ANDi. Théoriquement, la valeur du *shot-noise* a été vérifiée en mesurant le RIN

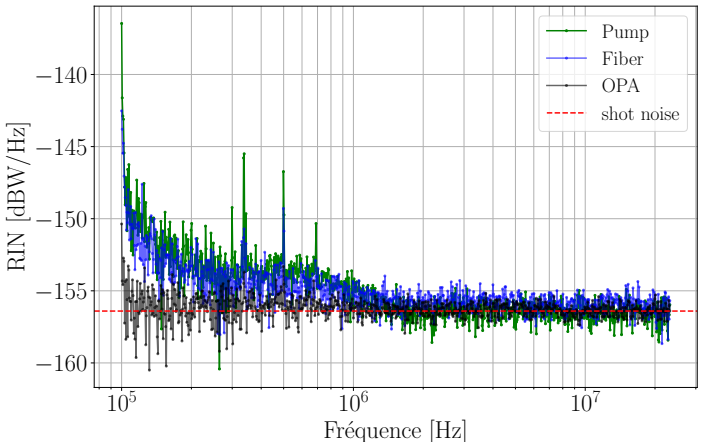


FIGURE 3.25. – RIN du laser 1030 nm, du SC issue de la fibre ANDi et du signal OPA à 800 nm de 0.1-40 MHz

du laser à 20 MHz en fonction du photocourant reçu par la photodiode. En augmentant le photocourant via l'ajustement de la densité variable, les courbes théoriques et expérimentales montrent une correspondance parfaite, confirmant une décroissance exponentielle comme attendue (cf fig.3.26). Nous avons étudié l'impact de la

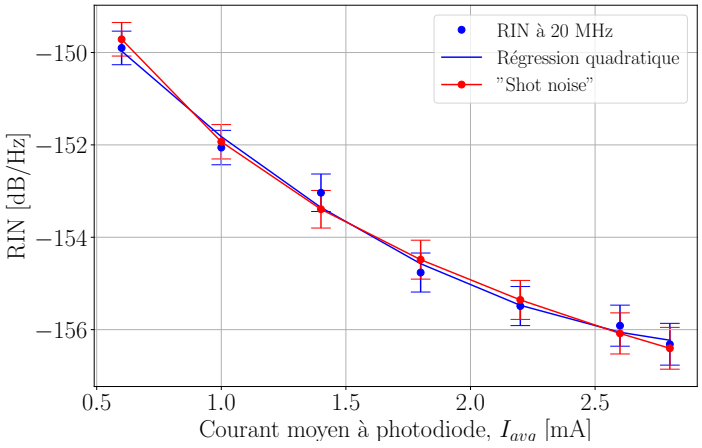


FIGURE 3.26. – RIN du laser à 20 MHz (bleu) et valeur théorique du *shot-noise* (rouge)

polarisation sur le RIN dans le système, en particulier en ce qui concerne le SC issu de la fibre ANDi-PM. En faisant varier l'angle de polarisation (de 0 à 180 degrés) à l'aide d'une lame d'onde avant l'entrée dans la fibre (cf fig. 3.9a), nous avons mesuré le RIN du SC à 20 MHz pour un photocourant constant de I_{avg}= 140 mV sur la photodiode. Il

est observé que la valeur du bruit RIN du SC issue de la fibre est fortement influencée par la polarisation d'entrée. En effet, la polarisation correcte de la fibre est déterminée par les contraintes internes imposées par les barreaux de bore (cf sec. 3.2.2.6). Le profil

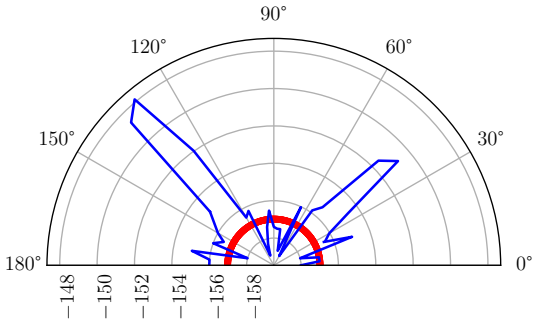


FIGURE 3.27. – RIN du SC issue de la fibre ANDi-PM à 20 MHz (bleu) pour une polarisation d'entrée entre 0 ° et 180 °) et la valeur du *shot-noise* théorique associé (rouge)

du bruit du SC en fonction de l'angle de polarisation (cf fig. 3.27) présente une forme sinusoïdale avec une symétrie quasi parfaite autour de 45 degrés, un phénomène similaire à celui rapporté dans [55]. Cependant, une asymétrie a été notée entre les deux axes principaux de la fibre, probablement due à une structure interne légèrement imparfaite de la fibre. Ce phénomène est particulièrement prononcé pour des longueurs d'onde inférieures à 800 nm. Au-dessus de cette plage (900 nm ou 1030 nm), le bruit semble indépendant de la polarisation, restant au niveau du *shot-noise*. Pour aligner correctement la polarisation de la fibre, on ajuste l'angle de sorte que le bruit à 20 MHz soit au niveau du *shot-noise* (ici à 0 ° et 90 °). Cette précaution est cruciale, car le faible bruit de la fibre se répercute sur le bruit total du signal OPA. Ainsi, maintenir un faible niveau de bruit dans la fibre est essentiel pour préserver le faible bruit du faisceau signal, étant donné que le processus de génération paramétrique de la pompe n'ajoute pas de bruit supplémentaire. Un autre fait intéressant observé lors de cette étude est qu'en plaçant un polariseur en sortie de la fibre, il n'y a pas d'extinction totale lorsque la polarisation est tournée entre 0° et 180°. Cela suggère que la polarisation en sortie de la fibre n'est pas parfaitement linéaire ou que des effets de biréfringence sont présents, entraînant une légère rotation de la polarisation. De plus, un phénomène important a été observé en mesurant le bruit du signal OPA : si l'OPA n'est pas à sa limite de saturation, le RIN ne se situe plus au niveau du *shot-noise*. La figure 3.28 illustre le RIN du signal OPA en fonction de la puissance de pompe à 515 nm, où l'on observe une augmentation du RIN de 2 dB, entre une puissance de sortie du signal OPA (< 1 μm) de 250 mW et de 900 mW.

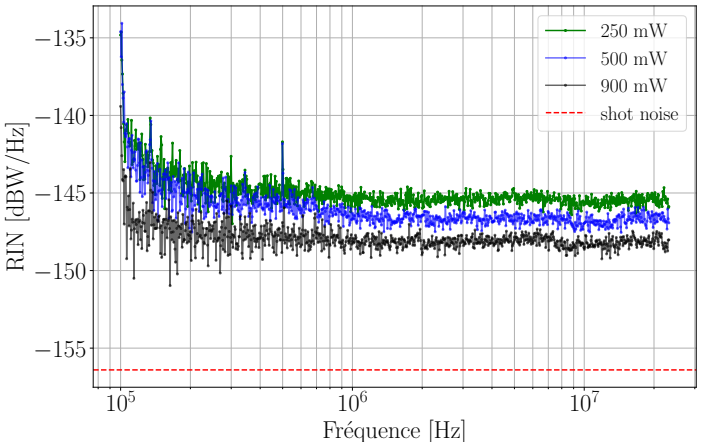


FIGURE 3.28. – RIN du signal OPA en fonction de l'intensité de la pompe. **Il est à noter que sur cette figure, le signal OPA n'est pas au *shot-noise* car la fibre était endommagée et donc créait un bruit supplémentaire de 8 dB**

3.4. Conclusion du chapitre

Pour conclure ce chapitre, un nouveau système fonctionnant à 40 MHz basé sur la technologie OPA pompé par un laser à solide Ytterbium a été développé. Ceci a été rendu possible grâce a l'utilisation de fibres à dispersions normales et maintient de la polarisation (ANDi-PM), pour générer le faisceau signal dans un SC avant l'étage d'amplification. À notre connaissance, une telle stratégie pour réaliser un OPA n'avait pas encore été utilisée. Les SC issues des fibres ANDi-PM n'utilisent que la SPM et ont on l'avantage de maintenir le faible bruit d'intensité provenant de la pompe laser. Une caractérisation complète de cette source a été effectuée : durée d'impulsion, spectre *Idler* et visible, puissance, stabilité long terme et mesure de bruit d'intensité. La source réalisé est accordable entre 750 nm et 1550 nm avec une zone de non-fonctionnement autour de 1030nm, elle délivre une puissance moyenne d'1W avec un rendement de 30 %, La durée d'impulsion se situe entre 80 fs et 100 fs et de façon remarquable, cette source présente un RIN au *shot-noise* à partir d'1MHz dont sa stabilité dépend non seulement de la polarisation en entrée dans la fibre, mais également de l'intensité de la pompe utilisée dans le processus d'amplification (l'OPA doit fonctionner à saturation pour présenter un RIN au *shot-noise*). Cette source à toutes les caractéristiques pour être utilisée pour de la microscopie et spectroscopie SRS et c'est ce que nous démontrerons au chapitre suivant. Ce travail a fait l'objet d'une publication sur ArXiv [56] (et en cours de réécriture pour une publication avec les résulats du chapitre 4), mettant en évidence la nouveauté et l'impact d'une telle source dans le domaine de la microscopie, comme présenté dans mon manuscrit.

4. Diffusion Raman Cohérente couplée à l'Amplificateur Paramétrique Optique

Dans ce chapitre, nous abordons l'acquisition d'images par imagerie moléculaire utilisant la technique de Diffusion Raman stimulée (SRS), dont les principes et la théorie sont détaillés au chapitre 1 et dans [10]. Ces images ont été obtenues grâce à l'OPA décrit au chapitre 3. Pour rappel, la réalisation du contraste SRS nécessite l'utilisation de deux lasers : le laser de pompe, de longueur d'onde λ_p, qui est la sortie de l'OPA, accordable entre 750 et 1000 nm (cf chap. 3) et le laser Stokes, de longueur d'onde λ_s qui correspond à la fuite du faisceau à 1026 nm du laser de pompe de l'OPA (cf chap. 3 et schéma 3.5). En SRS, nous nous intéressons aux niveaux vibrationels des molécules à travers leurs spectre Raman (cf. chap. 1), qui fournit des informations sur la structure chimique, l'environnement moléculaire, et les interactions chimiques au sein de l'échantillon étudié. Le spectre Raman est caractérisé par des pics correspondant à des modes vibrationnels spécifiques de la molécule. Chaque type de liaison chimique (C-H, O-H, N-H, C=O, C=C, etc.) possède une signature vibratoire unique, apparaissant à des décalages de fréquence spécifiques (dits *Raman shift* ou nombre d'onde R_s, exprimé en cm^{-1}). Par exemple, les vibrations C-H (lipides) se situent principalement entre 2700 et 3000 cm^{-1}, tandis que les vibrations C=O apparaissent autour de 1700 cm^{-1}. Dans cette section, on cible les pics Raman situés autour de R_s = 2700-3000 cm^{-1} pour observer les vibrations de *stretching* des liaisons C-H dans les échantillons [57]. Pour atteindre ce nombre d'onde, la relation entre le nombre d'onde R_s, la longueur d'onde de pompe λ_p, et la longueur d'onde Stokes λ_s est donnée par l'équation 1.2 :

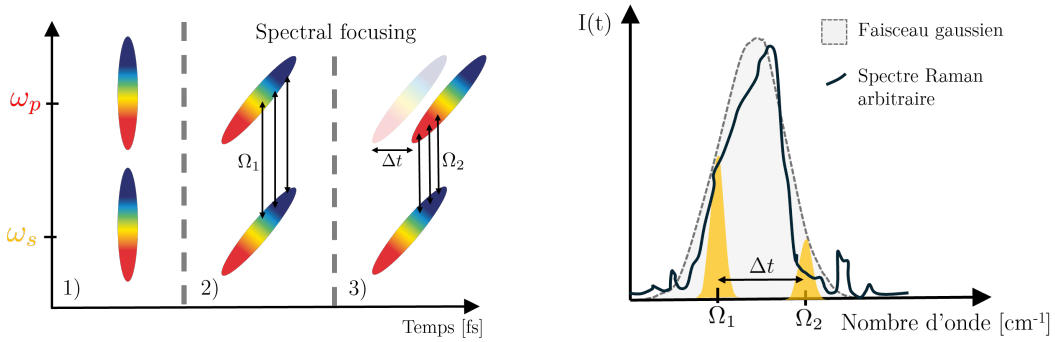
$$R_s = \frac{10^7}{\lambda_p} - \frac{10^7}{\lambda_s} \tag{4.1}$$

Ici λ_s est fixé à 1026 nm en raison du choix du laser de pompe. Par conséquent, λ_p doit être ajustée autour de 800 nm et pourra être accordée entre 785 et 805 nm. Les spectres réspectifs sont illustrés à la figure 4.4b. Ces deux faisceaux laser seront couplés de manière colinéaire dans un microscope à balayage rapide afin d'obtenir des images SRS avec une résolution de l'ordre de quelques μm. La détection du signal SRS est effectuée en utilisant le principe de la "modulation-démodulation" (cf chap. 1), qui permet d'extraire le signal Raman Stimulé de faible intensité. En acquérant ces images, nous procédons également à une caractérisation approfondie de l'OPA, explorant les différentes possibilités pour optimiser les paramètres nécessaires à la réalisation

du SRS. Par ailleurs, nous réalisons des images d'histologie Raman Stimulé, Raman Stimulated Histology (SRH), [58] sur des champs de vue de 300 μm à la vitesse de 1 image/s et une résolution spatiale de 1 μm, dont les performances sont comparables, voire supérieures, aux sources OPO de l'état de l'art [58].

4.0.1. Spectral focusing

Le *spectral focusing* ("focalisation spectrale" en francais) est une technique utilisée dans les expériences de SRS pour améliorer la résolution spectrale et ainsi optimiser l'excitation des modes vibratoires d'intérêt. La technique permet de "focaliser" (pour focusing) l'interaction énergétique sur une bande étroite (spectral) de fréquences correspondant à la transition Raman ciblée.



(a) Représentation temporelle des impulsions laser ω_p et ω_s. 1) Impulsions FTL synchonisé temporellement 2) Impulsions chirpées synchonisées temporellement 3) Impulsions chirpées où ω_p est retardé temporellement

(b) Spectre Raman arbitraire (en noir) montrant l'excitation des fréquences vibrationnelles Ω_1 et Ω_2 (en jaune), limitée par la forme gaussienne de l'impulsion (en gris) du faisceau pompe/sonde.

FIGURE 4.1. – Principe du *spectral focusing*

Pour atteindre cet objectif, les deux impulsions laser, initialement comprimées à leur limite de transformée de Fourier (FTL), sont volontairement chirpées. Elles traversent chacune un milieu dispersif, de manière à ce que leurs basses ou hautes fréquences respectives arrivent simultanément sur l'échantillon (en ajustant leur superposition temporelle avec une platine de translation sur un des chemins optique). Dans cette configuration, il devient possible d'exciter les vibrations moléculaires à une fréquence Ω_1 (illustrée dans la figure 4.1a à gauche) et visible sur le spectre Raman arbitraire de la figure 4.1b). Ensuite, à l'aide d'une platine de translation, le faisceau pompe ω_p est retardé ou avancé temporellement par rapport au faisceau sonde ω_s. Ce retard permet alors d'exciter une autre vibration moléculaire, à une fréquence Ω_2 (illustrée à la figure 4.1a au centre et sur le spectre Raman arbitraire de la figure 4.1b). En ajustant précisément le retard temporel entre les composantes chirpées ω_p et ω_s, il devient possible d'exciter l'ensemble des fréquences vibrationnelles comprises entre Ω_1 et Ω_2, permettant ainsi de reconstruire le spectre Raman complet de la molécule étudiée. Ce

processus dépend directement de la forme et de la largeur spectrale des impulsions initiales. La quantité de chirp appliquée joue un rôle crucial en influençant la bande spectrale d'excitation résultante. Un chirp plus important permet un ajustement plus précis des fréquences, ce qui améliore la résolution spectrale et facilite l'accès à des détails fins du spectre Raman. En revanche, un chirp trop important allonge l'impulsion et diminue l'intensité et donc l'éfficacité SRS. Il est alors nécessaire de trouver un compromis entre résolution spectrale et SNR.

4.1. Mise en place de l'expérience

Pour utiliser le principe du spectral focusing et obtenir un signal SRS, les faisceaux λ_p et λ_s sont chirpés à l'aide de barreaux de verre. Le faisceau λ_s est modulé à la moitié de la cadence de répétition de l'OPA (20 MHz) afin d'obtenir un signal deux fois plus intense à la détection (cf. chap. 1), ceci grâce à un modulateur acousto-optique (AOM). Les faisceaux λ_p et λ_s sont ensuite recombinés spatialement et temporellement via un miroir dichroïque, puis dirigés vers un microscope à balayage rapide où se trouve l'échantillon à étudier. Le signal SRS en sortie de cet échantillon est ensuite analysé par la chaîne de détection.

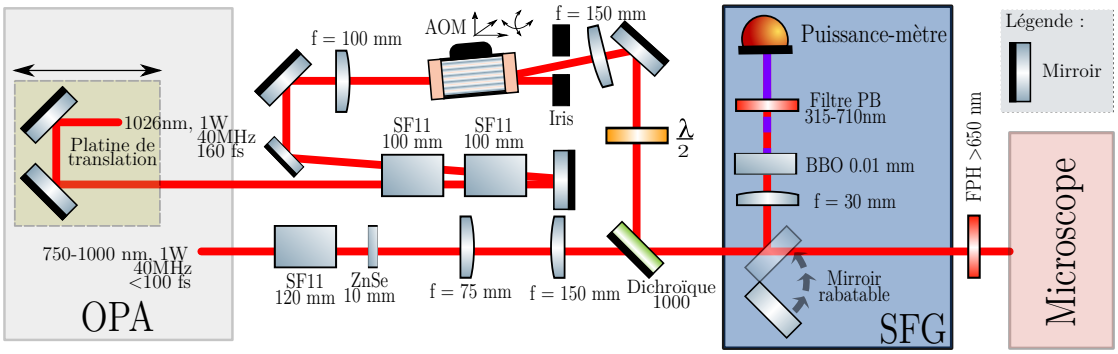


FIGURE 4.2. – Schéma de la l'experience SRS

Expérimentalement, et comme représenté à la figure 4.2, le faisceau à 1026 nm sortant de l'OPA est d'abord chirpé pour atteindre une durée d'impulsion de 1 ps (cf sec. 4.1.2). Cette opération est réalisée à l'aide de deux barreaux de verre SF11 de 100 mm de long (SF11L1100, Newlightphotonics), avec un double passage dans chaque barreau. Le faisceau est ensuite focalisé à l'aide d'une lentille de focale $f = 100$ mm dans un modulateur acousto-optique (AOM), cf sec. 4.1.1, monté sur un support à cinq axes pour ajuster la posititon de celui ci par rapport au faisceau incident. À la sortie de l'AOM, un iris est placée pour sélectionner uniquement le faisceau modulé dans l'ordre 1, bloquant ainsi le reste du faisceau non désiré. Le faisceau modulé est ensuite collimaté avec une lentille de focale $f = 150$ mm pour atteindre une taille de faisceau d'environ 2 mm à $1/e^2$ (pour recouvrir en quasi-totalité les miroirs galvanomètriques du microscope). Une lame demi-onde est utilisée pour ajuster la polarisation du

faisceau à 1026 nm, assurant ainsi une polarisation horizontale, identique à celle du faisceau à 800 nm. Un miroir de renvoi est ensuite utilisé pour ajuster la position du faisceau sur le miroir dichroïque (DMSP1000, Thorlabs), qui réfléchit le faisceau à 1026 nm. Le faisceau à 800 nm, également sorti de l'OPA, passe à travers un barreau SF11 de 100 mm (SF11L1100-AR800, Newlightphotonics), un barreau SF11 de 20 mm (SF11G1200-AR800, Newlightphotonics), et un dernier barreau de 10 mm de ZnSe (référence inconnue). Il traverse ensuite un télescope composé de deux lentilles de focales $f = 150$ mm et $f = 75$ mm, ce qui double la taille du faisceau pour égaler celle du faisceau à 1026 nm. Les faisceaux à 1026 nm (modulé) et 800 nm (non modulé) sont alors recombinés spatialement et temporellement (cf sec. 4.1.3). Enfin, ils passent à travers un filtre passe-haut (FGL650, Thorlabs) pour éliminer les éventuels résidus, tels que ceux à 515 nm ou ceux issus des réflexions sur les barreaux de verre, avant d'être dirigés vers le microscope pour l'imagerie SRS.

4.1.1. Modulateur Acousto-Optique (AOM)

Le Modulateur Acousto-Optique (AOM) utilisé (MT200-A0.2-1064, Opto-electronic) est composé d'un cristal de paratellurite (TeO_2) de 10 mm de long, avec une bande passante Radiofréquence (RF) de 200 MHz, et une ouverture de 0.2×1 mm^2. L'AOM est un dispositif permettant de moduler des faisceaux lumineux en utilisant l'effet acousto-optique, c'est-à-dire l'interaction entre des ondes acoustiques et des ondes optiques dans un milieu transparent [59]. Une onde acoustique (ici à 20 MHz) est générée par un transducteur piézoélectrique. Cette onde génère des variations périodiques de l'indice de réfraction du matériau à travers l'effet photoélastique [59]. Ce réseau de variations de l'indice de réfraction agit comme un réseau de diffraction pour la lumière incidente. La lumière entrant dans l'AOM est alors diffractée par ce réseau dynamique, et l'angle de diffraction, ainsi que l'intensité des faisceaux diffractés, dépendent de la fréquence et de l'amplitude de l'onde acoustique. Pour obtenir une modulation du faisceau incident et dans un millieu isotrope (vrai en première approximation) la première condition de Bragg [60] doit être satisfaite, telle que :

$$\sin\theta_B = m\frac{\lambda}{2n\Lambda}$$

où $\lambda = 1026$ nm est la longueur d'onde de la lumière incidente, $\Lambda \approx 0.21$ mm est la longueur d'onde de l'onde acoustique dans le matériau calculée à partir de $\Lambda = v_s/F$ avec $v_s = 4200$ m/s la vitesse du son dans le TeO_2 et $F = 20$ MHz la fréquence de modulation, $n = 2.2034$ est l'indice de réfraction ordinaire du matériau, $m = 1$ est l'ordre de diffraction, et θ_B est l'angle d'incidence par rapport à l'onde acoustique (cf fig. 4.3). L'efficacité attendue est spécifiée à 80% pour la diffraction de l'ordre 1 et donc pour une modulation à la moitié de la cadence d'entrée, on a théoriquement 80% / 2 = 40%.

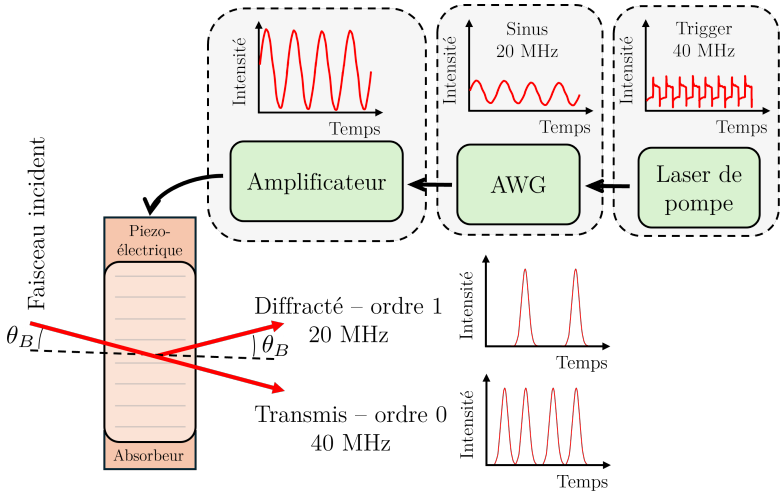


FIGURE 4.3. – Schéma de principe de l'AOM

La configuration expérimentale est illustrée à la figure 4.3. Un signal sinusoïdal de 20 MHz est généré à l'aide Générateur de fonctions Arbitraires (AWG) (SDG 2082X, Siglent) et est ensuite amplifié via le driver de fréquence fixe fourni avec l'AOM. Afin de synchroniser l'onde acoustique avec le train d'impulsions incident, l'AWG est synchronisé avec le déclencheur (*trigger*) du laser de pompe de l'OPA (Flint, Light Conversion), fonctionnant à une fréquence de 40 MHz. Pour adapter ce signal au générateur de fonctions, qui n'accepte qu'un signal carré à 10 MHz, le signal de déclenchement est préalablement reformé et divisé par un facteur de 4, grâce à un diviseur de fréquence (PRL-260BNT, Pulse Lab Research).

Le modulateur acousto-optique (AOM) est monté sur une monture à cinq axes, permettant des ajustements de translation sur trois axes afin d'optimiser avec précision l'alignement de l'AOM par rapport au faisceau incident. Les deux autres axes permettent la rotation et sont utilisés pour ajuster l'angle de Bragg, θ_B. Le faisceau incident, polarisé linéairement, est focalisé au centre du cristal de l'AOM à l'aide de la lentille de focale $f = 150$ mm (cf fig. 4.2). Après passage dans l'AOM, le faisceau modulé à 20 MHz présente une efficacité de modulation de 30 %, légèrement inférieure à l'efficacité théorique.

4.1.2. Chirp des faisceaux

Nous cherchons à chirper les faisceaux Stokes et pompe pour obtenir une durée d'impulsion de 1 ps, similaire avec les conditions décrites dans [58] pour mettre en oeuvre la technique de *spectral focusing* et pour obtenir une résolution spectrale vibrationelle de l'ordre de 10 cm^{-1}. À la sortie de l'OPA, le faisceau stokes à 1026 nm présente une durée d'impulsion de 160 fs FTL, tandis que le faisceau à pompe à 800 nm

a une durée de 93 fs et 87 fs FTL (cf fig. 3.20). Dans ce cas, comme nous souhaitons ajouter un chirp positif, il suffit d'introduire des matériaux dispersifs dans le trajet du faisceau. Nous avons étudié différents matériaux fortement dispersifs [61] en examinant la GVD exprimée en fs^2/mm, qui est le chirp induit sur une impulsion pour 1 mm de matériau. Nous avons choisi les matériaux avec la plus grande GVD :

Matériau	GVD à 1026 nm (fs^2/mm)	GVD à 800 nm (fs^2/mm)
SF11	125.35	187.50
ZnSe	641.77	1054.70

TABLEAU 4.1. – Dispersion des vitesses de groupe (GVD) pour les matériaux SF11 et ZnSe

A l'aide du logiciel OPCPA Tools (Fastlite), nous avons calculé le chirp nécessaire pour étirer nos impulsions initiales à 1 ps :

— 56964 fs^2 à 1026 nm
— 31259 fs^2 à 800 nm

En prenant en compte que le faisceau à 1026 nm est déjà chirpé par son passage dans l'AOM (chirp équivalent à 172.42 fs^2), et en négligeant le passage dans les autres optiques jusqu'au microscope, nous avons déterminé qu'il est necessaire d'ajouter 450 mm de SF11 sur le trajet du faisceau à 1026 nm et 170 mm de SF11 (ou 120 mm de SF11 et 10 mm de ZnSe) sur le trajet du faisceau à 800 nm.

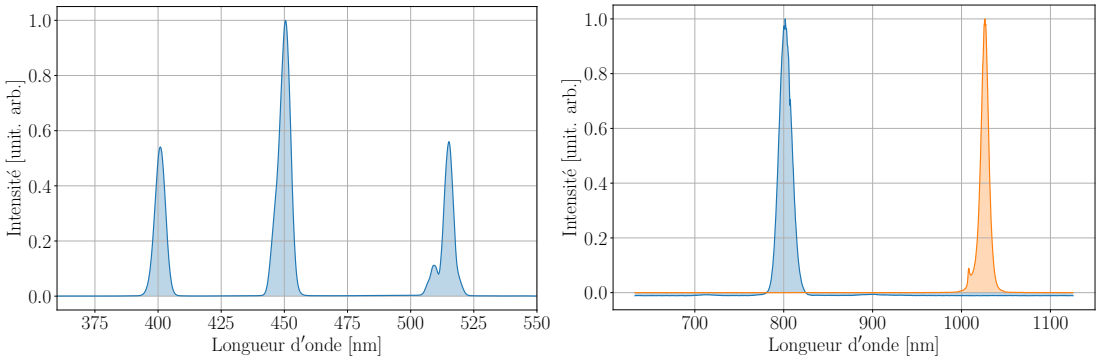
4.1.3. Recouvrement temporel

Pour synchroniser temporellement les trains d'impulsions à 1026 nm et 800 nm, le chemin optique à la sortie de l'OPA est ajusté sur les deux bras, en prenant en compte le passage à travers les différentes optiques. Après le dichroïque de recombinaison des faisceaux pompe et Stokes (cf fig. 4.2), les faisceaux sont spatialement superposés. Le recouvrement temporel est d'abord ajusté approximativement à l'aide d'une photodiode (DET025AL/M, Thorlabs) et d'un oscilloscope rapide de 500 MHz (WaveSurfer 3054, Teledyne LeCroy) avec une précision de 100 μs. Ensuite, ces deux faisceaux passent par un miroir rabattable dans la "ligne de caractérisation SFG" présentée à la figure 4.2, permettant de vérifier le recouvrement temporel. L'objectif est de produire la SFG des faisceaux à 1026 nm et 800 nm (cf chap. 2). Pour ce faire, les faisceaux sont focalisés colinéairement dans un cristal de 0.01 mm de BBO de type 1. Pour chaque faisceau, l'angle d'accord de phase du cristal de BBO est ajusté pour obtenir la SHG. Le faisceau à 1026 nm génère un faisceau vert à environ 515 nm (1026 nm/2), tandis que le faisceau à 800 nm génère un faisceau bleu à 400 nm. Pour rappel, l'équation de la SFG (cf eq. 4.2) est donnée par :

$$\frac{1}{\lambda_{SFG}} = \frac{1}{\lambda_p} + \frac{1}{\lambda_s} \tag{4.2}$$

ce qui correspond à un signal SFG à $\lambda_{SFG} = 450$ nm (cf fig. 4.4a). Après le cristal

doubleur, un filtre passe-bande 315 – 710 nm est placé pour filtrer les lasers pompe et Stokes, et ne laisser passer que les trois faisceaux générés (515 nm, 400 nm, et 450 nm). Ces signaux sont observés à l'aide d'un spectromètre fibré (FLAME-T-VIS-NIR-ES, Ocean Insight) avec une large bande spectrale (300 – 1050 nm). Grâce à la platine de translation mécanique motorisée (Fastlite) et contrôlée par le logiciel Mozzer (Fastlite) sur la ligne à 1026 nm (cf. fig. 4.2), le chemin optique entre les deux bras est ajusté, modifiant ainsi le délai optique entre ces derniers. Une fois que les impulsions sont synchronisées, le signal à la somme des deux faisceaux (SFG) est observé, comme présenté à la figure 4.4a.



(a) Spectre de la SFG et SHG des faisceaux λ_p et λ_s

(b) Spectre λ_p en bleu et λ_s en orange

FIGURE 4.4. – Spectre de la génration de SHG, SFG, le faisceau de pompe à λ_p et le faisceau Stokes λ_s

4.1.4. Microscope et détection

Les faisceaux laser, ayant un diamètre de 2 mm à $1/e^2$, sont dirigés vers un microscope à balayage conçu en interne (voir fig. 4.5), basé sur [62] et [14]. Le signal SRS produit par l'échantillon est analysé par la chaîne de détection contrôlée par le logiciel open-source ScanImage [63].

Dans un premier temps, les faisceaux sont réflechis par des miroirs galvanométriques [58], capables de balayer un champs de vue de 300 μm en 1 s (512x512 pixels), dont les signaux de scan sont générés par une carte d'acquisition reliée à un ordinateur et au logiciel ScanImage. Afin de minimiser les aberrations induites par le balayage des galvanomètres, les faisceaux passent ensuite à travers un couple de lentilles à balayage. Ces lentilles, avec des focales respectives de $f = 50$ mm et $f = 80$ mm, permettent d'agrandir la taille des faisceaux par un facteur d'environ 1.5. Les faisceaux Pompe et Stokes sont ensuite dirigés vers un séparateur de faisceaux, qui permet de détécter les signaux de fluorescence à 2 photons et de génération de seconde harmonique. Les faisceaux passent ensuite à travers un objectif de microscope 25×, à immersion d'eau (LWD 25X1-100W/0-0/17 DIC N2, Nikon), avec une distance de travail de 1 mm, monté sur un piézoélectrique permettant un déplacement de 400 μm. Les faisceaux

sont focalisés sur l'échantillon pour atteindre une taille de 1 μm au foyer.

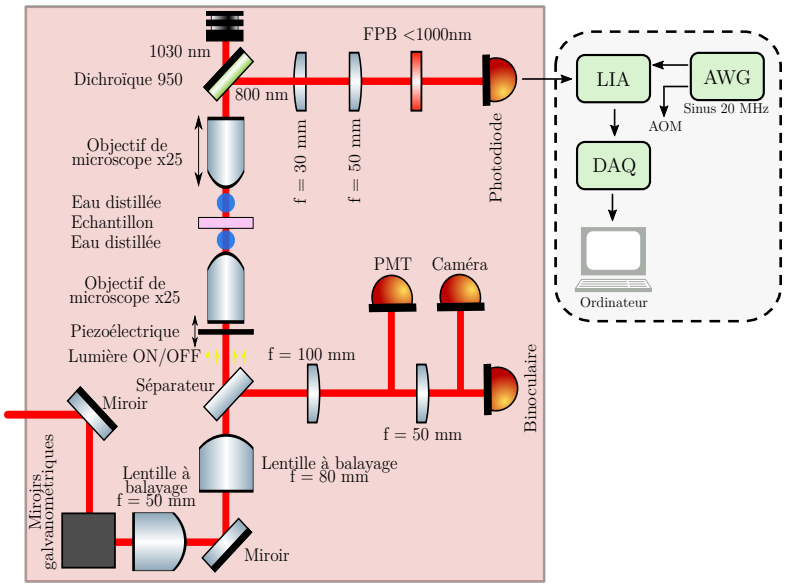


FIGURE 4.5. – Schema du microscope et de la detection

La fluorescence à 2 photons et la SHG sont collectés par l'objectif et redirigés par le séparateur de faisceaux, puis vers le photomultiplicateurs (PMT). Cette partie du montage comporte également une caméra et permet d'observer l'échantillon à l'aide d'une binoculaire. La binoculaire est particulièrement utile pour rechercher des zones d'intérêt dans les échantillons et pour ajuster le point de focalisation, assurant ainsi une résolution optimale de l'image. Si le microscope est correctement aligné, une image nette dans la binoculaire correspondra à une image nette lors de la détection sur le logiciel ScanImage. Après avoir traversé l'échantillon, le signal SRS est généré, et les faisceaux restants sont collectés à l'aide d'un condenseur (Abbe, Nikon), monté sur une platine de translation manuelle, ce qui permet un ajustement précis de la collimation. Les faisceaux sont ensuite séparés par un miroir dichroïque, qui transmet la composante à 1026 nm utilisée uniquement pour la modulation, tout en réfléchissant la composante à 800 nm contenant l'information SRS. Le faisceau réfléchi est ensuite agrandi par un couple de lentilles et passe à travers deux filtres passe-bas à 1000 mm pour s'assurer que seul le signal à 800 mm atteigne la photodiode. Cette dernière est reliée à un detecteur synchrone (LIA) (Lock-In Amplifier, APE), où le gain du signal est ajustable entre 0 dB et 60 dB et où le signal est démodulé à 20 MHz. La démodulation est possible grâce à un signal référence de 20 MHz envoyé par le même générateur de fonctions utilisé pour l'AOM (cf fig. 4.3) avec lequel il est synchronisé. Le LIA est connecté à la carte d'acquisition reliée à l'ordinateur, permettant d'obtenir directement l'image SRS balayée par les galvanomètres via le logiciel ScanImage. Ce logiciel permet également de régler le focus de l'objectif du microscope sur l'échantillon, le zoom, la vitesse d'acquisition des images, la taille des images, ainsi que le contraste

des images.

4.2. Résulats

Pour réaliser des images SRS, nous avons d'abord identifié le signal sur un échantillon présentant une intensité élevée de pics SRS, puis optimisé les divers paramètres de couplage. Cela inclut le recouvrement spatial et temporel des faisceaux, le couplage dans le microscope, l'alignement du microscope, la polarisation des faisceaux, la taille des faisceaux, la modulation via l'AOM et sa phase appliquée. Ces optimisations sont essentielles pour maximiser la qualité du signal SRS et obtenir des images résolues et avec un bon contraste. Une fois les paramètres optimisés, nous avons étudié la dépendance du signal SRS par rapport à l'intensité des faisceaux de pompe et Stokes. Ensuite, nous avons examiné comment le bruit d'intensité relative (RIN) influence la qualité des images. Par la suite, nous avons reconstitué un spectre Raman, ce qui nous a permis de caractériser les échantillons en fonction de leurs modes vibrationnels. Enfin, nous avons observé des echantillons pour l'histologie (Stimulated Raman Histology - SRH), en réalisant des images à haute résolution spatiale et temporelle, comparables aux performances des systèmes SRH actuels utilisant des OPO picosecondes.

4.2.1. Image SRS

Le premier échantillon est constitué de billes de polyméthacrylate de méthyle (PMMA) de 20 μm de diamètre, immergées dans de l'huile. Pour l'huile, le pic Raman visé se situe à 2753,41 cm^{-1}, correspondant aux vibrations des liaisons C-H, plus précisément aux modes de stretching symétrique et asymétrique des chaînes d'hydrocarbures [57]. Pour le PMMA, le pic visé se situe autour de 2950 cm^{-1}, correspondant également aux vibrations C-H, mais présentant une plus grande complexité en raison de la structure polymérique. L'objectif dans cette expérience est d'obtenir un signal SRS dans le PMMA. Selon l'équation 1.2, cela correspond à une longueur d'onde de pompe accordée à 800 nm (cf. spectre à la figure 4.4b). Après passage à travers l'ensemble des composants optiques avant le microscope, les intensités des faisceaux mesurées pour cette expérience sont P_p = 110 mW pour le faisceau pompe et P_s = 76 mW pour le faisceau Stokes. La figure 4.6 présente les résultats obtenus avec les paramètres suivants : balayage du microscope avec 256 pixels par ligne, une fréquence de trame de 1,71 Hz, et un temps de séjour par pixel (Pixel Dwell Time) de 8 μs. Le temps d'intégration du lock-in est fixé à 2 μs, sans gain supplémentaire. Le contraste d'intensité SRS entre le PMMA et l'huile est de 3,25. En effet, l'huile présente un signal SRS à 2950 cm^{-1}, ce qui explique que l'images des billes n'est pas sur "fond noir".

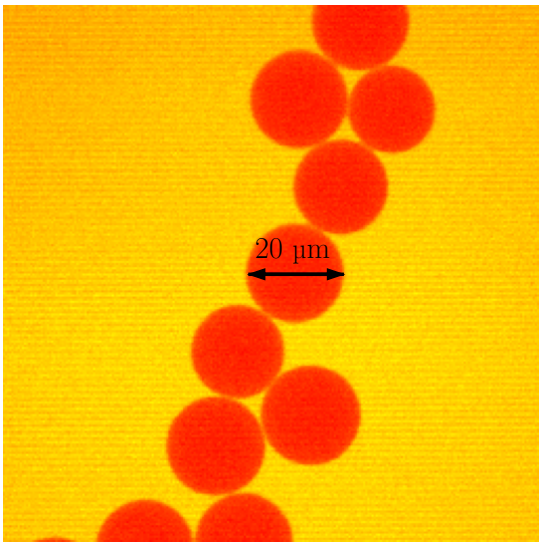


FIGURE 4.6. – Image SRS de billes de PMMA dans de l'huile (100x100 μm - 512x512 px - 2950 cm^{-1} - Intégration par pixel 8 μs - P_p = 110 mW - P_s = 76 mW

4.2.2. Dépendance du signal SRS avec P_p , P_s

Le niveau d'intensité du signal SRS est caractérisé en fonction des puissances des faisceaux Stokes et pompe, mesurées avant leur entrée dans le microscope. Pour ce faire, une série d'images SRS de résolution 512x512 pixels est acquise, comme illustré à la figure 4.6. L'intégration de l'intensité est réalisée sur la somme de tous les pixels d'une zone d'huile sélectionnée de dimension 100x100 pixels. Ces images ont réalisées avec un temps d'intégration de la détection synchrone de 300ns de 300 ns, avec un pixel dwell time de 1.6 μs, et un gain de 14 dB en mode de balayage bidirectionnel. Dans la première expérience, la puissance du faisceau pompe est maintenue constante à $I_p = 155\,mW$ tandis que la puissance du faisceau Stokes est ajusté de 170 mW à 10 mW (courbe bleue sur la figure 4.7) en utilisant un duo lame-d'onde/polariseur situé sur le trajet du faisceau à 1026 nm de l'OPA (cf fig. 3.5) pour atténuer P_s. Dans la deuxième expérience, la puissance du faisceau Stokes est maintenue constante à $I_s = 170\,mW$, tandis que celle du faisceau pompe est ajusté de 150 mW à 10 mW (courbe orange sur la figure 4.7) à l'aide d'une densité variable (le recouvrement temporel ayant été ajusté au préalable). Comme illustré sur la figure 4.7, les deux courbes montrent un profil linéaire, ce qui indique que l'intensité du signal SRS est proportionnelle à l'intensité des faisceaux pompe et Stokes. Il est observé que plus la puissance du faisceau Stokes est élevée, plus le signal SRS est intense, tandis que la variation de puissance du faisceau pompe à un impact moindre, avec une variation de 30% entre les valeurs minimales et maximales, contre 120% pour le faisceau Stokes.

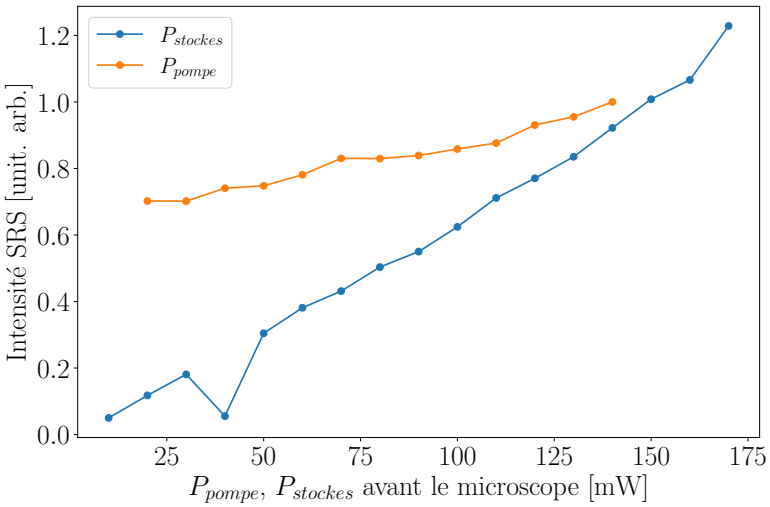
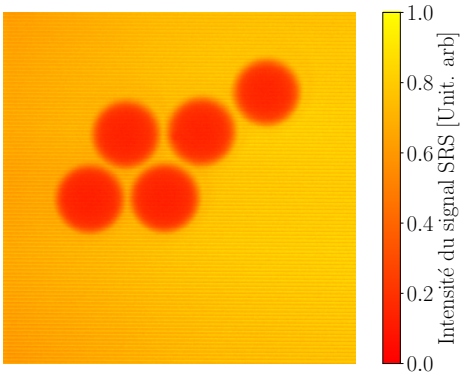


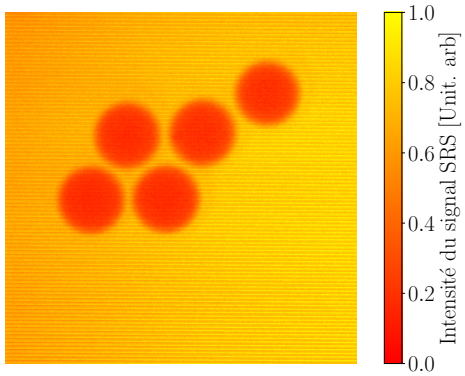
FIGURE 4.7. – Variation du signal SRS avec les puissance Pompe et Stokes - Echantillon huile

4.2.2.1. Qualité du signal SRS avec le RIN

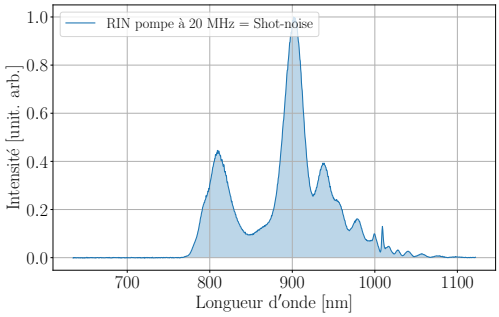
Nous présentons maintenant la dépendance du RIN avec l'intensité du signal SRS, en utilisant à nouveau l'échantillon composé d'huile et de billes de PMMA. Comme démontré au chapitre 3, le RIN en sortie de l'OPA dépend de l'orientation de la polarisation dans la fibre (cf sec.3.3). Pour rappel, si la polarisation à l'entrée de la fibre dans l'OPA n'est pas alignée avec l'axe propre de la fibre, une dépendance sinusoïdale du bruit de phase avec cette polarisation est observée. Cela signifie qu'en ajustant la polarisation avant la fibre, il est possible de faire fonctionner l'OPA dans des conditions de *shot-noise* ou non. C'est sur cette base que les mesures ont été effectuées. Dans un premier temps, nous avons réalisé une image similaire à celle décrite précédemment, cette fois avec un temps d'intégration du LIA de 300 ns, un gain de 40 dB, 256 pixels par ligne, une fréquence de trame de 0,86 Hz, et un temps d'intégration par pixel de 1.6 μs. Les puissances utilisées sont de P_p = 100 mW et P_s = 110 mW. L'image obtenue est présentée à la figure 4.8a, où l'on observe un rapport signal/bruit (SNR = $\frac{<I_{SRS}>^2}{V_{SRS}}$) amélioré, avec une valeur de SNR = 10,3 grâce au gain élevé appliqué. Le spectre de la fibre associé à cette configuration est montré à la figure 4.8c. Le RIN du faisceau pompe a ensuite été mesuré avant le microscope en utilisant la même méthode décrite à la section 2.4.1. À 20 MHz, le RIN est de -156 dB/Hz, ce qui correspond au *shot-noise*.



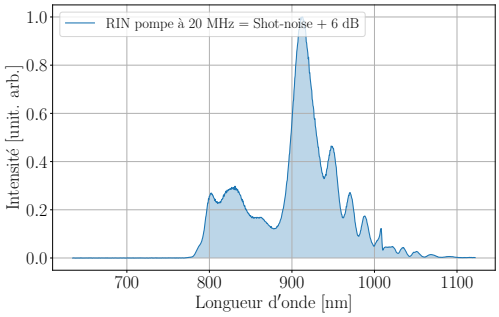
(a) Image SRS : bille de PMMA et huile pour une polarisation d'entrée de 0° par rapport a l'axe de la fibre (cas 1 : *shot-noise*)



(b) Image SRS : bille de PMMA et huile pour une polarisation d'entrée de 45° par rapport a l'axe de la fibre (cas 2 : *shot-noise* + 6 dB)



(c) Spectre du SC en sortie de fibre dans l'OPA associé à la polarisation 0°



(d) Spectre du SC en sortie de fibre dans l'OPA associé à la polarisation 45°

FIGURE 4.8. – Images SRS, spectre du SC et valeur du RIN pour des polarisation de 0° et 45° en entrée de fibre dans l'OPA. **NB : Ces spectres sont plus modulés que celui présenté dans la partie 3 car la fibre utlisée avait perdu de ses capacité de couplage (endomagement de la surface de la fibre) et donc la SPM n'est plus l'effet non-linéaire majeur et on observe l'augmentation de l'*Optical Wave Breaking*.**

Il est important de noter que la polarisation de la fibre avait été ajustée à un angle de 0° dans la section 3.2.2.6 afin de minimiser le bruit de phase de l'OPA pour les mesures SRS. Ensuite, en tournant la polarisation de 45°, un spectre plus modulé est observé sur figure 4.8d. Le RIN du faisceau pompe est mesuré à -150 dB/Hz (en ayant au préalable réajusté la polarisation du faisceau de pompe avant le microscope), soit 6 dB au-dessus du *shot-noise*. L'image SRS correspondante est présentée à la figure 4.8b, où le SNR est calculé à 9,4, soit environ 10% en dessous du SNR obtenu avec le faisceau Stokes au *shot-noise*. La dépendance sinusoïdale de la polarisation en fonction du RIN se retrouve dans la dépendance de la polarisation en fonction de l'intensité du signal SRS. Ces résultats démontrent la dépendance du bruit de phase sur les mesures SRS et l'importance cruciale d'avoir des faisceaux Stokes et pompe

avec un bruit de phase minimal pour obtenir des images avec une bonne résolution, notamment pour des échantillons où les pics Raman sont plus faibles.

4.2.3. Spectre Raman

Nous avons cherché à mesurer le spectre Raman du diméthylsulfoxyde (DMSO) en utilisant notre montage expérimental. Le DMSO possède plusieurs bandes Raman caractéristiques, notamment autour de 2900 cm^{-1}, qui correspondent aux vibrations de valence des liaisons C-H dans les groupes méthyle (–CH_3). Plus précisément, la bande située autour de 2910-2920 cm^{-1} est majoritairement attribuée à l'étirement symétrique des liaisons C-H du groupe –CH_3, avec un pic Raman distinct à 2915 cm^{-1}. Pour sonder cette bande spécifique, nous avons accordé l'OPA à λ_s = 790 nm.

Dans cette partie, nous utilisons le principe du *spectral focusing*, qui permet de cibler une bande spectrale étroite, malgré le large spectre des impulsions pompe + signal. Le chirp temporel des impulsions, passant de 160 fs à 1000 ps pour 1026 nm et de 90 fs à 1000 ps pour 790 nm, étale les impulsions dans le temps et modifie ainsi la relation fréquence-temps. En ajustant le délai entre les deux impulsions à l'aide de la platine de translation, il est possible de balayer les fréquences de battement entre les deux lasers. Ce balayage permet de sélectionner une transition Raman spécifique dans l'échantillon.

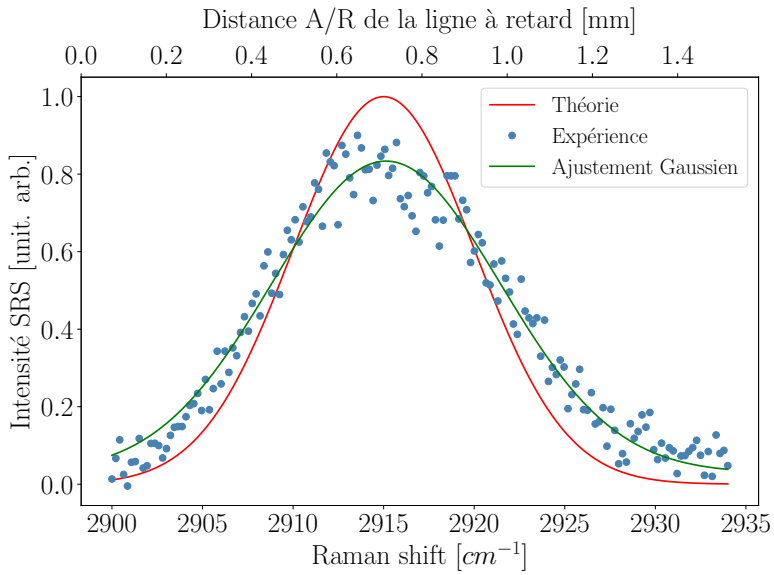


FIGURE 4.9. – Spectre Raman du DMSO à 2915 cm^{-1} reconstitué et théorique

Expérimentalement, ce délai est ajusté à l'aide d'une platine de translation mécanique (Fastlite) contrôlée par le logiciel Mozzer (Fastlite) sur la ligne à 1026 nm dans l'OPA (cf fig. 4.2). Pour chaque position de la platine (correspondant à un délai spécifique et

donc à un nombre d'onde spécifique), une image SRS est capturée, puis l'intensité SRS de tous les pixels de l'image est intégrée pour obtenir l'intensité SRS associée à ce délai. Les paramètres expérimentaux sont : image de 256x256 pixels, fréquence de trame de 2,43 Hz, temps d'intégration par pixel de 5,6 μs, temps d'intégration du lock-in de 100 ns, gain de 51 dB, P_p = 100 mW, et P_s = 150 mW. La figure 4.9 montre l'intensité SRS en fonction de la distance parcourue par la ligne à retard, avec une régression gaussienne associée. En divisant la distance totale de balayage (1,6 mm) par la vitesse de la lumière c, nous obtenons une durée de recouvrement temporel de $t = D/c = 5,3\,ps$. Le pic Raman théorique provenant de [64] est également représenté, et la proximité des valeurs expérimentales et théoriques permet de relier la distance de balayage de la ligne à retard au spectre Raman. Un déplacement de 1 mm (aller-retour) permet de balayer 21 cm^{-1}. Le pas minimal de balayage de 0,002 mm (aller-retour) correspond à une résolution de 0,042 cm^{-1}. Avec une vitesse de balayage de 0,96 mm/s, le spectre est acquis en 2 ms.

4.2.4. Histologie

Enfin, nous nous intéressons à des échantillons permettant de réaliser des images d'histologie virtuelle (SRH). À cette fin, un échantillon d'os de souris est placé dans le microscope, et nous mesurons les liaisons CH_2 et CH_3. Pour observer les lipides CH_2, la longueur d'onde de l'OPA est réglée à 793 nm afin d'exciter la vibration Raman à 2863,75 cm^{-1}. Pour observer les proteines CH_3, la longueur d'onde de l'OPA est ajustée à 787 nm, permettant d'exciter la vibration Raman à 2959,89 cm^{-1}.

Dans les deux cas, les paramètres expérimentaux sont les suivants : image de 512 × 152 pixels, fréquence de trame de 0,17 Hz, temps d'intégration par pixel de 10 μs, temps d'intégration du lock-in de 100 ns, gain de 51 dB, P_p = 100 mW, et P_s = 150 mW. L'image SRS correspondantes au pics CH_2 et CH_3 sont obtenue en moyennant 16 acquisitions. Elles ont ensuite été traitées à l'aide d'un algorithme de recoloration décrit dans [65], pour reconstruire une image SRH en combinant les contributions CH_2 et CH_3

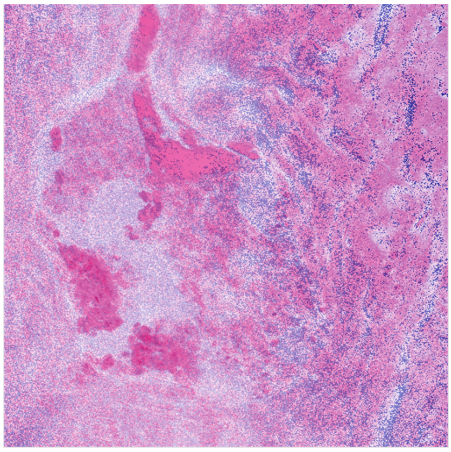


FIGURE 4.10. – Image d'Histologie CH2 + CH3 d'un os de souris

Malheureusement, lors de la mesure SRS, nous n'avions pas réalisé que l'échantillon ne possédait pas de noyaux. Un tel traitement n'est donc pas nécessaire pour simplement observer des images SRS. Cependant, ce travail étant encore au début, d'autres images SRS avec des échantillons contenant des noyaux seront prochainement acquise.

4.3. Conclusion du chapitre

Dans ce chapitre, nous avons étudié les aspects expérimentaux essentiels à la génération et à l'analyse des signaux SRS, en mettant l'accent sur l'optimisation des paramètres optiques et la gestion du bruit. Le modulateur acousto-optique (AOM) est utilisé pour moduler les faisceaux lumineux en synchronisation avec le système laser, permettant une modulation précise et pour une détection efficace du signal SRS. L'étude des échantillons, en particulier les billes de PMMA immergées dans l'huile, a démontré la capacité du système à détecter des signaux SRS spécifiques, en accord avec les décalages Raman ciblés. Les mesures de l'intensité du signal SRS en fonction des puissances des faisceaux Stokes et pompe ont confirmé une relation linéaire, en accord avec celle attendue de la dépendance du signal à ces paramètres. Par ailleurs, l'analyse du RIN a montré l'importance de minimiser le bruit de phase pour obtenir des images SRS de qualité optimale. L'ajustement de la polarisation dans la fibre optique dans l'OPA est donc un élément crucial et nécessaire pour réduire ce bruit. Enfin, l'application du principe du "spectral focusing" par le chirp des faisceaux pompe et stokes a permis de sonder avec précision le spectre Raman du DMSO, en ajustant simplement le délai entre les impulsions laser. Cette technique a prouvé son efficacité pour la détection de transitions Raman spécifiques (résolution de 0,042 cm^{-1} accessible en 2 ms), en dépit de la largeur spectrale des impulsions. Enfin l'étude par l'histologie (SRH) à démontré que l'OPA permet permet de réaliser des images d'histologie virtuelle de qualité comparable à celle réalisé avec des OPO

[58]. Ces résultats ont donnés lieu à une publication en cours d'écriture au moment de la rédaction de ce manuscrit. Cette étude est bien entendue une étude préliminaire, puisque toutes les fonctionnalité de l'OPA n'ont pas été utilisé (ex. balayage rapide des différentes longueur d'onde de l'OPA, le couplage de ce ballayage rapide avec le "spectral focusing", ...) et qu'une étude d'approfondie d'histologie est en cours.

5. Ligne à retard agile

Pour réaliser des expériences d'imagerie hyperspectrale non linéaire rapide (cf. chapitre 1 et application au chapitre 6) [13], nous étudions les phénomènes temporels à travers la spectroscopie Raman, qui permet de sonder les vibrations moléculaires par diffusion inélastique de la lumière. Pour observer des décalages Raman faibles (inférieurs à 200 cm^{-1}), fournissant des informations sur la structure moléculaire via les mouvements collectifs des atomes [10], une des techniques utilisées est la diffusion Raman stimulée impulsive (ISRS, cf chap. 1). Cette approche repose sur un schéma de détection pompe-sonde : une impulsion pompe excite la molécule, activant tous les modes de vibration disponible dans la largeur spectral de l'impulsion. Cette excitation induit une modification transitoire de l'indice de réfraction, détectable à travers des variations du profil spatial, du spectre ou de la polarisation de l'impulsion sonde. Pour capturer précisément tous ces modes vibrationnels et observer temporellement les interactions moléculaires, il est nécessaire que le retard pompe-sonde entre les impulsions soit temporellement balayé dans la molécule après son excitation par l'impulsion pompe. Étant donné la rapidité de ces phénomènes (inférieurs à 100 ps), comment générer précisement un retard rapidement et de manière non séquentielle dans le train d'impulsions ?

Dans ce contexte, nous présentons le développement d'un nouvel outil permettant de retarder un train d'impulsions court (100 fs) : une ligne à retard acousto-optique à accès aléatoire, Agile Delay Line (ADL). Ce dispositif permet d'explorer des intervalles de temps allant jusqu'à 50 picosecondes, en mode continu ou aléatoire, offrant ainsi une flexibilité accrue pour l'analyse temporelle.

5.1. État de l'art

Objectif :

Les objectifs techniques pour le développement de ce nouvel outil à retardement d'impulsions sont les suivants :

- fonctionnant à 800 nm avec une bande spectrale ± 10 nm (laser disponible au laboratoire, cf chap. 1 et 6)
- une latence de programmation/rafraîchissement inférieure à quelques dizaines de μs (durée typique des temps de latence des systèmes de balayage en microscopie confocale)
- une plage de retard de groupe de l'ordre de plusieurs dizaines de ps
- un double type d'adressage :

1. adressage séquentiel : balayage d'un ensemble de délais consécutifs et adjacents
2. adressage aléatoire : balayage aléatoire d'un ensemble de délais prédéfinis

Différentes technologies :

Pour retarder un train d'impulsions, plusieurs options s'offrent à nous. Le tableau 5.1 répertorie leurs avantages et inconvénients. En raison de la grande rapidité de balayage de retard pour les applications pompe-sonde, seules deux technologies sont à considérer : le Dazzler et le modulateur acousto-optique. Le Dazzler a déjà fait ses preuves [66], permettant de retarder les impulsions de 3 ps (ou 6 ps dans une configuration spécifique) de manière continue.

Nous proposons ici de développer un module de retard d'impulsion capable de balayer des retards supérieurs à 6 ps de façon à la fois continue et aléatoire. Pour cela, nous utilisons un modulateur acousto-optique dans une configuration de ligne 4f, basée sur les travaux de [67].

Technologie utilisée	Principe	Avantage	Inconvénient
Translation mécanique	Variation du chemin optique sur un des faisceaux à l'aide d'une ligne à retard mécanique.	Simplicité, vitesse moyenne autour de 1 cm/s (Fastlite), transmission quasiment sans perte optique	Précision de l'ordre de la dizaine de ps, limitée par la vitesse du moteur et balayage des retards successifs.
Miroirs oscillants ou galvanomètriques	Variation du chemin optique parcourue par l'impulsion via des miroirs mobiles.	Simplicité. Vitesse typique : 1-20 kHz (Thorlabs), transmission quasiment sans perte optique	Vitesse limitée par le moteur et balayage des retards successif.
Milieux dispersifs	Utiliser des cristaux/fibres optiques de différentes longueurs ou dispersion contrôlée.	Compact, stable, longues plages de retard. Transmission : 80-90% (dépendant du matériaux).	Dispersion chromatique nécessitant une compensation pour chaque retard, retard fixe et prédéfini.
Dazzler (Fastlite)	Moduler la phase/amplitude des composantes spectrales pour retarder/façonner l'impulsion.	Façonnage flexible, retards précis jusqu'à 3 ps.	Coût élevé, balayage des retard séquentiel uniquement.

TABLEAU 5.1. – Méthodes de retard des impulsions femtosecondes adaptées aux configurations pompe-sonde

5.2. Principe physique et théorie

L'idée générale de la ligne à retard présentée ci-contre est d'utiliser un déflecteur acousto-optique pour introduire une variation de chemin optique [67] dans une ligne à dispersion nulle (aussi appelée ligne "4f").

5.2.1. Principe physique

Ligne 4f

Une ligne 4f est composée de deux éléments dispersifs identiques (ici deux réseaux de diffraction) et d'un système imageur (ici deux lentilles), qui forme l'image de l'un des éléments dispersifs sur l'autre. La ligne est donc constituée de deux sous-unités symétriques, chacune comprenant un réseau et une lentille (cf fig. 5.1). Le réseau de la première sous-unité disperse les composantes spectrales du faisceau incident, tandis que la lentille de cette même sous-unité, de focale f et située à une distance f du premier réseau, collimate les différentes composantes fréquentielles dans le plan de Fourier de la lentille. La seconde sous-unité, également formée d'une lentille et d'un réseau, effectue les opérations inverses : la lentille focalise les composantes fréquentielles et le réseau les recombine. En pratique, pour éviter un décalage spatial du faisceau et toute abberation, la ligne 4f est utilisée en aller-retour : un miroir plan, placé après la seconde sous-unité, rétro-réfléchit le faisceau, et un dispositif de dérivation placé en amont de la ligne permet de séparer le faisceau de sortie du faisceau d'entrée.

Ajout d'un déflecteur

Un déflecteur acousto-optique (cf sec **??**) est placé dans le plan de Fourier de la lentille (cf fig. 5.1). Ce déflecteur diffracte l'onde incidente selon une direction qui dépend de la fréquence acoustique (fréquence RF) appliquée. Il est également capable de moduler l'amplitude et la phase globale du faisceau diffracté. Le faisceau non diffracté est bloqué, tandis que le faisceau diffracté atteint la seconde sous-unité de la ligne 4f.

L'intérêt d'utiliser un déflecteur acousto-optique plutôt qu'un miroir ou une lentille mobile (comme un miroir sur galvanomètre) est multiple :

- l'absence d'inertie mécanique permet une cadence de rafraîchissement du délai optique beaucoup plus rapide : quelques μs contre quelques centaines de μs
- il n'est pas nécessaire d'implémenter une boucle de rétroaction pour obtenir une déviation précise : la diffraction acousto-optique est entièrement prédictive
- il est possible d'obtenir une suite discrète d'angles de déflexion (avec des sauts)
- la déflexion est accompagnée d'une modulation d'amplitude et d'un déphasage programmables
- le fonctionnement en transmission est plus pratique

Cependant, cette technologie présente également des limites :

— l'amplitude de la déflexion est relativement faible (70 mrad)
— l'efficacité de diffraction :
  — n'est pas de 100% (pertes optiques)
  — varie avec la longueur d'onde, limitant ainsi la bande spectrale utilisable

Le schéma de la ligne 4f acousto-optique est présenté à la figure 5.1, pour une impulsion laser de largeur de bande $2\Delta y$ et un angle de déflexion de l'AO de θ_D.

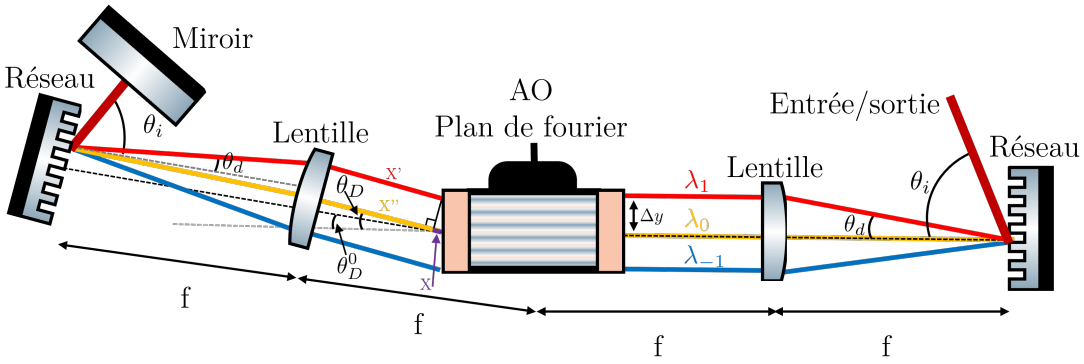


FIGURE 5.1. – Ligne à délai dans la configuration 4f + acousto-optique

5.2.2. Théorie

Nous développons ici les équations reliant le retard de groupe d'une impulsion traversant la ADL aux paramètres de sa géométrie. De plus, nous dérivons cette équation afin d'obtenir une expression de la dispersion du retard de groupe (GDD/chirp). Grâce à ces deux équations, nous pouvons ajuster le choix des différents éléments optiques utilisés et confronter la validité de la théorie avec les expériences.

5.2.2.1. Notations

Optiques :

Toutes les optiques sont assimilées à des optiques planes (ie dans épaisseur) et parfaites. On note :
— O_1 : le point d'impact du faisceau incident sur le réseau R_1
— C_1 :le centre de la première lentille L_1
— A : le centre du déflecteur acousto-optique
— C_2 : le centre de la seconde lentille L_2

La ligne à retard est alignée à la longueur d'onde λ_0 et pour une déviation nominale θ_D^0, de manière à ce que le rayon de longueur d'onde λ_0 passe par O_1, C_1, A et C_2. Son point d'impact sur le réseau R_2 est noté O_2. Par construction de la ligne 4f) on a : $O_1C_1 = C_1A = AC_2 = C_2O_2 = f$.

On note θ_d^0 l'angle de diffraction, à la longueur d'onde λ_0, sur R_1. Le second réseau R_2 est placé dans le plan image de R_1 par la ligne 4f pour $\theta_D = \theta_D^0$. L'angle d'incidence sur R_2, à λ_0 et θ_D^0, est donc égal à θ_d^0.

Plan particulier :

Le plan de sortie de la ligne 4f, noté (M) est orthogonal aux rayons diffractés par le second réseau. On définit également deux plans particuliers :

— (P), le plan passant par A formant un angle θ_D^0 avec le plan (AO)

— (P'), le plan focal de (L_2)

Rayons :

On considère maintenant un rayon incident en O_1, d'incidence θ_i et de longueur d'onde λ. L'angle de diffraction sur R_1 est noté θ_d. L'angle de déflexion acousto-optique est noté θ_D, que l'on suppose différent de θ_D^0 pour prendre en compte (1) l'effet d'une variation de la fréquence acoustique F ainsi que, (2) le chromatisme angulaire de la diffraction acousto-optique. Sous l'action combinée de la diffraction par le réseau R_1 et la déviation acousto-optique, ce rayon, à la longueur d'onde λ, atteint L_1 en C_1', l'acousto-optique en A', L_2 en C_2'. Sa position dans le plan (P') est notée O_2'.

Loi des réseaux :

Avec ces conventions et des angles incidents et diffractés orientés comme sur la figure 5.2, la loi des réseaux pour le réseau en réflexion (R_1) s'exprime par :

$$\sin\theta_i + \sin\theta_d(\lambda) = +\sigma\lambda \tag{5.1}$$

et correspond donc à l'ordre de diffraction +1.

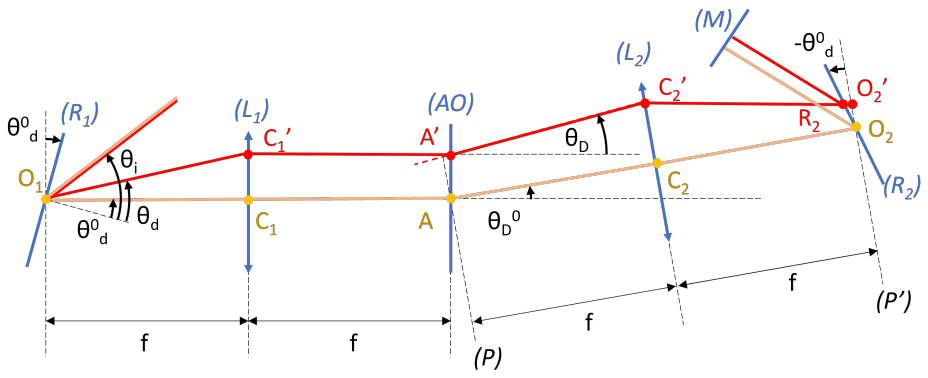


FIGURE 5.2. – Ligne ADL simplifiée et notations associées.

5.2.2.2. Diffraction acousto-optique :

Les détails de la diffraction acousto-optique réelle n'étant pas connus (cristal biréfringent), on réduit la diffraction acousto-optique à la condition de Bragg

$$\theta_D = M\lambda F / V \tag{5.2}$$

où $M = \pm 1$ est l'ordre de diffraction acousto-optique.

5.2.3. Objectif du calcul et hypothèses

On cherche ici à calculer le chemin optique à la longueur d'onde λ pour une déflexion $\theta_D(\lambda)$, entre R_1 et le plan de sortie (M). On se limitera ici au cas :

— d'une propagation paraxiale
— des lentilles minces stigmatiques et achromatiques
— des petites déviations optiques : $|\theta_D - \theta_D| \ll 1$

5.2.4. Chemin optique

5.2.4.1. Du premier réseau au déflecteur acousto-optique

Le chemin optique du plan R_1 au plan (AO) se calcule en considérant que le point O_1 est conjugué à un point à l'infini : tous les chemins optiques issus de O_1, quelque soit la longueur d'onde, se terminant dans un plan orthogonal à $(C_1 A)$ sont égaux. Parmi ces chemins, celui par O_1 vaut, par construction, $2f$. Par conséquent, sans autre hypothèse, le chemin optique du premier réseau au déflecteur acousto-optique est, quelque soit la longueur d'onde :

$$\boxed{O_1 A' = O_1 A = 2f} \tag{5.3}$$

Par ailleurs, par application de la loi des sinus d'Abbe, l'étalement dans le plan (AO), est :

$$AA' = f \sin\left(\theta_d - \theta_d^0\right) \tag{5.4}$$

Ce résultat est différent de ce que l'on pourrait attendre pour une lentille mince ($f \sin\left(\theta_d - \theta_d^0\right)$) dérivée dans l'approximation de Gauss (approximation paraxiale). La différence entre les deux résultats est faible (en $(\theta_d - \theta_d^0)^3$) mais elle se justifie ici car il est important que le système 4f soit sans aberration sphérique ni coma (aplanétique).

5.2.4.2. Du modulateur acousto-optique au plan (P')

Il n'est pas évident de calculer directement le chemin optique de l'acousto-optique au second réseau en raison de la déflexion mais, surtout, de la traversée de L_2 sous différentes incidences. Une façon de procéder consiste à utiliser une seconde relation de conjugaison. On considère donc deux points sources virtuels, S et S', conjugués par la lentille L_2. Le point source virtuel S est à l'intersection des faisceaux incidents à λ_0

et λ sur L_2. S' est le point virtuel à l'intersection de ces deux rayons, réfractés par L_2. Comme L_2 est stigmatique et achromatique, S et S' sont nécessairement conjugués par L_2. Tous les chemins optiques joignant S et S' sont donc de d'épaisseurs optiques égales. Par conséquent, il suffit de calculer le chemin à λ_0 pour connaître celui à λ. On note :

— H l'intersection de (P) avec $A'C_2'$
— O_2' l'intersection de (P') avec le faisceau $(A'C_2')$ réfracté par L_2

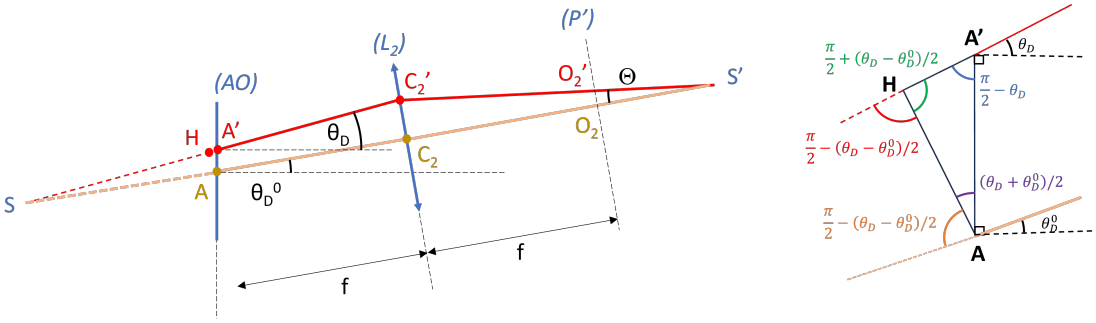


FIGURE 5.3. – A gauche : conjugaison de S et S' par L_2. A droite : triangle AHA'

Le triangle AHA' n'est pas rectangle en H a priori, sauf dans le cas particulier $\theta_D = \theta_D^0$. Par application de la loi des sinus dans le triangle AHA', on a également :

$$\frac{AH}{\sin\left(\theta_D - \theta_D^0\right)} = \frac{SH}{\cos\theta_D} = \frac{AA'}{\cos\left(\theta_D - \theta_D^0\right)} = f\frac{\sin\left(\theta_d - \theta_d^0\right)}{\cos\left(\theta_D - \theta_D^0\right)} \tag{5.5}$$

Le triangle AHA' est, lui, rectangle en A.

5.2.4.3. Chemin optique SC_2S'

S est situé à l'intersection de $(A'C_2')$ et (AC_2). La distance SC_2 vaut donc :

$$\begin{aligned} SC_2 &= SA + AC_2 \\ &= AH/\tan\left(\theta_D - \theta_D^0\right) + f \end{aligned}$$

D'où les résultats :

$$SC_2 = f\frac{\tan\left(\theta_d - \theta_d^0\right)}{\sin\left(\theta_D - \theta_D^0\right)}\cos\theta_D + f$$

Pour simplifier la suite, posons :

$$\eta = \frac{\tan\left(\theta_d - \theta_d^0\right)}{\sin\left(\theta_D - \theta_D^0\right)}\cos\theta_D$$

On obtient ainsi :

$$SC_2 = f(1+\eta) \tag{5.6}$$

Par application de la relation de conjugaison avec origine aux foyers (relation de Newton), on a :

$$O_2S' * SA = f^2$$

soit :

$$(C_2S' - f)(SC_2 - f) = f^2$$

ce qui permet d'obtenir directement, à partir de l'équation 5.6 :

$$C_2S' = f\left(1 + 1/\eta\right) \tag{5.7}$$

Et pour terminer :

$$SS' = SC_2 + C_2s' = 2f + f(\eta + 1/\eta) \tag{5.8}$$

5.2.4.4. Chemin optique SC_2S'

Par stigmatisme, la longueur du chemin $SC_2'S'$ est égal à SS'. Le chemin optique recherché $A'P'$ est donc égal à $SS' - SA' - O_2'S'$. Avant de détailler les calculs on peut établir les relations suivantes :

$$\begin{cases} O_2'S' = O_2O_2'/\tan\Theta \text{ (géométrie)} \\ O_2O_2' = f\tan\left(\theta_D - \theta_D^0\right) \text{ (plan focal)} \end{cases} \tag{5.9}$$

que l'on peut compléter par la condition des sinus d'Abbe (aplanétisme) :

$$SC_2\sin\left(\theta_D - \theta_D^0\right) = C_2S'\sin\Theta \tag{5.10}$$

Cette condition est différente de celle que l'on peut attendre de la relation de conjugaison des lentilles dans l'approximation paraxiale (on aurait un tan à la place des sin). Elle est cependant nécessaire ici car on ne place pas dans l'approximation paraxiale. A partir des résultats précédents, $SC_2 = f(1+\eta)$ et $C_2S' = f\left(1 + 1/\eta\right)$ on trouve :

$$\sin\Theta = \eta\sin\left(\theta_D - \theta_D^0\right) = \tan\left(\theta_d - \theta_d^0\right)\cos\theta_D \tag{5.11}$$

Des relations 5.9 et 5.10, on tire :

$$O_2'S' = f\frac{C_2S'}{SC_2} = f\frac{1 + 1/\eta}{1+\eta} = \frac{f}{\eta}$$

Pour SA', le plus consiste à isoler HA' :

$$SA' = SH + HA' = \frac{AH}{\sin\left(\theta_D - \theta_D^0\right)} + HA' = f\eta/\cos\left(\theta_D - \theta_D^0\right) + HA' \tag{5.12}$$

On arrive donc à :

$$SA' + O_2'S' = HA' + f\eta/\cos\left(\theta_D - \theta_D^0\right) + f/\eta$$

5.2.4.5. Calcul final

Le résultat de ce calcul est donc :

$$\begin{aligned} A'O'_2 &= SS' - (SA' + O'_2S') \\ &= 2f + f(\eta + 1/\eta) - (HA' + f(\eta/\cos(\theta_D - \theta_D^0) + 1/\eta) \\ &= 2f - HA' - f\eta\left[1/\cos(\theta_D - \theta_D^0) - 1\right] \end{aligned} \tag{5.13}$$

Il est important de remarquer que, dans la limite $|\theta_D - \theta_D^0| \ll 1$, η diverge car $\eta \simeq \tan(\theta_d - \theta_d^0)\cos\theta_D/(\theta_D - \theta_D^0)$. On néanmoins faire l'approximation :

$$\eta\left[1/\cos(\theta_D - \theta_D^0) - 1\right] \simeq \eta(\theta_D - \theta_D^0)/2 \simeq \tan(\theta_d - \theta_d^0)\cos(\theta_D^0)(\theta_D - \theta_D^0)/2$$

qui montre que ce terme est du premier ordre en $\theta_D - \theta_D^0$, alors que HA' est d'ordre zéro :

$$HA' = f\frac{\tan(\theta_d - \theta_d^0)}{\cos(\theta_D - \theta_D^0)}\sin\theta_D^0 \simeq f\tan(\theta_d - \theta_d^0)\sin\theta_D^0 \tag{5.14}$$

Pour terminer, au premier ordre en $\theta_D - \theta_D^0$:

$$\boxed{A'O'_2 \simeq 2f - f\sin(\theta_D^0)\tan(\theta_d - \theta_d^0) - f\tan(\theta_d - \theta_d^0)\cos(\theta_D^0)(\theta_D - \theta_D^0)/2} \tag{5.15}$$

5.2.4.6. Du plan focal de L_2 à la sortie

Toujours dans la limite $|\theta_D - \theta_D^0| \ll 1$, on trouve, au premier ordre, que $\Theta \simeq \theta_d$, qui est, de plus, une condition nécessaire pour que les faisceaux émergent parallèlement de (R_2). On peut donc raisonner sur la figure 5.4. L'écart de chemin optique entre le rayon à λ_0 et le rayon à λ, calculé entre le plan (P') et le plan (M) passant par O_2, se compose de deux termes :

— un terme induit par le fait que le point d'impact du rayon à λ sur le réseau (R_2) n'est pas nécessairement dans le plan (P'). Il en résulte un terme d'avance (retard négatif) du faisceau à λ par rapport au faisceau à λ_0 si $\theta_d^0 > 0$ comme c'est le cas sur la figure 5.4

— un terme lié à la diffraction sur le réseau qui introduit une différence de chemin optique entre les rayons diffractés en raison du déplacement dans le plan (R_2). Ce terme correspond à la propagation de X_2 à O_2, où X_2 est le projeté de R_2 sur le rayon de sortie à λ_0. C'est également un terme d'avance du faisceau à λ par rapport au faisceau à λ_0 si $\theta_d^0 > 0$.

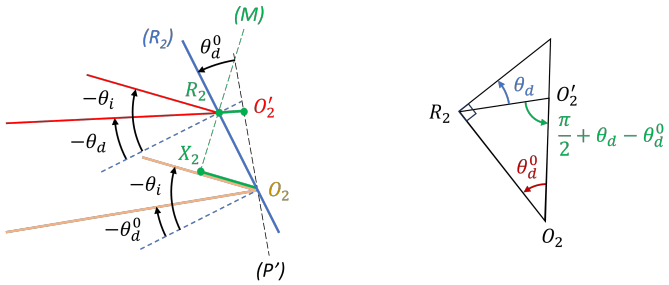


FIGURE 5.4. – De (P') au plan de sortie (M).

Sachant que $O_2O_2' = f\tan(\theta_D - \theta_D^0)$ (déplacement dans le plan focal de L_2), la loi des sinus dans le triangle $O_2R_2O_2'$ donne :

$$\frac{O_2'R_2}{\sin\theta_d^0} = \frac{O_2O_2'}{\cos\theta_d}$$

d'où :

$$O_2'R_2 = f\tan(\theta_D - \theta_D^0)\frac{\sin\theta_d^0}{\cos\theta_d} \tag{5.16}$$

Toujours par application de la loi des sinus dans le même triangle on a :

$$O_2R_2 = f\tan(\theta_D - \theta_D^0)\frac{\cos(\theta_d - \theta_d^0)}{\cos\theta_d}$$

ce qui permet d'obtenir :

$$R_2X_2 = O_2R_2\sin\theta_i = f\tan(\theta_D - \theta_D^0)\frac{\cos(\theta_d - \theta_d^0)}{\cos\theta_d}\sin\theta_i \tag{5.17}$$

Des relations 5.16 et 5.17 on arrive à, pour des segments non orientés :

$$O_2'R_2 + R_2X_2 = f\frac{\tan(\theta_D - \theta_D^0)}{\cos\theta_d}\left[\sin\theta_d^0 + \sin\theta_i\cos(\theta_d - \theta_d^0)\right] \tag{5.18}$$

Au premier ordre en $\theta_D - \theta_D^0 \ll 1$, on peut donc simplifier en :

$$\boxed{O_2'R_2 + R_2X_2 \simeq f(\theta_D - \theta_D^0)\left[\sin\theta_d^0 + \sin\theta_i\cos(\theta_d - \theta_d^0)\right]/\cos\theta_d} \tag{5.19}$$

Remarque : ici l'angle θ_D est algébrique et peut prendre des valeurs positives ou négatives en fonction de l'ordre de diffraction acousto-optique. Autre remarque : le terme calculé ici étant un terme d'avance, la différence de chemin optique, par rapport au faisceau à λ_0 vaut $-O_2'R_2 - R_2X_2$

5.2.4.7. Chemin optique total

Notons $\Delta\theta_D = \theta_D - \theta_D^0$ et $\Delta\theta_d = \theta_d - \theta_d^0$. Le chemin optique à la longueur d'onde λ, noté $\Delta(\lambda)$ est la somme des trois chemins calculés précédemment :

$$\Delta(\lambda) = 4f - f\sin\left(\theta_D^0\right)\Delta\theta_d - f\Delta\theta_D\left[\sin\theta_d^0 + \sin\theta_i\cos\Delta\theta_d\right]/\cos\theta_d - f\tan(\Delta\theta_d)\cos\left(\theta_D^0\right)\Delta\theta_D/2 \tag{5.20}$$

Ce chemin optique est, en toute rigueur, un chemin optique au sens de la phase optique. Cependant, comme le chromatisme des lentilles est négligé (ainsi que la dispersion du déflecteur acousto-optique, réduit ici à un plan), c'est également le chemin optique au sens du retard optique. On peut donc écrire que le retard optique, en aller-simple, est :

$$\boxed{c\tau = 4f - f\sin\left(\theta_D^0\right)\Delta\theta_d - f\Delta\theta_D\left[\sin\theta_d^0 + \sin\theta_i\cos\Delta\theta_d\right]/\cos\theta_d - f\tan(\Delta\theta_d)\cos\left(\theta_D^0\right)\Delta\theta_D/2} \tag{5.21}$$

Le seul terme variant avec la fréquence acoustique F est ici $\Delta\theta_D$, qui varie linéairement avec F. Le délai de groupe total de la ligne 4f varie donc, lui aussi, linéairement avec F

5.2.5. Dispersion

On considère maintenant la dérivée du délai de groupe :

$$\begin{aligned}
c\frac{\partial\tau}{\partial\omega} = &-f\theta_D^0\frac{\partial\theta_d}{\partial\omega} \\
&-f\frac{\partial\theta_D}{\partial\omega}\left[\sin\theta_d^0 + \sin\theta_i\cos\Delta\theta_d\right]/\cos\theta_d \\
&+f\frac{\partial\theta_d}{\partial\omega}\Delta\theta_D\sin\theta_i\sin\Delta\theta_d/\cos\theta_d \\
&-f\frac{\partial\theta_d}{\partial\omega}\Delta\theta_D\left[\sin\theta_d^0 + \sin\theta_i\cos\Delta\theta_d\right]\frac{\sin\theta_d}{\cos^2\theta_d} \\
&-f\frac{\partial\theta_d}{\partial\omega}\Delta\theta_D\frac{\cos\theta_D^0}{2\cos^2\Delta\theta_d} \\
&-f\frac{\partial\theta_D}{\partial\omega}\tan(\Delta\theta_d)\cos\left(\theta_D^0\right)/2
\end{aligned}$$

A la longueur d'onde de design λ_0, $\Delta\theta_d = 0$ par définition, ce qui élimine deux termes :

$$\begin{aligned}
c\left.\frac{\partial\tau}{\partial\omega}\right|_{\omega_0} = &-f\theta_D^0\left.\frac{\partial\theta_d}{\partial\omega}\right|_{\omega_0} - f\left.\frac{\partial\theta_D}{\partial\omega}\right|_{\omega_0}\left(\sin\theta_d^0 + \sin\theta_i\right)\frac{1}{\cos\theta_d^0} \\
&-f\left.\frac{\partial\theta_d}{\partial\omega}\right|_{\omega_0}\Delta\theta_D\left(\sin\theta_d^0 + \sin\theta_i\right)\frac{\sin\theta_d^0}{\cos^2\theta_d^0} - f\left.\frac{\partial\theta_d}{\partial\omega}\right|_{\omega_0}\frac{\cos\theta_D^0}{2}\Delta\theta_D
\end{aligned}$$

La loi des réseaux $\sin\theta_i + \sin\theta_d^0 = +\sigma\lambda_0$ permet de simplifier encore :

$$c\left.\frac{\partial\tau}{\partial\omega}\right|_{\omega_0} = -f\theta_D^0\left.\frac{\partial\theta_d}{\partial\omega}\right|_{\omega_0} - f\frac{\sigma\lambda_0}{\cos\theta_d^0}\left.\frac{\partial\theta_D}{\partial\omega}\right|_{\omega_0} - f\frac{\sigma\lambda_0\sin\theta_d^0}{\cos^2\theta_d^0}\Delta\theta_D\left.\frac{\partial\theta_d}{\partial\omega}\right|_{\omega_0} - f\left.\frac{\partial\theta_d}{\partial\omega}\right|_{\omega_0}\frac{\cos\theta_D^0}{2}\Delta\theta_D \tag{5.22}$$

On reconnaît quatre contributions :

— un terme dû au segment HA' qui traduit l'effet de la déviation moyenne (facteur θ_D^0) du faisceau dans un plan où les longueurs d'onde sont étalées : cette déviation introduit un retard de groupe variant linéairement avec la fréquence optique et correspond donc à une dispersion *constante*, indépendante de F

— un terme lié au chromatisme de la diffraction acousto-optique ($\partial\theta_D/\partial\omega$).

— un terme lié à l'incidence oblique sur le réseau R_2 (le terme disparaît à $\theta_d^0 = 0$), proportionnel à $\Delta\theta_D$ et donc à la fréquence acoustique F

— une contribution

A partir de la loi des réseaux et de la condition de Bragg acousto-optique $\theta_D = M\lambda F/V$, où $M = \pm 1$ est l'ordre de diffraction acousto-optique, on trouve :

$$\begin{cases} \left.\dfrac{\partial\theta_D}{\partial\omega}\right|_{\omega_0} = -\dfrac{\theta_D(F,\lambda_0)}{\omega_0} = -\dfrac{\lambda_0}{2\pi c}\theta_D(F,\lambda_0) \\ \left.\dfrac{\partial\theta_d}{\partial\omega}\right|_{\omega_0} = -\dfrac{2\pi c\sigma}{\omega_0^2}\dfrac{1}{\cos\theta_d^0} = -\dfrac{\sigma\lambda_0^2}{2\pi c\cos\theta_d^0} \end{cases} \tag{5.23}$$

Afin de bien distinguer $\theta_D^0 = \theta_D(\lambda_0, F_0)$ de $\theta_D(\lambda_0, F)$ la dépendance en F est explicitée dans la suite. Par remplacement :

$$c\left.\frac{\partial\tau}{\partial\omega}\right|_{\omega_0} = f\frac{\sigma\lambda_0^2}{2\pi c\cos\theta_d^0}\theta_D^0 + f\frac{\sigma\lambda_0^2}{2\pi c\cos\theta_d^0}\theta_D(\lambda_0,F) + f\frac{\sigma^2\lambda_0^3}{2\pi c\cos^2\theta_d^0}\Delta\theta_D\tan\theta_d^0$$

D'où la formule finale, en aller simple :

$$\left.\frac{\partial\tau}{\partial\omega}\right|_{\lambda_0} = \frac{f\sigma\lambda_0^2}{2\pi c^2\cos\theta_d^0}\left[\theta_D(\lambda_0,F) + \theta_D^0 + \sigma\lambda_0\frac{\tan\theta_d^0}{\cos\theta_d^0}\left(\theta_D(\lambda_0,F) - \theta_D^0\right)\right] \tag{5.24}$$

et, en aller-retour :

$$\boxed{\left.\frac{\partial\tau_{\mathrm{AR}}}{\partial\omega}\right|_{\lambda_0} = \frac{f\sigma\lambda_0^2}{\pi c^2\cos\theta_d^0}\left[\left(1+\sigma\lambda_0\frac{\tan\theta_d^0}{\cos\theta_d^0}\right)\theta_D(\lambda_0,F) + \left(1-\sigma\lambda_0\frac{\tan\theta_d^0}{\cos\theta_d^0}\right)\theta_D^0\right]} \tag{5.25}$$

Comme seul θ_D varie avec F et que θ_D est proportionnel à F, $\partial\tau_{\mathrm{AR}}/\partial\omega$ est une fonction affine de F. La dispersion est donc également une fonction affine du retard optique.

5.2.6. Discussion

5.2.6.1. Cas $\theta_d^0 = 0$

Le cas $\theta_d^0 = 0$ correspond au cas où la diffraction sur R_1 est normale à la surface du réseau. Dans ce cas,

$$\left.\frac{\partial \tau_{\mathrm{AR}}}{\partial \omega}\right|_{\lambda_0} = \frac{f\sigma\lambda_0^2}{\pi c^2}\left(\theta_D(\lambda_0, F) + \theta_D^0\right) \tag{5.26}$$

et la dispersion à λ_0 est proportionnelle à θ_D^0. Comme le préfacteur $f\sigma\lambda_0^2/(\pi c^2)$ est nécessairement positif, le chirp de l'ADL est du signe de θ_D^0. Par ailleurs, comme $|\theta_D| < |\theta_D^0|$ (la bande passante en fréquence de l'acousto-optique ne dépasse pas l'octave), $\theta_D + \theta_D^0$ ne change pas de signe et la dispersion de l'ADL est de signe constant (et ne peut s'annuler).

5.2.6.2. Incidence critique

Il existe un angle particulier $\theta_d^{0,\mathrm{c}}$ pour lequel la dispersion optique est non nulle mais ne dépend pas de θ_D et donc ne varie pas avec F :

$$\sigma\lambda_0 \frac{\tan\theta_d^{0,\mathrm{c}}}{\cos\theta_d^{0,\mathrm{c}}} = -1$$

Comme, en pratique, $\sigma\lambda_0 \simeq 1$ pour avoir une diffraction efficace, $\theta_d^{0,\mathrm{c}} \simeq$ -38.2°. Or, pour cet angle de diffraction, aucun angle d'incidence ne permet de vérifier la loi des réseaux pour l'ordre +1. Il n'existe donc pas d'incidence pour laquelle la dispersion est indépendante de F.

5.2.6.3. Cas $\theta_d^0 \longrightarrow \pi/2$

Dans la limite $\theta_d^0 \longrightarrow \pi/2$, les termes $\tan\theta_d^0/\cos\theta_s^0$ divergent et on trouve :

$$\left.\frac{\partial \tau_{\mathrm{AR}}}{\partial \omega}\right|_{\lambda_0} \simeq \frac{f\sigma^2\lambda_0^3}{\pi c^2}\frac{\tan\theta_d^0}{\cos^2\theta_d^0}\left(\theta_D - \theta_D^0\right) \tag{5.27}$$

En principe, la dispersion peut s'annuler en $\theta_D = \theta_d^0$, mais le fonctionnement en incidence rasante ne conduit pas à des configurations réalistes (il nécessite des réseaux de grandes dimensions)

5.3. Choix des optiques

Nous détaillons ici le choix du modulateur acousto-optique, des réseaux de diffraction, des lentilles et des dispositifs optiques de séparation des faisceaux d'entrée et de sortie.

5.3.1. Modulateur acousto-optique

Le principe du modulateur acousto-optique (AO) est décrit à la section 4.1.1. Nous utilisons un filtre acousto-optique en TeO_2. En fonction de la fréquence acoustique appliquée au cristal, l'angle de diffraction varie. L'amplitude maximale de déflexion, directement liée aux propriétés du cristal et à la coupe cristalline, est similaire chez tous les fabricants. Le modèle choisi est un déflecteur série 4055-4 de Gouch & Housego, caractérisé par les spécifications suivantes :

- Zone active (colonne acoustique) : 14 mm × 3.5 mm
- Vitesse de propagation acoustique (transverse) : 0.656 mm/μs, soit un temps de rafraîchissement de 21.3 μs pour couvrir la totalité de la colonne acoustique
- Efficacité de diffraction maximale : environ 80% pour une puissance RF de 1 W
- Plage de déviation : 44.3 mrad (pour une variation de fréquence RF de $\Delta f_{RF} \simeq 35\,MHz$)
- États de polarisation :
  - Entrée : linéaire, orientée à 0° par rapport au plan de diffraction
  - Sortie (diffraction) : linéaire, orientée à 90° par rapport au plan de diffraction

Expérimentalement, la plage d'angle de déflexion a été mesurée et est représentée à la figure 5.5. Nous avons pu augmenter la plage de déflexion en élargissant la bande de fréquence RF, passant de $f_{RF} = 35 - 70\,MHz$ à $f_{RF} = 35 - 80\,MHz$, ce qui nous permet d'atteindre un $\Delta\theta_D$ de 57.4 mrad. Avec cette configuration, nous augmentons la plage de retard, mais l'efficacité de diffraction diminue aux extrémités, comme le montre la courbe d'efficacité de la ADL (cf fig. 5.13).

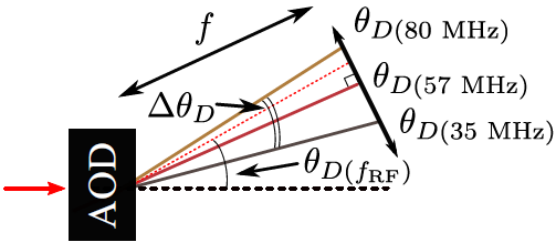


FIGURE 5.5. – Angle mininum ($\theta_{D(35\,MHz)} = 42.3$ mrad)/median ($\theta_{D(57.5\,MHz)} = 69.1$ mrad)/maximal ($\theta_{D(80\,MHz)} = 99.6$ mrad) de délexion de l'AO

Dans ce chapitre, la génération de la fréquence RF pour l'AO est réalisée à l'aide d'un générateur de fonctions (Siglent, SDG6022X), capable de produire des signaux sinusoïdaux dans une plage de fréquences jusqu'à 1 μ Hz à 200 MHz. Il est ainsi possible de modifier manuellement l'angle de déviation de l'AO en ajustant la fréquence RF sur le générateur. Deux modes de fonctionnement sont disponibles : un balayage continu de la plage de fréquences RF, ou la sélection d'une fréquence unique, que l'on peut ajuster manuellement. L'efficacité de diffraction maximale est atteinte pour une puissance RF de 1 W soit 20 V_{pp} ($V_{peack-to-peack}$ sachant que l'AO est chargé à $\Omega = 50\,\Omega$ et que la relation entre la puissance P et la tension crête-à-crête U_{pp} est

donnée par :

$$P = \frac{U_{pp}^2}{8 \times \Omega}$$

La tension crête-à-crête de U_{pp} est égale à $20\,V_{pp}$, nécessaire pour une utilisation optimale de l'AO. Le générateur de fonctions est ainsi couplé à un amplificateur RF fixe (MiniCircuits, ZHL-1A-S+) pour atteindre la puissance maximale $P_{max} = 1\,W$.

5.3.2. Lentilles

Comme présenté dans la section 5.2.2, nous avons opté pour l'utilisation de lentilles achromatiques minces. Ce choix a été fait après plusieurs essais infructueux, notamment avec des lentilles télécentriques et des lentilles achromatiques épaisses (pertes optiques importantes, difficultés liées à la direction des faisceaux, ainsi que des problèmes de compacité du système). Ensuite, plusieurs distances focales ($f = 50, 100, 150, 200, 300\,mm$) ont été testées. D'après l'équation **??** du retard de groupe et l'équation **??** du chirp, nous savons que plus la distance focale est grande, plus le retard de groupe et le chirp associés augmentent. Dans un souci de compromis entre l'obtention d'un retard de groupe important et la réduction du chirp, tout en prenant en compte la compacité du système, nous avons finalement décidé de travailler avec des lentilles de 1" de diamètre focales de 150 mm (AC254-150-B, Thorlabs).

5.3.3. Réseaux de diffraction

Pour choisir les réseaux de diffractions adapté à notre problématique nous devons prendre en compte le type de réseaux, leurs densité de trait, et le materiau qui les composent.

Densité de traits :

La densité de traits des réseaux de diffraction est contrainte :

1. Le facteur $\Delta\theta_d$ de l'équation **??** joue un rôle important car, par effet de levier, on peut démultiplier le temps de groupe. On cherche donc une valeur de θ_d aussi élevée que possible.
2. La loi des réseaux $\sin\theta_i - \sin\theta_d = m\sigma\lambda$ doit être satisfaite (m = ±1).
3. Afin de maximiser le facteur $\Delta\theta_d$, un produit $\sigma\lambda \simeq 1$ est préféré.

En pratique, l'offre commerciale limite les densités de traits disponibles. Parmsi eux, des réseaux de 600 tt/mm, 830 tt/mm et 1200 tt/mm sont disponibles chez Thorlabs ou Edmund Optics, les principaux fournisseurs de réseaux standards. Les valeurs de θ_i sont calculées pour $\theta_d = 0$. On calcul le temps de groupe maximal (c'est-à-dire pour $\theta_{D(80\,MHz)} = 99.6$ mrad et $\Delta\theta_D = 57.4$ mrad), le chirp correspondant, ainsi que la grandeur Δ_y (qui ne doit pas dépasser l'ouverture de la colonne acoustique de l'AO), en fonction du choix de la focale f des lentilles et ceux pour une une impulsion de ≃ 100 fs (soit une bande spectral de $\Delta\lambda$ =10 nm).

Type de réseau :

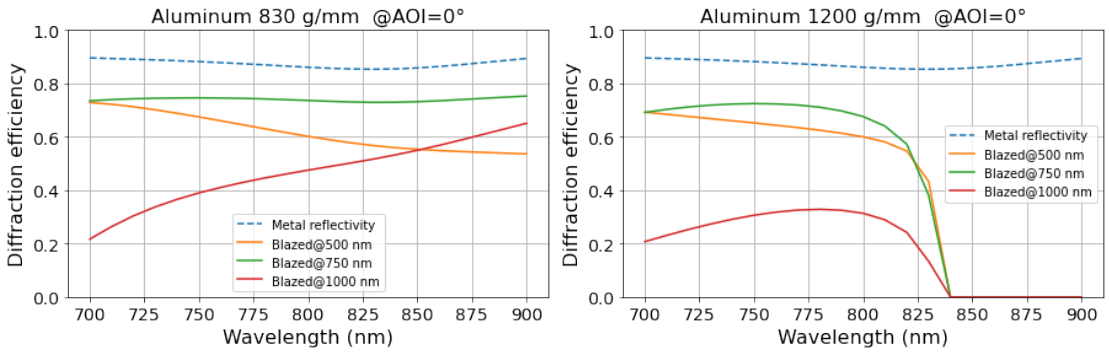
Il existe plusieurs types de réseaux : réseaux en transmission, en réflexion, gravés ou encore holographiques. On choisit ici de travailler avec des réseaux réflectifs pour des raisons de coût, et des réseaux à échelettes pour maximiser l'efficacité de diffraction dans la géométrie de travail. Il n'est pas évident de déterminer a priori l'angle optimal des échelettes θ_b - aussi appelé angle de "blaze". En effet, la condition $\theta_d = 0$ correspond à une géométrie très éloignée de la géométrie pour laquelle les réseaux sont habituellement conçus.Pour rappel, les réseaux de diffraction à échelettes sont en général conçus et optimisés pour travailler à l'incidence de Littrow définies comme :

$$2\sin\theta_L = \sigma\lambda$$

. A l'incidence de Littrow, on a, par définition, $\theta_i = \theta_d = \theta_L$ où cette incidence maximise l'efficacité de diffraction dans l'ordre +1 si l'angle de blaze θ_b est égal à θ_L. Par abus de langage on appelle longueur d'onde de blaze λ_b la longueur d'onde telle que :

$$2\sin\theta_b = \sigma\lambda_b$$

Loin de l'incidence de Littrow - ce qui est le cas ici - l'efficacité de diffraction est difficile à prédire sans simulations numériques complexes. Par ailleurs, les détails géométriques du profil de traits (ie la forme exacte des échelettes) ne sont pas communiqués par les fournisseurs, ce que rend les simulations d'autant plus hasardeuses. Une approche "essai-erreur" est donc inévitable. Afin de restreindre l'intervalle de valeurs de θ_b que l'on va échantillonner, nous faisons l'hypothèse dans la suite que les échelettes sont caractérisées par un profil de trait triangulaire rectangle, c'est-à-dire avec un angle θ_b et un angle droit. Avec ces hypothèses simplificatrices, on vient simuler l'efficacité de diffraction dans l'ordre +1 grâce à la librairie pySCATMAT [68] qui repose sur la méthode des ondes couplées (rigorous coupled wave-RCW) [69]. Les résultats de simulation d'efficacité de diffraction pour des réseaux en aluminum sont présentés aux figures 5.6a et 5.6b.



(a) Efficacité de diffraction pour un réseau de 830 tt/mm à l'incidence normale

(b) Efficacité de diffraction pour un réseau de 1200 tt/mm à l'incidence normale

FIGURE 5.6. – Efficacité de diffraction calculée pour un réseau de 1200 tt/mm à l'incidence normale en fonction de la longueur d'onde incidente et de la longueur d'onde de blaze. Polarisation : P.

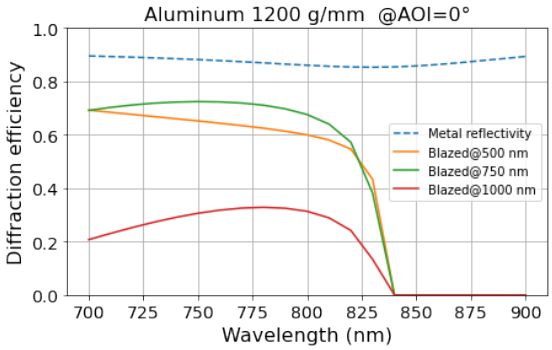
D'après ces simulations, les meilleurs choix de réseaux, au sein de l'offre commerciale de Thorlabs et d'Edmund Optics à 800 nm semblent être :

— Soit les 1200 tt/mm blazés à 750 nm : θ_i plus important, plus faible efficacité de diffraction attendue.
— Soit les 830 tt/mm blazés à 800 nm : θ_i plus faible, meilleure efficacité de diffraction attendue.

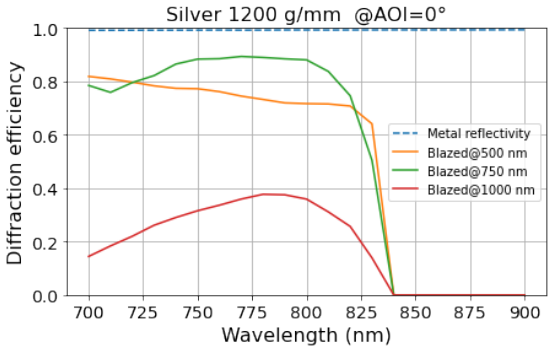
Après avoir testé expérimentalement ces deux types de réseaux, notre choix se porte sur les réseau à 1200 tt/mm blazés à 750 nm, car ils offrent finalement une plus grande efficacité de réflexion.

Revêtement :

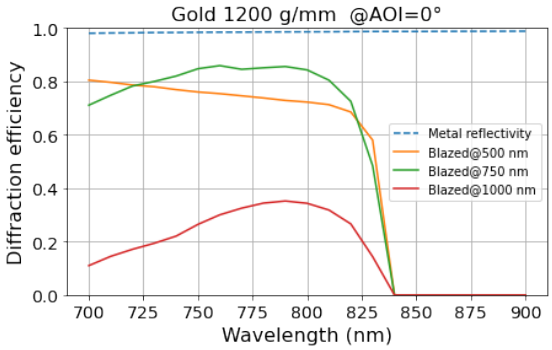
La surface réflective des réseaux est formée d'une couche mince métallique et plusieurs choix de métaux sont en principe possibles. En réalité, ce choix se limite à l'aluminium, l'argent ou à l'or. Grâce à la simulation "essai-erreur" nous representons à la figure 5.7, l'efficacité des réseaux à 1200 t/mm en aluminum, argent et or à 800 nm.



(a) Efficacité de diffraction pour un réseau en aluminium de 1200 tt/mm à l'incidence normale



(b) Efficacité de diffraction pour un réseau en argent de 1200 tt/mm à l'incidence normale



(c) Efficacité de diffraction pour un réseau en or de 1200 tt/mm à l'incidence normale

FIGURE 5.7. – Efficacité de diffraction calculée pour un réseau de 1200 tt/mm à l'incidence normale en fonction de la longueur d'onde incidente et de la longueur d'onde de blaze pour plusieurs matériaux. Polarisation : P.

Bien que les revêtements en aluminium soient les plus courants et les moins coûteux, nous optons pour un revêtement en or, car il présente une réflectivité plus élevée que celle de l'aluminium (90 % contre 70 %, voire légèrement moins à 800 nm). Nous écartons également les revêtements en argent, malgré leur réflectivité supérieure, car ils sont plus difficiles à obtenir commercialement. Toutefois, dans nos conditions expérimentales, la réflectivité effective atteint environ 70 % pour l'or et 50 % pour l'aluminium.

Polarisation incidente :

La polarisation P ou TE est la plus efficace : polarisation linéaire contenue dans le plan de diffraction. Pour réaliser cet ajustement on placera une lame demi-onde avant le premier réseau.

5.3.4. Optiques d'entrée/sortie

La ligne à retard fonctionne en aller-retour et un système optique permettant d'isoler le faisceau de sortie de celui de l'entrée est nécessaire. On choisit ici d'utiliser un ensemble formé d'un cube polariseur (Thorlabs, PBS122, 620-1000 nm) qui sépare les polarisation "s" et "p" d'un angle de 90° et d'une cellule de Faraday (Thorlabs, I780R5, 740-820 nm) et d'une lame d'onde. Ce dernier permet la transmission de la lumière dans une seule direction tout en bloquant les réflexions inverses [70]. Le principe de fonctionnement repose sur l'effet Faraday, une rotation de la polarisation de la lumière induite lorsqu'un faisceau traverse un matériau soumis à un champ magnétique parallèle à la direction de propagation de la lumière. La rotation angulaire est proportionnelle à l'intensité du champ et à la constante de Verdet du matériau [71]. Un isolateur de Faraday est composé de trois éléments principaux : un polariseur d'entrée, un cristal magnétisé (souvent du Yttrium Iron Garnet, YIG), et un polariseur de sortie . Le champ magnétique génère une rotation de polarisation dans le cristal, permettant à la lumière de passer dans une direction, mais bloquant le faisceau réfléchi dans l'autre sens en raison d'une rotation supplémentaire.

5.3.5. Schéma final

Le schéma final comprenant toutes les optiques détaillées ci dessus est représenté à la figure 5.8.

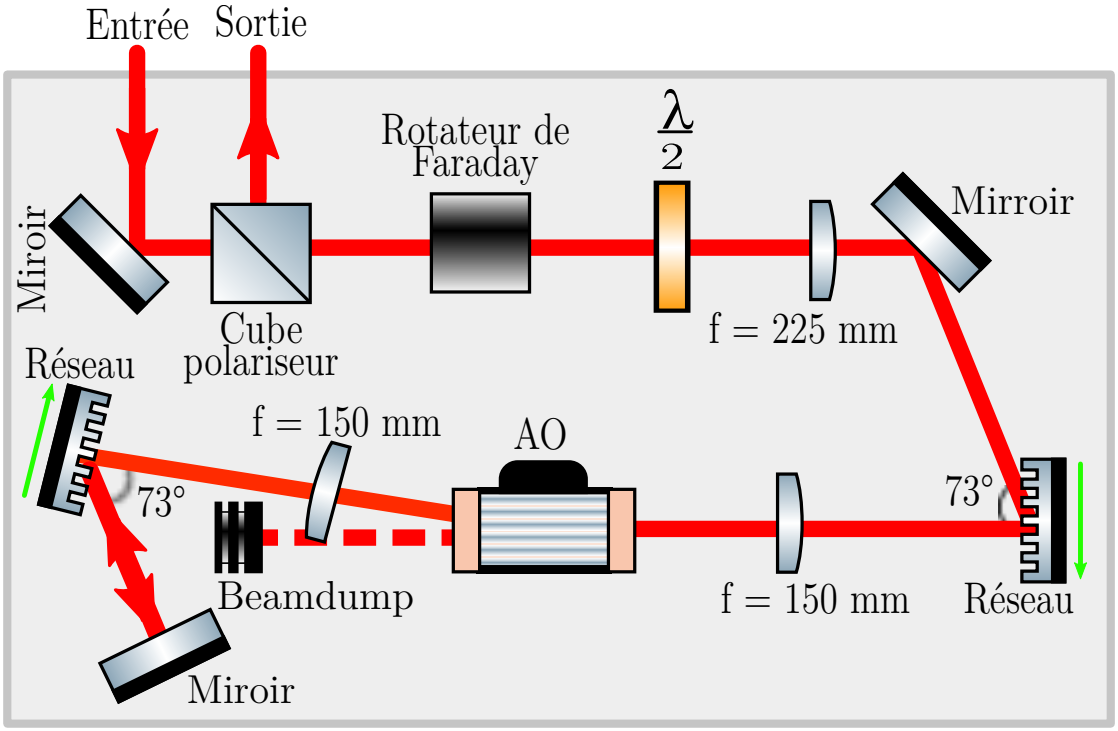


FIGURE 5.8. – Schéma expérimental de la ligne à retard acousto-optique

5.4. Simulation

Pour vérifier la validité de cette equation nous réalisons sous Python une simulations par tracé de rayons en définissant au préalable les caractérisques des éléments optiques utilisés (lentille, miroir, réseau et AO) et leurs dépendance avec θ_d et θ_D. En optique géométrique, le tracé de rayons est une méthode utilisée pour étudier et décrire la propagation de la lumière à travers un système optique, qu'il soit composé de lentilles, de miroirs ou d'autres interfaces. Cette méthode repose sur la représentation de la lumière sous forme de rayons rectilignes, dont la trajectoire est modifiée à chaque interaction avec une surface optique, conformément aux principes de réflexion et de réfraction. À chaque interface, la direction du rayon est déterminée en appliquant les lois correspondantes, par exemple la réflexion dans le cas d'un miroir et la diffraction dans le cas de l'AO. Le rayon est ensuite prolongé jusqu'à la surface suivante, et ce processus est répété pour chaque élément du système optique. Les caractéristiques spécifiques de chaque composant, telles que l'épaisseur, l'indice de réfraction, la densité de trait ou encore les focales sont prises en compte afin de calculer avec précision l'impact de chaque interaction sur la trajectoire des rayons. En traçant plusieurs rayons provenant d'un même point de l'objet, il est possible de déterminer leur point de convergence après leur passage dans le système, correspondant à la formation de l'image. Pour simplifier l'analyse on utilise des outils comme les matrices ABCD [72], offrant une description systématique de la propagation des rayons à travers les différents composants.

Visuellement, le tracé de rayon donne :

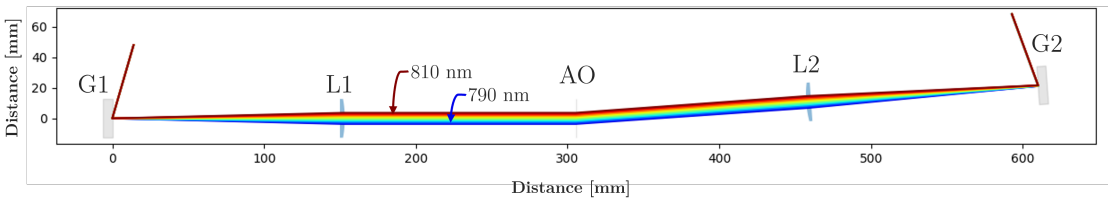


FIGURE 5.9. – Simulation de la ligne 4f par tracé de rayons

5.5. Expérience

Pour les expériences et les alignements présentés ici, nous utilisons un laser à impulsions ultracourtes (Pharos, Light Conversion) émettant à 1030 nm, avec une durée d'impulsion de 150 fs et une cadence de 10 kHz pour une puissance moyenne de 5 W. Ce laser pompe un OPA (TwinStarzz, Fastlite) afin de générer des impulsions à 800 nm de même durée et cadence que le laser de pompe (cf fig. 5.14). Pour nos expériences, nous fixons la puissance de sortie du TwinStarzz à 80 mW.

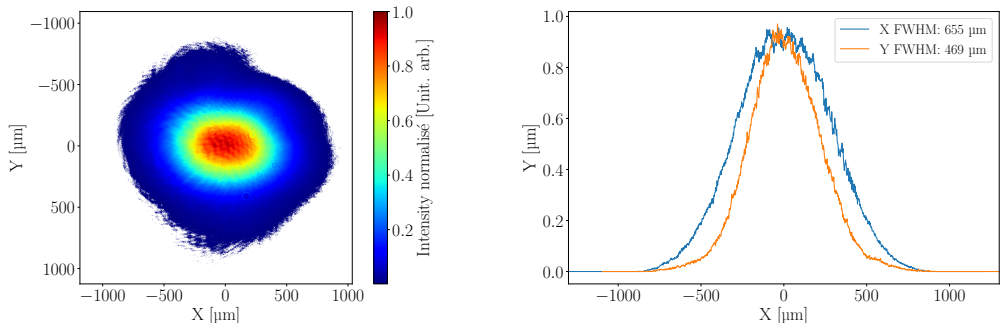
5.5.1. Alignement

Pour aligner la ligne à retard, un cube polarisant est installé et, à l'aide d'un puissancemètre, l'alignement est optimisé afin de coupler au moins 99 % de l'intensité du faisceau incident. La cellule de Faraday est ensuite positionnée, et sa position par rapport au faisceau est ajusté pour maximiser l'intensité transmise. Le réseau de diffraction doit être correctement positionné pour respecter les conditions de diffraction, notamment un angle de $\theta_i = 73°$ (pour obtenir $\theta_d \simeq 0°$) entre le faisceau incident et la normale au réseau (cf fig. 5.1). Le faisceau réfléchi est ensuite collimaté à l'aide de la lentille, et l'AO est installé et configuré pour fonctionner à la fréquence centrale de 57 MHz. Le faisceau diffracté et le faisceau transmis sont alignés pour rester colinéaires. Pour vérifier le bon alignement de l'ensemble du système, la position sur le second réseau doit correspondre au facteur $\gamma = \frac{f \tan(\theta_D - \theta_D^0)}{\cos\theta_d}$ donné par l'équation **??**. Cette correspondance est vérifiée à l'aide d'une caméra (a2A2590-60umBAS, Basler taille de pixel 1.85 μm) placée au point focal de la seconde lentille, à la position fictive du second réseau. Le retour du faisceau dans le système est crucial : il doit suivre exactement le chemin du faisceau incident pour garantir un couplage optimal et permettre la diffraction du même ordre dans l'AO au retour. Chaque élément est minutieusement ajusté afin d'optimiser l'efficacité du système tout en préservant le profil spatial et spectral du faisceau incident.

5.5.2. Caractérisation spatiale et spectrale

Spatiale :

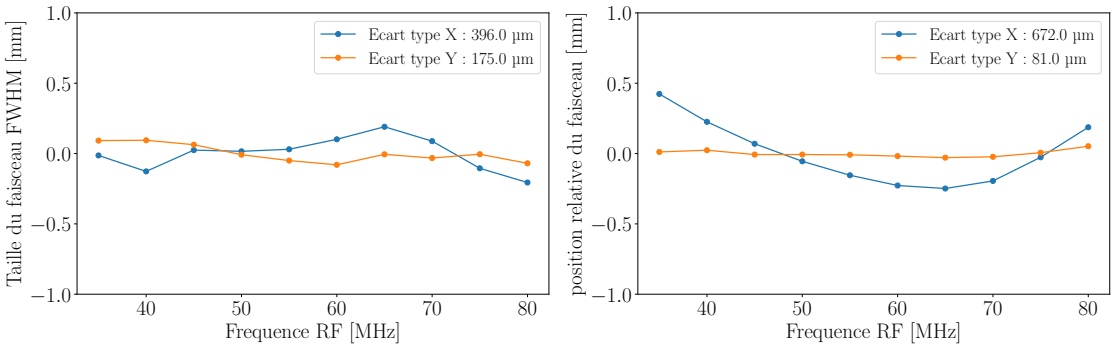
Le profil du faisceau en sortie (cf fig. 5.10) présente une légère ellipticité (655 μm en x et 469 μm en y, pour un faisceau d'entrée de 588 μm en x et 510 μm en y - FWHM), due à des aberrations résultant de la géométrie du système, de petites imperfections d'alignement, et notamment de la distance incorrecte entre le second réseau et la seconde lentille. En effet, si le second réseau n'est pas placé exactement au point focal de la seconde lentille, on observe de légères déformations du profil spatial en sortie de la ligne à retard. Bien que cette aberration ait été corrigée au maximum, la position du second réseau affecte plusieurs paramètres couplés. Il a donc été nécessaire de prendre en compte ces paramètres, tels que le spectre, le déplacement du faisceau ou ses déformations avec la fréquence RF, ainsi que l'efficacité. Nous avons optimisé ces facteurs au mieux pour atteindre un compromis entre eux.



(a) profil spatial du faisceau (b) Coupe spatial faisceau

FIGURE 5.10. – profil spatial et coupe du faisceau en sortie de R

Le faisceau de sortie doit être pratiquement exempt de déviation. Pour vérifier ce point nous placons une caméra (a2A2590-60umBAS, Basler) à la sortie de la ligne à retard. En balayant la gamme de fréquences acoustiques, l'écart entre le maximal et le minimal de la fréquence acoustique est <1 mm (cf fig. 5.11). Cet ecart peux aussi etre régler en augmentant ou en diminuant la distance du second réseau par rapport à la seconde lentille.



(a) Taille (FWHM) du faisceau en fonction de la fré-quence RF (b) Déplacement relatif du faisceau en fonction de la fréquence RF

FIGURE 5.11. – Taille (FWHM) et déplacement relatif du faisceau en fonction de la fréquence RF

Spectre :

Nous vérifions également que le spectre n'est pas tronqué lors de la diffraction par les réseaux, c'est-à-dire que l'intégralité des longueurs d'onde de l'impulsion est bien transmise et que ce spectre ne varie pas en fonction de la fréquence RF appliquée. Un spectromètre (STS-NIR, Ocean Insight) est placé à la sortie, tandis que nous ajustons simultanément l'axe X du réseau et celui du miroir de renvoi pour optimiser et obtenir

un spectre similaire à celui de l'entrée. Nous balayons ensuite les fréquences RF et obtenons les résultats présentés à la figure 5.12.

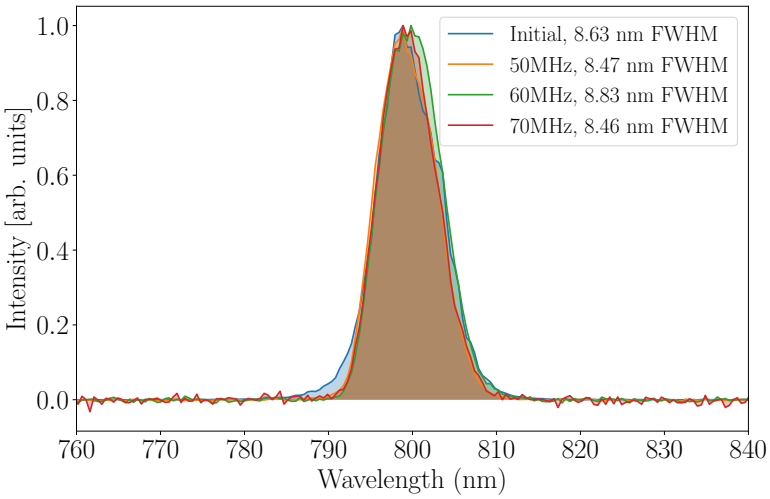


FIGURE 5.12. – Spectre en entrée/sortie de ADL

Le spectre en sortie est légèrement rétréci : à 50 MHz, la largeur à mi-hauteur est de 8.47 nm, contre 8.63 nm initialement, soit une réduction de 2 %. Cette légère perte reste toutefois acceptable, compte tenu de la faible perte. Malgré les variations de fréquence RF appliquées, le spectre reste relativement constant et ne fluctue que très peu.

5.5.3. Efficacité

Le point faible de ADL réside dans son efficacité. En effet, l'efficacité maximale de la ligne atteint seulement 12,5 % (cf fig. 5.13) pour la fréquence centrale sur laquelle elle est alignée. Cette faible efficacité s'explique par plusieurs facteurs. Tout d'abord, le faisceau subit quatre fois la diffraction des réseaux, qui ont chacun une efficacité de diffraction de 80 % (0.8^4). Ensuite, il y a un double passage dans l'AO, dont l'efficacité est de 70 % (0.7^2). Cela revient à une efficacité théorique de 20%, ce qui correspond à la valeur de l'efficacité expérimentale en ajoutant les pertes de Fresnel des différents éléments optiques. De plus, comme expliqué dans la section 5.3.1, l'efficacité diminue en bord de bande due à l'élargissement de la plage de fréquences RF appliquées à l'AO. La figure 5.13 illustre l'évolution de l'efficacité en fonction de la fréquence RF appliquée.

5.5.4. Mesure interféromètrique

Pour valider les équations du retard de groupe (cf eq. **??**) et du chirp (cf eq. **??**), nous réalisons des mesures de phase specrtale par interférometrie spectrale.

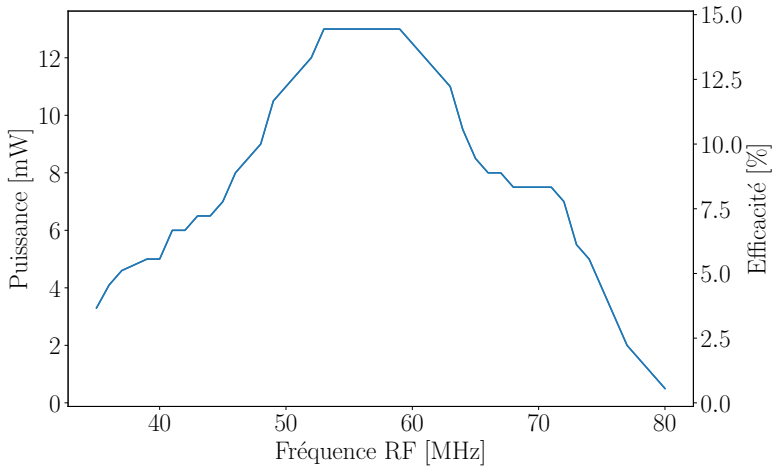


FIGURE 5.13. – Efficacité de la ADL en fonction de la fréquence RF

5.5.4.1. Description de l'expérience

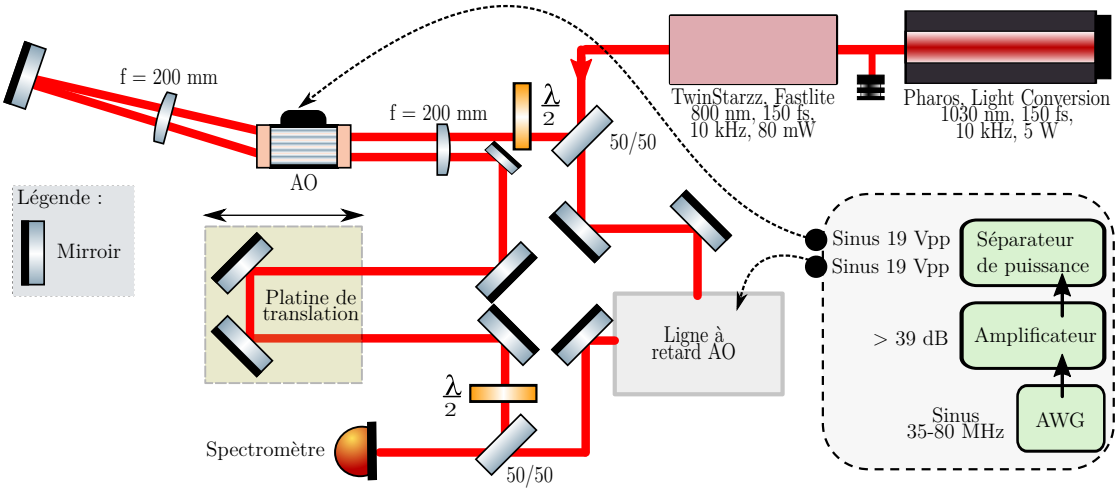


FIGURE 5.14. – Schéma expérimental interférométrique pour la mesure du chirp induit par la ADL

Pour déterminer le chirp induit en fonction de la déviation provoquée par l'acousto-optique (AO), nous effectuons une mesure interférométrique en utilisant une configuration de type Mach-Zehnder [73](cf fig. 5.14). Les faisceaux sont séparés par un séparateur de faisceaux 50/50. L'un des faisceaux traverse la ligne de retard acousto-optique, tandis que l'autre reste inchangé. Après recombinaison spatiale et temporelle à l'aide d'un second séparateur de faisceaux 50/50, et après compensation du chemin optique grâce à une platine de translation sur le bras de référence, les faisceaux sont dirigés vers un spectromètre pour observer les franges d'interférence. Lorsqu'un faisceau traverse la ligne de retard AO, il subit un effet Doppler [15] dû au réseau de diffraction généré par l'onde acoustique propagative dans l'AO. Ce décalage de fré-

quence est proportionnel à la fréquence de l'onde acoustique. Par exemple, pour une onde de 50 MHz, le faisceau lumineux subit un décalage de ±50 MHz, selon l'ordre de diffraction. Avec un double passage dans la ADL, le décalage de fréquence total est de ±100 MHz (50 MHz à l'aller et 50 MHz au retour). Le faisceau de référence, n'ayant pas traversé l'AO, conserve sa fréquence initiale f_0. Or, les franges d'interférence ne sont stables que si les deux faisceaux (réference et mesure) sont cohérents et partagent une relation de phase stable. Si une différence de fréquence existe (ici 100 MHz), les interférences dérivent trop rapidement pour être résolues par un spectromètre optique classique, qui ne détecte alors qu'une intensité lumineuse moyenne. De plus, avec un laser de cadence 10 kHz et le spectromètre disponible, il était impossible de réaliser une acquisition monocoup.

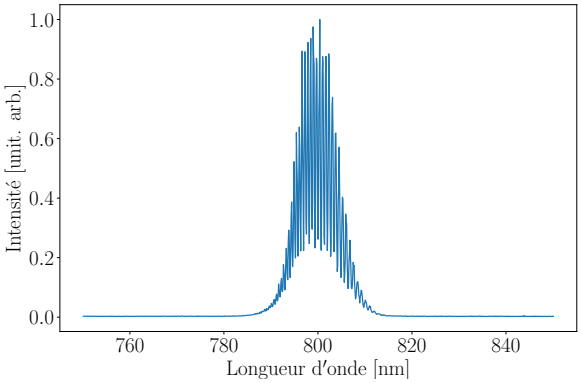
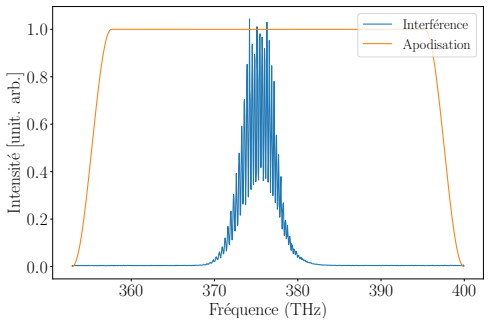


FIGURE 5.15. – Interférence entre les deux bras du Mach-Zhender observé au spectromètre

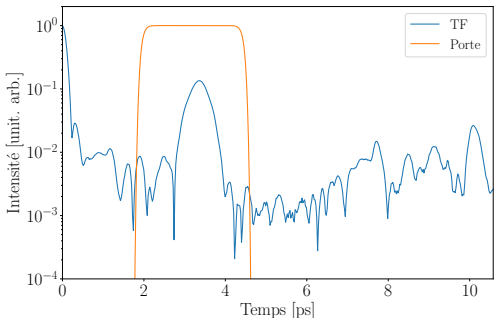
Pour résoudre ce problème, on ajoute un AO sur le bras de référence (cf fig. 5.14), introduisant ainsi le même décalage de fréquence. L'AO est placé dans le plan de Fourier d'une ligne optique 4f, composée de deux miroirs et de deux lentilles de focale $f = 200\,\text{mm}$ (AC254-200-B, Thorlabs), avec une lame d'onde ajustant l'efficacité de l'AO. Les deux AO sont synchronisés via un générateur de fonction (Siglent, SDG6022) qui délivre un signal sinusoidal entre 35 et 80 MHz à un amplificateur à gain >39 dB (AA opto-electronic, AMPA-B-35-10.200-01), puis à un séparateur de puissance (Mini-Circuits, ZA2CS-251-20WS+). La tension est mesurée à 19 Vpp sur chaque sortie, observé à l'oscilloscope (Wavevesurfer 3054, Teledyne Lecroy). Une fois le chemin otpique compensé, les deux faisceaux sont recombiné spatialement et temporellement (platine de translation) via un beamsplitter 50/50 et sont collimaté dans un spectromètre résolu (0.5 nm) à 800 m (Avantes, AvaSpec-2048). Pour pouvoir observer des franges d'interférence (cf fig. 5.15) nous optimiserons les parametres suivants : même polarisation sur les deux bras (on place une lame demi-onde sur le bras de référence), faisceaux de même taille (ajout d'un téléscope sur le bras de référérence), des faisceaux de même intensité (compenser avec des densités optiques), des faisceaux superposés spatialement, une différence de chemin optiques de l'ordre de 1 mm (bouger la platine de translation sur le bras de référence).

5.5.4.2. Traitement de fourier (FTSI)

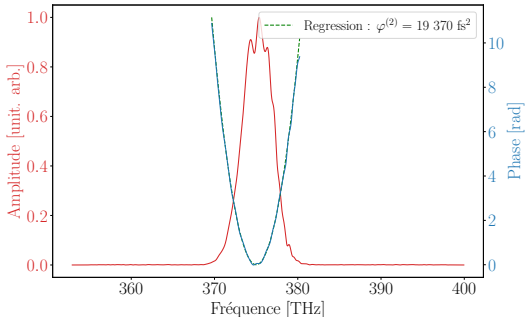
Une analyse numérique par FTSI (Fourier Transform Spectral Interferometry) [73], [74] a été réalisée pour interpréter les spectrogrammes. Le but de cette technique est d'accéder à la différence de phase, résolue spectralement, entre deux ondes polychromatiques, la démarche suivie est basée sur [75]. A la figure 5.16a on représente la figure d'interférence autour de la fréquence centrale de 375 THz. La transformée de Fourier du spectre de la figure 5.16a est représentée à la figure 5.16b. Sur cette figure le pic central correspondant aux autocorrélations des ondes individuelles n'est pas réprésenté et on représente uniquement le terme d'interférence positif. Dans le domaine fréquentiel, ce terme décrit comment les différentes fréquences du signal d'origine contribuent à l'interferogramme. Le filtre temporel est représenté en orange sur cette même figure et on sélectionne uniquement la composante positive pour la transformée de Fourier inverse. A la figure 5.16c, la Transformée de Fourier du signal sélectionné en 5.16b est présenté. L'amplitude spectrale est l'enveloppe des franges spectrales originales et est représenté en rouge sur cette figure tandis que la phase spectrale est représentée en bleu. Pour rappel (cf chapitre 2) le délai de groupe est directement lié à la dérivée de la phase par rapport à la fréquence et le chirp à sa dérivée seconde. Ici, la phase spectrale est quadratique correspondant à un chirp linéaire. En appliquant une regression quadratique sur la phase spectrale on obtient la valeur du chirp (en fs^2).



(a) Interférogramme dans le domaine fréquentiel



(b) Transformé de Fourier



(c) Porteuse et phase

FIGURE 5.16. – Représentation des trois étapes pour extraire le chirp d'un spectrogramme grâce au traitement FTSI

Comme présenté à la figure 5.16c, le chirp induit dans la ligne à retard pour la fréquence RF central (57 MHz) est de 19 370 fs^2. A cela nous devons rajouter un chirp constant dû au passage dans les differentes optiques. En ajoutant le chirp induit par le double passage dans l'AO et les autres optiques décrites précedement nous obtenons un chirp constant dans la ADL de 24 266 fs^2. Si l'on retire ce chirp constant à celui obtenu pour la fréquence RF medianne, nous obtenons un chirp résiduel de 4 896 fs^2.

Détermination du signe du chirp

En principe avec la méthode de détermination du chirp via la FTSI on peut parfaitement déterminer le signe du chirp en déterminant le signe du délai. En pratique, il est plus simple de vérifier que l'on a le bon signe. Pour cela, nous ajoutons 10 mm de ZnSe (soit un ajout de +10 547 fs^2) dans le chemin de la ligne à retard avant la recombinaison des faisceaux. Après avoir réajusté le délai entre les bras, nous appliquons à l'interférogramme résultant le code de FTSI. La figure 5.17 montre les transformées de Fourier associées. Le pic temporel à 3 ps après le passage dans le ZnSe est plus étroit (= durée inférieure), indiquant une diminution de la valeur absolue du chirp $|\phi^{(2)}|$ par rapport à la mesure sans ZnSe. Comme la dispersion du ZnSe est positive à 800 nm,

cela implique que le chirp initial en sortie de la ligne à retard est en réalité négatif.

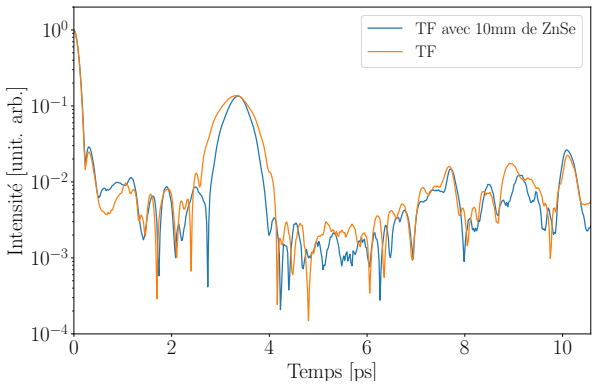
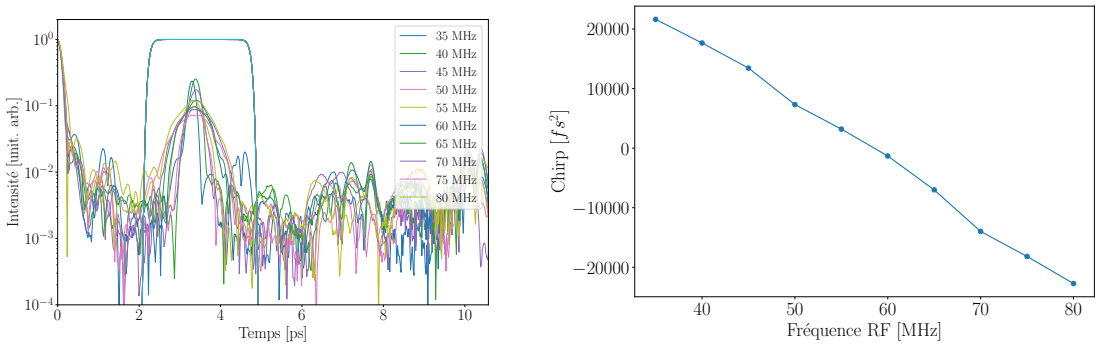


FIGURE 5.17. – TF des franges d'interférences avec et sans ZnSe sur le chemin de la ADL

Variation du chirp en fonction de la fréquence acoustique

Nous déterminons maitenant la variation du chirp en fonction de la fréquence RF, représentée sur la figure 5.18b. La figure 5.18a montre les transformées de Fourier (TF) obtenues à partir des spectrogrammes pour différentes fréquences RF. Nous observons que plus la fréquence RF augmente (et donc le délai), plus le chirp devient important. Aux limites de la bande, nous trouvons un chirp d'environ -45 000 fs^2. En soustrayant le chirp passif induit (comme mentionné précédemment), nous obtenons l'axe de droite de la figure 5.18b, qui met en évidence la variation résiduelle du chirp. Cette variation de chirp est significative mais prévisible, et elle a été calculée dans la section 5.2.2. La courbe rouge sur la figure 5.18b représente la courbe théorique associée, obtenue par une simulation de tracé de rayons (cf sec. 5.4).



(a) TF obtenus des interférences pour plusieurs fréquences RF

(b) Variation du chirp en fonction de la fréquence RF

FIGURE 5.18. – TF et variation de chirp en fonction de la fréquence RF obtenus par FTSI

5.5.5. Détermination du délai de groupe

Le délai de groupe peut également être déterminé grâce à une mesure interférométrique. Pour cela, nous nous plaçons d'abord à la teinte plate entre les deux impulsions. Ensuite, nous modifions la fréquence RF dans l'AO tout en ajustant le délai entre les deux bras de référence à l'aide de la platine de translation (cf fig. 5.14) pour revenir au "délai 0". Nous mesurons la distance D_{total} parcourue par la platine de transla-

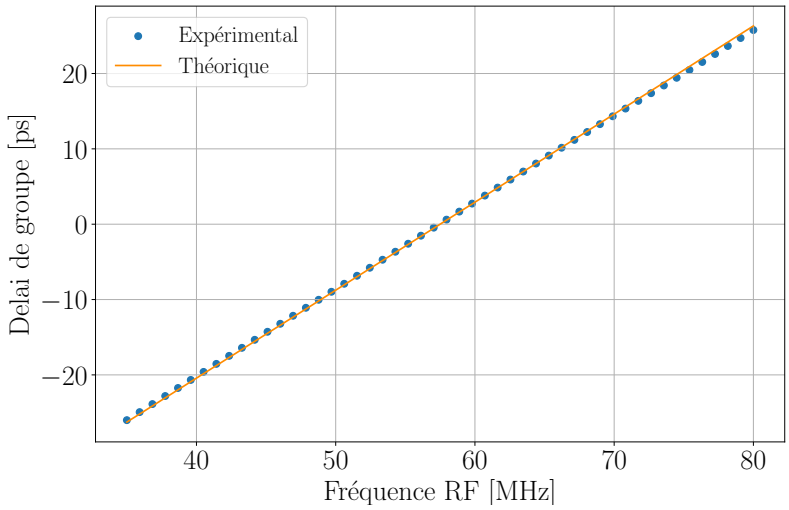


FIGURE 5.19. – Delai de groupe en fonction de la fréquence acoustique ne double passage

tion pour chaque fréquence RF. Une fois l'ensemble des fréquences RF exploré, nous divisons la distance parcourue par la platine par la vitesse de la lumière c tel que

$$\tau = 2\frac{D_{total}}{c} \tag{5.28}$$

pour obtenir le graphique représenté en figure 5.19. Le délai de groupe obtenu est parfaitement linéaire et varie entre 0 et 51 ps pour des fréquences acoustiques comprises entre 35 et 80 MHz. La relation entre la fréquence acousto-optique et le retard en ps est donnée dans le tableau suivant :

Fréquence RF [MHz]	35	40	45	50	55	60	65	70	75	80
Délai de groupe [ps]	0	6.2	12	14.4	23.6	29.4	35.2	42.8	48.8	51

Avec une pente moyenne de 1.16 ps/MHz. La figure 5.19 montre que le délai obtenu correspond parfaitement aux prévisions théoriques développées dans la section 5.2.2, et confirmées par une simulation par tracé de rayons. Grâce au principe de la ADL, ce délai peut être ajusté de manière continue (en scannant de 0 à 50 ps) ou bien fixé à une valeur spécifique en sélectionnant une fréquence RF particulière.

5.6. Conclusion et amélioration

Dans ce chapitre, nous avons présenté en détail la conception, la mise en œuvre et la caractérisation d'une ligne à retard acousto-optique agile (ADL) pour générer des délais optiques contrôlables. Nous avons d'abord analysé les performances du système en termes de profil spatial et spectral. L'un des principaux défis rencontrés réside dans l'efficacité du système, qui atteint un maximum de 12,5 % pour la fréquence RF centrale. Cette faible efficacité est attribuable aux multiples diffractions dans les réseaux de diffraction et aux deux diffractions de l'AO, qui réduisent considérablement l'intensité du faisceau. Ce point clé est encore étudié au moment de l'écriture de ce manuscrit. En effet, une nouvelle géometrie avec des réseaux en transmissions efficaces est envisagée, ce qui reduirait considérablement les pertes optiques.

Ensuite, nous avons réalisé une mesure interférométrique pour caractériser le chirp induit par la ADL. Grâce à une analyse par traitement de Fourier, nous avons pu déterminer la nature du chirp en fonction de la fréquence acoustique appliquée. Ces résultats confirment les prédictions théoriques, permettent de mieux comprendre l'impact de la fréquence RF sur la dispersion temporelle du faisceau et surtout de comprendre que le chirp induit dans la ADL est intrinsèque à la géometrie 4f+AO. Enfin, nous avons mesuré le délai de groupe introduit par la ADL, qui varie de 0 à 51 ps pour des fréquences acoustiques comprises entre 35 et 80 MHz ce qui est aussi conforme aux attentes théoriques.

En conclusion, cette ligne à retard acousto-optique offre un contrôle précis et ajustable du délai optique jusqu'à 51 ps, avec une possibilité de scan continu ou de sélection d'un délai spécifique. La vitesse de balayage des fréquences RF dans la colone acoustique de l'AO est théoriquement (selon le constructeur) de $\approx$9.2 μs (la vitesse acoustique dans le $Te0_2$ est de 0.656 mm/µs, et la colonne acoustique mesure 14 mm), ce qui en fait un outil rapide en terme de rafraichissement. Cette ADL sera utile pour des application en microscopie (cf chap. suivant pour les mesures ISRS) mais est un outils tout aussi puissant pour les experiences necessitant de retarder rapidement des impulsions avec grande précision et contrôle. Les résultats présentés dans ce chapitre sont en cours de publication dans la revue Optics letters (Suresh et Martin et al. "Agile acousto-optic delay line for fast impulsive stimulated Raman imaging", 2024, accepté).

6. Diffusion Raman Cohérent Impulsive couplée à la ligne à retard agile

6.1. Introduction

Dans cette section, nous développons les expériences d'Impulsive Stimulated Raman Scattering (ISRS) pour explorer la gamme des basses fréquences Raman (<200 cm^{-1}) (voir sec 1). Pour cela, nous utilisons la méthode pompe-sonde avec la ligne à retard optique agile (ADL) développée au chapitre 5. La detection du signal Raman s'effectue via un décalage spectral et le principe de modulation-démodulation (cf chapitre 1 pour extraire le faible signal généré. Grâce à la longue plage de retard de l'ADL (50 ps), nous augmentons la résolution spectrale d'un facteur 8 par rapport à l'état de l'art [76],[66]. De plus, comme les retards sont accessibles à la fois successivement et de manière aléatoire, il est possible d'imager sélectivement des molécules spécifiques.

Espèces chimiques étudiées

Le choix des molécules étudiées s'est basé sur la présence de larges pics Raman dans la région inférieure à 200 cm^{-1}. Nous étudions le Germanate de Bismuth (BGO - $Bi_4Ge_3O_{12}$) et le Phosphate Titanyle de Potassium (KTP, $KTiOPO_4$). Nous analysons également l'Anthracène (un hydrocarbure aromatique polycyclique - $C_{14}H_{10}$), utilisé notamment dans le développement de médicaments antitumoraux [77], ainsi que l'Acétaminophène (N-acétyl-para-aminophénol/paracétamol - $C_8H_9NO_2$), qui est employé comme médicament pour soulager la douleur et réduire la fièvre.

6.2. Mise en place de l'experience

Pour réaliser les mesures d'ISRS (cf fig. 6.1), nous utilisons un laser Ti :Saphir (Chameleon, Coherent) opérant à 800 nm, avec une puissance moyenne de 3,5 W, une durée d'impulsion de 170 fs, à une cadence de 80 MHz. Le RIN de ce laser est limité par le *shot-noise* pour des fréquences RF supérieurs à quelques MHz. Ce laser pompe un oscillateur paramétrique optique (OPO, Compact OPO, Coherent) dont la largeur longueur d'onde est comprise entre 1040 et 1045 nm, avec une puissance moyenne de 700 mW, et également à une cadence de 80 MHz et un RIN limité par le "shot noise" à

partir de quelques MHz. L'OPO est réglé à 1045 nm et sert de laser "pompe" dans l'expérience pompe-sonde ISRS, tandis qu'une partie du faisceau laser à 800 nm, extraite avant l'OPO, est utilisée comme faisceau "sonde". Le faisceau laser à 1045 nm est focalisé à l'aide d'une lentille de 100 mm avant d'être dirigé vers un modulateur acousto-optique (AOM, MT200-A0.2-1064, AA Opto-Electronic) (cf sec. 4.1.1), alimenté par un signal sinusoïdal de 12 MHz grâce à un générateur de fonctions (AFG1062, Tektronix). Le faisceau, modulé à 12 MHz, est ensuite recollimaté à l'aide d'une lentille de 200 mm, puis traverse un compresseur à réseau [78], [79] en transmission (Wasatch Photonics, USA) avec un réseau de 600 traits par millimètre, optimisé pour une longueur de blaze à 900 nm, afin de restaurer une durée d'impulsion similaire à celle du faisceau pompe de l'OPO, soit 170 fs. Le faisceau à 800 nm, quant à lui, traverse la ligne à retard optique agile (ADL) puis une platine de translation (M 415.2S, Physik Instrumente, Germany) afin de recombiner temporellement les faisceaux pompe et sonde au niveau du plan d'échantillon. Avant cette recombinaison via un miroir dichroïque, les faisceaux sont respectivement de 800 nm, avec une puissance moyenne de 100 mW, à 80 MHz, et une durée d'impulsion de 170-300 fs pour l'un, et de 1045 nm, avec une puissance moyenne de 700 mW, à 12 MHz, et une durée d'impulsion de 170 fs pour l'autre. Après la recombinaison, les faisceaux sont dirigés à travers des miroirs galvonométriques (6215HM60, Cambridge Technology) puis vers un microscope inversé (cf fig. 6.2).

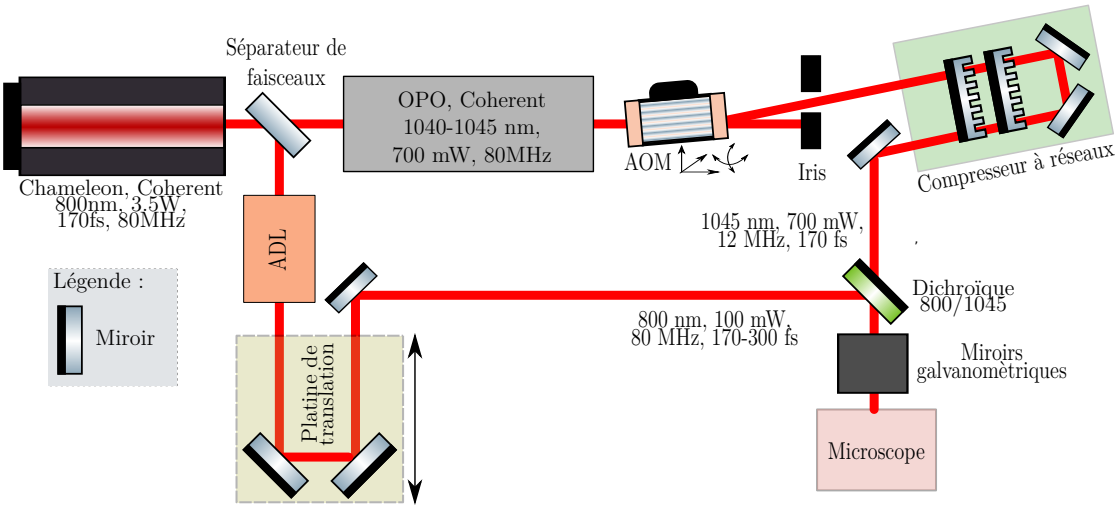


FIGURE 6.1. – Schéma de l'expérience ISRS

6.2.1. Microscope

Le microscope utilisé est un microscope inversé (Eclipse Ti :U, Nikon). Il est équipé d'une lentille de balayage de focale 100 mm et d'une lentille de tube focale 250 mm, suivies d'un objectif de microscope 20x (CFI Plan Apo Lambda 20X, Nikon) qui focalise le faisceau sur l'échantillon avec une taille de quelque μm. Un second objectif identique recollimate le faisceau, et une paire de lentilles (focales de 200 mm et 100 mm)

réduit la taille du faisceau d'un facteur deux. La partie spectrale supérieure à 900 nm est ensuite filtrée (2 ×FES0900, Thorlabs, USA et 2 ×FES1000) pour ne laisser passer que le faisceau à 800 nm.

Un séparateur de faisceau dirige le faisceau à 800 nm qui à sondé l'échantillon sur deux photodiodes. La première permet d'observer le faisceau transmis à travers l'échantillon à l'aide d'une photodiode (DET100A, 8MHz de bande), tandis que la seconde, équipée de deux filtres passe-haut à 800 nm (FELH800, Thorlabs, USA) et donc centrés sur la fréquence centrale du faisceau sonde, est utilisée pour observer le signal Raman (signal positif/négatif cf chapitre 1). La détection du décalage de fréquence est assurée par une photodiode en silicium (SRS Lock-in Module, APE, Germany), avec une surface active de 1 cm^2, et une bande passante de 8 MHz-20 MHz. Le signal Raman est ensuite analysé et démodulé à 12 MHz a un amplificateur synchrone (SRS Lock-in Module, APE), avant d'être transmis à une carte d'acquisition (NI 6361, National Instruments) couplé à un filtre électronique passe-haut de 500 kHz (EF507, Thorlabs). Enfin, les données sont envoyées vers un ordinateur équipé du logiciel ScanImage pour leur traitement et analyse.

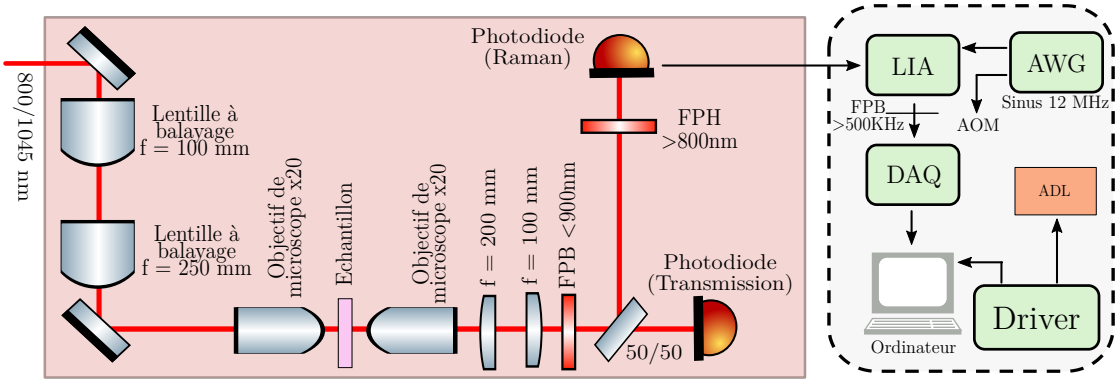


FIGURE 6.2. – Schéma du microscope et de la détection du signal Raman
FPH : Filtre Passe Haut - DAQ : Carte d'aquisition - AWG : Générateur de fonction - LIA : Lock-In Ampltifier

6.2.2. Synchronisation et durée d'impulsion

Pour synchroniser les impulsions pompe et sonde, nous utilisons d'abord une photodiode (DET025AL/M, Thorlabs) couplée à un oscilloscope (WaveSurfer 3054, Teledyne LeCroy) pour synchroniser les impulsions avec une précision de l'ordre de 100 μs (cf sec. 3.2.3). Ensuite, grâce à un cristal de BBO de 500 μm (type I, $\theta = 29.2°$, $\phi = 90°$), nous générons de la SFG pour synchroniser les trains d'impulsions (cf sec. 4). Nous mesurons ensuite la durée d'impulsion FWHM en sortie de la ADL à l'aide d'un auto-corrélateur de seconde harmonique (PulseCheck, APE). Nous retrouvons la dépendance quadratique de la durée d'impulsion avec le délai de la sonde (ie. fréquence RF de l'AO), comme illustré dans la figure 6.3, qui correspond aux mesures

de chirp décrites à la figure 5.16c. Comme pour la mesure de chirp, nous traçons en noir la valeur théorique de la durée d'impulsion (cf eq. **??**) calculée par tracé de rayons. Cette valeur tient compte de la dispersion passive totale de la ADL, évaluée à environ +32 000 fs^2 (cf sec. 5.5.4.2). Sur la figure 6.3, nous montrons également la durée d'impulsion mesurée au niveau de l'échantillon, grâce à un module externe de l'auto-corrélateur permettant cette mesure. Nous observons que la durée de l'impulsion est décalée d'environ 50 fs, ce qui correspond à l'ajout d'un chirp constant d'environ 5 000 fs^2 dans le microscope, en raison du passage à travers les différentes optiques.

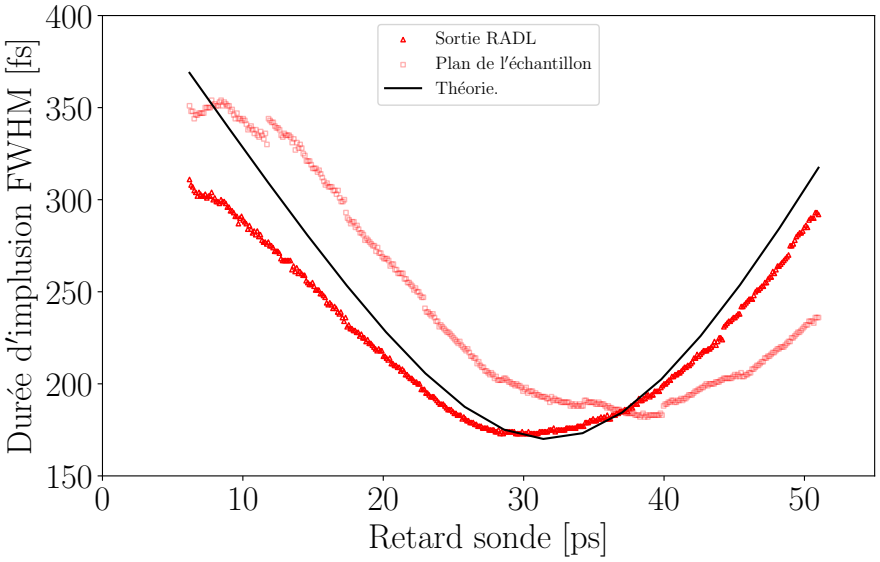


FIGURE 6.3. – Durée d'implusion en sortie de ADL et au plan de l'échantillon en fonction du retard du faisceau "sonde"

6.2.3. Contrôle et synchronisation électronique

6.2.3.1. Alimentation de la ADL

A la différence de ce qui est décrit au chapitre 5, la ADL est ici alimentée par un générateur de fréquence RF DDS développé par Fastlite. Ce générateur est contrôlé via un port USB, directement connecté à l'ordinateur. Grâce à la bibliothèque SCPI (Pyhton) et à un script Python, deux modes d'utilisation sont possibles : le premier est un mode balayage, où l'on définit la fréquence RF de départ et d'arrivée, le nombre de points, ainsi que la direction (croissante ou décroissante). Le second mode est un mode liste, dans lequel une liste (ou un seul nombre) de fréquences RF peut être définie. Le temps de rafraîchissement de l'AO (dans la ADL) est d'environ 20 μs, ce qui limite la vitesse de balayage de la ADL à 50 kHz.

6.2.3.2. Scanimage

Les différents composants du dispositif expérimental sont contrôlés via une interface Matlab-Scanimage personnalisée [80]. Cette interface permet de visualiser l'image transmise par l'échantillon (grâce à la photodiode de transmission), d'observer en temps réel la trace temporelle obtenue par l'expérience pompe-sonde (photodiode Raman), ainsi que l'image hyperspectrale résultante. Les paramètres de contrôle, tels que le nombre de points, la taille de l'image, ou la génération de signaux, sont directement modifiables dans cette application. Le contrôle de la ADL est est possible grâce à une interface utilisateur, permettant de gérer tous les paramètres décrits dans le paragraphe précédent.

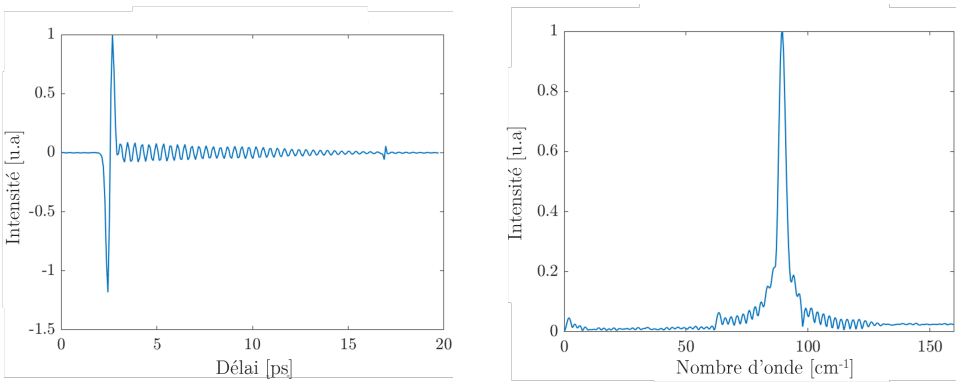
6.3. Résulats

6.3.1. Démonstration de longs balayages temporels

Nous commençons par démontrer la possibilité de réaliser des balayages longs dans des expériences de spectroscopie (c'est-à-dire en réalisant les mesures en un seul point de l'échantillon), ce qui permet d'obtenir la réponse temporelle plus complète de certaines molécules, et ainsi une résolution spectrale améliorée. Nous nous concentrons tout d'abord sur le mode de « balayage à retard continu », c'est à dire lorsque le retard de l'ADL est balayé de façon continu. La figure 6.6 montre des signaux ISRS lorsque les impulsions de pompe et de sonde sont focalisées sur des cristaux de germanate de bismuth (BGO), de phosphate de titanyle et de potassium (KTP), ainsi que l'anthracène.

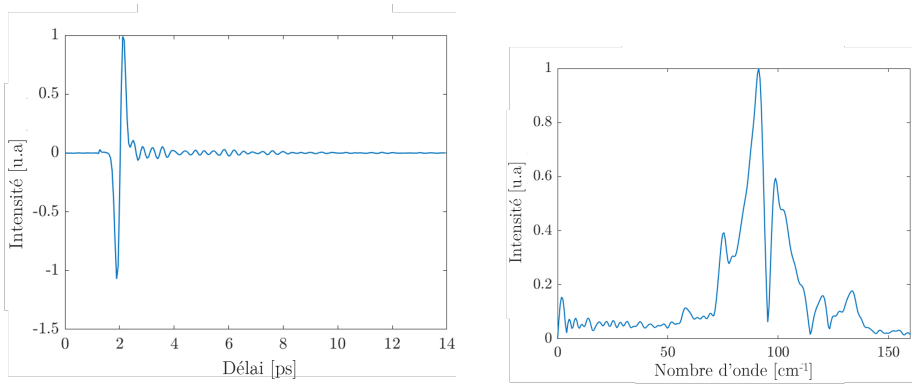
Pour le BGO, le signal est obtenu en balayant la ADL sur 27 ps (cf fig.6.4a). Le retard entre la pompe et la sonde est modifié séquentiellement de 0 à 27 ps, avec 700 valeurs discrètes de retard, régulièrement espacées et avec une fréquence de balayage de 50 kHz (20 μs entre deux acquisitions). Une trace ISRS complète est ainsi acquise en 14 ms. Avec un temps d'intégration de 20 μs sur le LIA, nous obtenons le meilleur SNR qu'avec un temps d'intégration plus faible (possiblilté de réduire le temps d'intégration à 10 μs). Sur la trace temporelle (cf fig. 6.4a, 6.5a ou 6.6a), le pic positif/négatif principal (présent à environ 2.5 ps) correspond au recouvrement temporel de la pompe et de la sonde et est dominé par des processus de mélange à quatre ondes. La trace temporelle oscillatoire qui se développe de 3 ps à 27 ps pour le BGO est la signature directe du transitoire de l'indice de réfraction (décalage spectral du faisceau sonde). Ce dernier est mieux mis en évidence dans le domaine spectral (cf fig. 6.4b, 6.5b, 6.6b), où la transformée de Fourier du signal ISRS sur une fenêtre de 25 ps est présentée sur la plage de 0 à 150 cm^{-1}. Grâce à la ADL, il est possible d'obtenir une résolution spectrale de 1.5 cm^{-1}, ce qui représente une amélioration d'un facteur 8 par rapport aux résultats obtenus avec un Dazzler [66, 76, 81]. Le même principe est démontré pour d'autres espèces chimiques. Ainsi, les traces temporelles du KTP et de l'anthracène, ainsi que leurs spectres respectifs, sont présentés aux figures 6.5a, 6.5b et 6.6a, 6.6b.

Ces traces sont respectivement obtenues avec un balayage de la ADL de 10 ps (acquis en 5 ms) et de 5.5 ps (acquis en 2.8 ms).



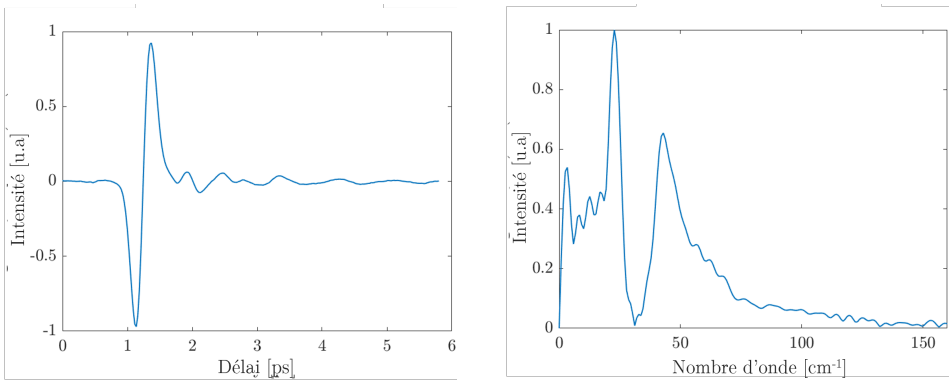
(a) Trace temporelle BGO (0-27 ps) (b) TF BGO

FIGURE 6.4. – Trace temporelle et TF associée pour l'échantillon de BGO



(a) Trace temporelle KTP (0-17 ps) (b) TF KTP

FIGURE 6.5. – Trace temporelle et TF associée pour l'échantillon de KTP



(a) Trace temporelle Anthracène (0-6 ps) (b) TF Antracène

FIGURE 6.6. – Trace temporelle et TF associée pour l'échantillon d'Antracène

6.3.2. Image hyperspectral

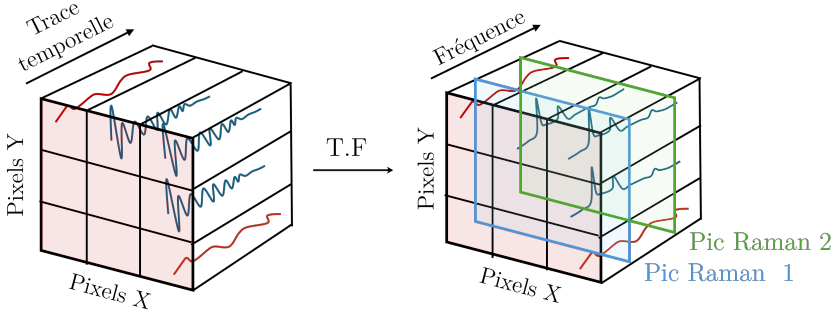
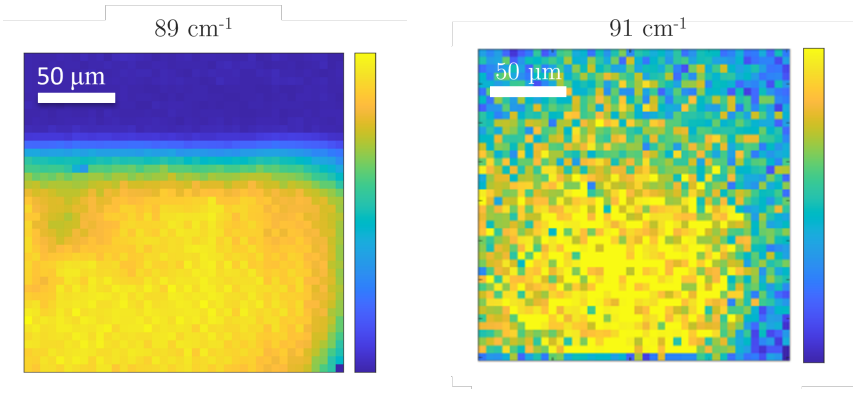


FIGURE 6.7. – Schéma de principe d'un cube hyperspectral (images hyperspectrales en bleu et vert)

L'acquisition du signal ISRS pour chaque point spatial d'un échantillon, permet d'obtenir une image hyperspectrale ISRS (cf fig. 6.7 et 6.8). Le mode opératoire consiste à utiliser les miroirs galvanomètriques pour balayer les faisceaux pompe et sonde en chaques points de l'échantillon et à utiliser la balayage temporel de l'ADL en chaque point. Pour générer cette image, nous construisons d'abord un cube hyperspectral. Ce cube est obtenu en enregistrant la trace temporelle de l'échantillon en chacun de ses points (c'est-à-dire chaque pixel), comme illustré dans le schéma de la figure 6.7. Une fois les données de transitions d'indices acquises, nous appliquons le même traitement de Fourier afin de produire un cube hyperspectral en fonction de la fréquence Raman. Il est alors possible de génerer des images à tous les nombres d'ondes correspondant aux fréquences Raman des échantillons étudiés.

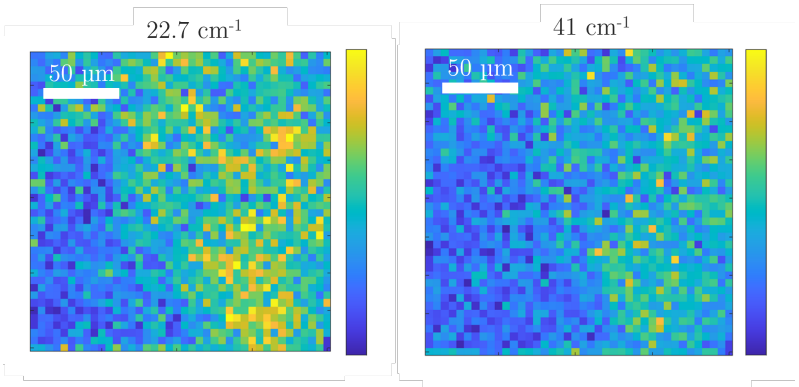
La figure 6.8a) montre les résultats obtenus pour le BGO, dont le pic Raman principal

est à 89 cm^{-1}. Nous avons acquis une image à haute résolution spectrale (700 points temporels, 40 x 40 pixels) sur une surface de 150 μm×150 μm, en 22 s (soit 14 ms par pixel). Les figures 6.8b et 6.8c présentent les images hyperspectrales obtenues à 91 cm^{-1} pour le KTP et à 22 cm^{-1}/41 cm^{-1} pour l'anthracène. Ces résulats démontrent qu'il est alors possible de réaliser des images hyperspectrales avec un bon SNR avec l'ADL. Pour ces expériences, il est important de noter que la variation du chirp dans la plage de retard de 50 ps (cf. fig. 6.3) a eu un effet négligeable sur les spectres Raman associés.



(a) Image hyperspectrale BGO à 89 cm^{-1}

(b) Image hyperspectrale KTP à 91 cm^{-1}



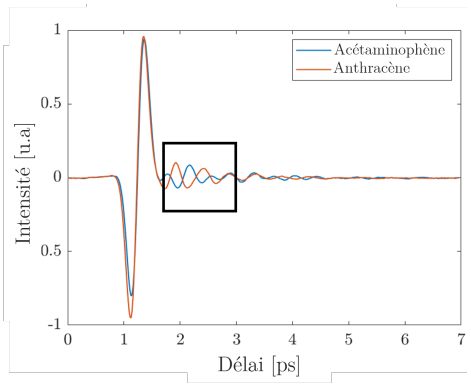
(c) Image hyperspectrale Antracene à 22.7 cm^{-1} et 41 cm^{-1}

FIGURE 6.8. – Images hyperspectrales des échantillons de GBO, KTP et l'Antracène

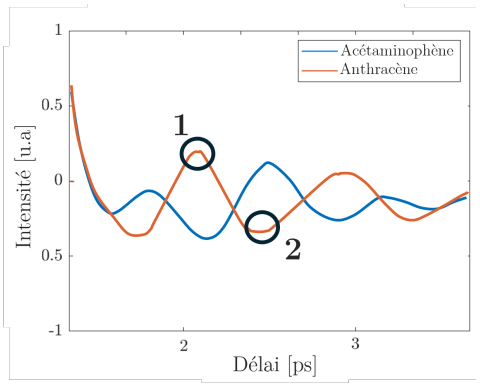
6.3.3. Ligne à délai agile pour la detection selective

Dans l'état de l'art, des travaux ont été réalisés pour obtenir une sélectivité de mode vibrationel en excitant sélectivement les modes par la mise en forme de l'impulsion de pompe [82] et plus récemment en façonnant l'impulsion de la sonde [66]. L'ADL peut également fonctionner en mode « balayage agile », permettant de passer d'un délai à un autre de manière arbitraire. Nous exploitons cette fonctionnalité couplée à l'ISRS pour détecter et imager sélectivement différents échantillons chimiques. Dans

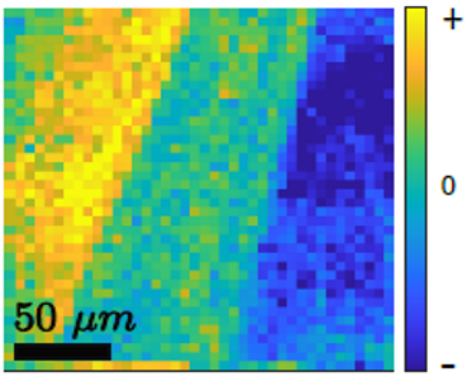
un premier temps, nous acquérons séparément les traces temporelles de deux espèces chimiques : l'acétaminophène (courbe bleue) et l'anthracène (courbe orange) (cf fig 6.9a).



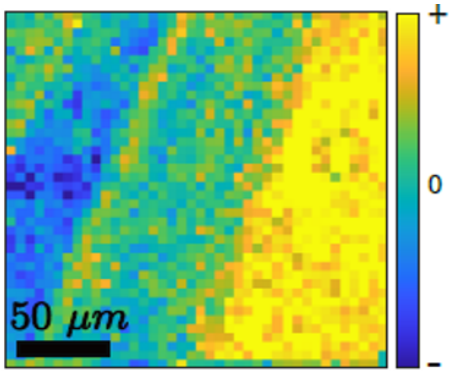
(a) Trace temporelle de l'acétaminophène et l'Anthracène (0- ps)



(b) Zoom sur trace temporelle de l'acétaminophène et l'Antracène. 1) "positif" pour l'Anthracène 2) "négatif" pour l'Antracène



(c) Detection selective de l'Anthracène (jaune)



(d) Detection selective de l'Acétaminophène (jaune)

FIGURE 6.9. – Détection séléctive entre l'Anthracène et acétaminophène

Nous observons un déphasage entre ces deux traces temporelles et identifions des instants caractéristiques où leurs signaux sont opposés. La figure 6.9b montre que, pour un délai de balayage de la ADL correspondant à 3 ps (point **1**), le signal ISRS de l'anthracène est positif tandis que celui de l'acétaminophène est négatif. À 3.4 ps (point **2**), l'inverse est observé. En comparant les signes du signal ISRS aux délais **1** et **2**, il devient ainsi possible de différencier ces deux espèces chimiques. Nous appliquons cette méthode à un échantillon constitué d'un mélange d'anthracène et d'acétaminophène. Nous acquérons des images de $150 \times 150\ \mu m^2$ aux délais **1** (3 ps) et **2** (3.4 ps), obtenant respectivement les figures 6.9c et 6.9d. Pour ces images, le temps de d'intégration par pixel (200 μs) est limité par le temps de rafraîchissement

acousto-optique (20 μs) de l'ADL et par le moyennage (10 itérations). On observe clairement que lorsque l'anthracène est visible, l'acétaminophène ne l'est plus, et inversement. Cette approche peut être généralisée à d'autres échantillons chimiques. Cependant, il convient de noter que certaines traces temporelles peuvent être plus difficiles à différencier. Dans ce cas, il serait envisageable de résoudre ce problème en étudiant le spectre Raman spécifique de chaque espèce (résolution du problème inverse). Toutefois, cette approche n'a pas été développée dans ce travail de thèse.

6.3.4. Vitesse et résolution

En plus d'accélérer la génération d'images en identifiant les retards pertinents, la ADL permet également d'effectuer un sous-échantillonnage temporel ainsi qu'une détection compressée. Pour évaluer cette capacité, nous utilisons à nouveau la ADL sur un échantillon mixte d'acétaminophène et d'anthracène. Cette fois, nous utilisons l'ADL sur une plage de 7 ps (cf. trace temporelle fig. 6.9) et obtenons une trace temporelle ISRS correspondant à la moyenne spatiale des signaux Antracène/Acétaminophène sur un champ 150 μm X 150 μm, comme illustré dans la figure 6.10, intégrant ainsi les contributions des deux composés chimiques. Le spectre Raman associé est présenté

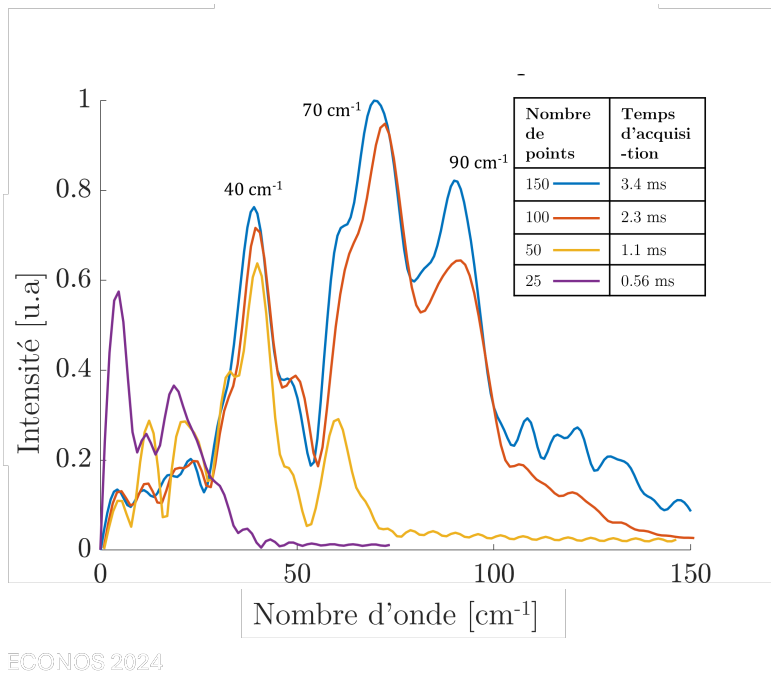


FIGURE 6.10. – Spectres Raman obtenue par TF d'un mélange d'anthracène/acétaminophène pour 150, 100, 50 et 25 d'acquisition de la ADL dans la plage de délais de [2,5 ps-7 ps]

sur la figure 6.10 (TF entre 2.5 et 7 μs) pour un nombre de points de retard uniformément espacés de 150, 100, 50 et 25 points. Les temps d'acquisition correspondants sont

respectivement de 3.4 ms, 2.3 ms, 1.1 ms et 0.56 ms. Pour 150 points d'acquisitions, les pics de l'anthracène (à 40 cm^{-1} et 70 cm^{-1}) ainsi que celui de l'acétaminophène (à 90 cm^{-1}) sont bien résolus. Avec 100 points, les pics restent distincts, tout en offrant une amélioration de la vitesse de balayage de 30 %. À 50 points, les pics à 70 cm^{-1} et 90 cm^{-1} disparaissent, conformément aux prédictions du théorème de Shannon-Nyquist. Lorsque le nombre de points est réduit à 25, seuls des pics "d'alias"subsistent.

Ainsi, le temps d'acquisition des images hyperspectrales peut être réduit à 100 points (2.3 ms) dans notre cas (pour un balayage de 7 ps) sans perte d'information sur le spectre Raman. Cela correspond à un temps total d'acquisition de 3.6 secondes pour une image de 40×40 pixels (150×150 μm^2).

6.4. Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons démontré l'efficacité de la technique ISRS couplée à un système de balayage temporel utilisant une ligne à délai agile (ADL). Cette dernière permet non seulement d'obtenir des mesures précises et rapides sur des échantillons chimiques variés, mais aussi d'améliorer significativement (facteur 8) la résolution spectrale par rapport aux systèmes antérieurs [66], [76], tels que ceux utilisant une ligne à délai rapide de type Dazzler. Nous avons également démontré la possibilité de réaliser des acquisitions hyperspectrales, offrant ainsi une analyse chimique fine à l'échelle de la centaine de micron. Par ailleurs, l'utilisation du mode "balayage agile des délais" a permis de réaliser une détection sélective des espèces chimiques en fonction de leurs signatures temporelles, démontrant ainsi l'efficacité du système pour la discrimination d'espèces chimiques dans des échantillons mixtes. Enfin, grâce au sous-échantillonnage temporel et à la détection compressée, nous avons pu réduire significativement le nombre de points de balayage temporels tout en conservant des informations spectrales précises, ce qui permet d'accélérer l'acquisition des images hyperspectrales sans perte majeure de résolution.

En conclusion, l'utilisation de la ADL couplée à la technique ISRS ouvre la voie à des acquisitions hyperspectrales rapides et à haute résolution dans des applications de détection et d'analyse chimique. La flexibilité et la rapidité du système permettent d'envisager des perspectives intéressantes pour la caractérisation dynamique d'échantillons complexes et pour le développement de méthodes d'imagerie avancées. Les résultats présentés en cours de publication à la suite des travaux sur l'ADL.

7. Conclusion et perspectives

7.1. Conclusion

Cette thèse s'inscrit dans une collaboration CIFRE entre l'Institut Fresnel et l'entreprise Fastlite by Amplitude, mêlant expertise industrielle et académique. Son objectif principal était de développer, optimiser et caractériser des systèmes innovants pour la microscopie sans marquage, en se focalisant particulièrement sur la microscopie Raman cohérente (SRS et ISRS). Ces techniques sans marquage exploitent les propriétés intrinsèques des molécules pour fournir des informations chimiques précises, tout en préservant l'intégrité de l'échantillon et en évitant toute préparation complexe et source d'erreur. Elles se positionnent ainsi comme une alternative adaptée aux limites des approches conventionnelles nécessitant un marquage. Ces atouts rendent la microscopie sans marquage particulièrement prometteuse pour des applications où rapidité, reproductibilité et respect de l'intégrité des échantillons sont essentiels.

Ce manuscrit débute par une introduction aux principes fondamentaux de la microscopie avec et sans marquage et de la spectroscopie Raman cohérente, suivie d'un rappel des bases de l'optique non linéaire. Afin de concurrencer les technologies basées sur les oscillateurs paramétriques optiques synchronisés (sOPO), largement utilisées dans le domaine de la spectroscopie Raman cohérente, nous avons conçu, au chapitre 3, une source innovante basée sur un amplificateur paramétrique optique (OPA). Contrairement aux sOPO, l'OPA présente l'avantage d'offrir une ajustabilité rapide des longueurs d'onde tout en délivrant une puissance de sortie plus élevée.

Cette source OPA opère à une fréquence de 40 MHz et présente un bruit d'intensité relatif (RIN) atteignant le niveau de bruit quantique (*shot-noise*) dès quelques MHz. Elle est alimentée par un laser Ytterbium à solide (Flint, Light Conversion), délivrant des impulsions de moins de 150 fs avec une puissance de 20 W à une longueur d'onde de 1.03 μm. L'introduction récente de fibres à dispersion normale et maintien de polarisation (ANDi-PM) a permis de remplacer l'usage traditionnel des cristaux non linéaires pour générer le supercontinuum (SC), utilisé ici comme semence pour l'OPA. Ce choix s'avère déterminant, car la faible énergie par impulsion, imposée par le fonctionnement à 40 MHz pour atteindre un bruit quantique minimal, ne permet pas un élargissement spectral suffisant dans les cristaux non linéaires pour des applications en spectroscopie Raman cohérente. Par ailleurs, le supercontinuum produit par les fibres ANDi conserve le faible bruit d'intensité de la source de pompe, offrant ainsi un avantage crucial pour ces applications.

La source obtenue est accordable sur une plage de longueurs d'onde allant de 750 nm à 1550 nm, avec une puissance moyenne de 1 W et un rendement de conversion de 30 %. Les impulsions émises ont une durée comprise entre 80 fs et 100 fs. Les mesures de bruit révèlent une stabilité remarquable, le RIN atteignant le niveau de bruit quantique (*shot-noise*) au-delà de 1 MHz. Cette stabilité repose sur le fonctionnement en régime de saturation de l'OPA, où l'intensité de la pompe est optimisée pour minimiser le bruit. Grâce à ces performances, cette source constitue une alternative robuste et fiable aux sOPO pour les applications SRS. Dans le chapitre 4, nous mettons en avant la fiabilité, la robustesse et la polyvalence de cette source dans des configurations avancées de microscopie, de spectroscopie SRS et d'histologie. Ces travaux ont donné lieu à une publication scientifique [56], actuellement en cours de révision pour une soumission dans une revue à comité de lecture, ainsi qu'à plusieurs communications lors de conférences nationales et internationales :

— Présentation orale au GDR ELIOS : "Low-noise parametric amplification of an ANDi fiber supercontinuum to the W-level at 40 MHz", Marseille (France), octobre 2022 ;
— Présentation de poster à la conférence UFO : "Low-Noise tunable source for Stimulated Raman Scattering Imaging", Bariloche (Argentine), mars 2023 ;
— Présentation orale à la conférence CLEO Europe : "Low-Noise Tunable Source for Stimulated Raman Scattering Imaging", Munich (Allemagne), juin 2023 ;
— Présentation de poster au GDR Ondes : "Low-noise parametric amplification of an ANDi fiber supercontinuum to the W-level at 40 MHz", Marseille (France), décembre 2023.

Comme mentionné précédemment, nous avons ensuite couplé cette source à un système d'imagerie SRS. Nos études sur des échantillons tels que des billes de PMMA dans de l'huile ont démontré la capacité du système à détecter des signaux SRS précis, ajustés en fonction des décalages Raman ciblés. Les mesures de l'intensité du signal en fonction des puissances des faisceaux pompe et Stokes ont confirmé une dépendance linéaire, tandis que l'analyse du RIN a mis en évidence l'importance de minimiser le bruit d'intensité pour obtenir des images de haute qualité. La polarisation dans la fibre de l'OPA s'est avérée cruciale pour maintenir un niveau de bruit optimal lors de la détection des signaux SRS. Grâce à l'accordabilité étendue de l'OPA, il est possible d'exciter les bandes vibrationnelles dans la *fingerprint region* (de 200 cm^{-1} à 3500 cm^{-1}). De plus, l'application de la technique de *spectral focusing* par chirp des faisceaux en sortie de l'OPA a permis un contrôle précis des bandes spectrales Raman étudiées en ajustant le délai entre les impulsions. Cette approche a démontré son efficacité sur le DMSO, atteignant une résolution de 0,042 cm^{-1} en seulement 2 ms. Enfin, nous avons illustré l'efficacité de cette source OPA dans des applications d'histologie, confirmant sa pertinence pour des études avancées en microscopie Raman cohérente.

Dans le chapitre 5, nous avons conçu et caractérisé une ligne à retard agile acousto-optique (ADL) dédiée à l'ISRS, permettant un contrôle précis des délais optiques

de 0 à 51 ps avec un temps de balayage inférieur à 10 μs. La configuration adoptée, basée sur une géométrie 4f et un module acousto-optique (AO) inspiré des travaux de [67], a permis de réaliser des balayages continus ainsi que la sélection de délais spécifiques. Le développement et la caractérisation approfondie de cette ligne à retard ont révélé des effets de chirp non considérés dans [67]. L'efficacité maximale mesurée, d'environ 15 %, reste un point à améliorer en raison des pertes liées aux multiples passages dans les réseaux de diffraction et aux deux traversées dans l'AO. Des mesures interférométriques ont été réalisées pour caractériser le chirp introduit par l'ADL, révélant que celui-ci dépend intrinsèquement de la fréquence acoustique appliquée, en accord avec les modèles théoriques développés dans ce cadre. Dans le chapitre 6, nous démontrons la fiabilité, la robustesse et la polyvalence de cette ligne à retard dans des configurations avancées pour la spectroscopie ISRS appliquées à des échantillons pharmacologiques. Ces travaux ont donné lieu à une publication scientifique en cours de publication : Suresh et Martin et al., "Agile acousto-optic delay line for fast impulsive stimulated Raman imaging", Optics Letters, 2024 (accepté). Ils ont également été présentés lors d'un conférence internationale à Vienne (Autriche) en avril 2024, sous le titre : "Impulsive Stimulated Raman Scattering imaging using an ultrafast acousto-optic delay line".

La combinaison de l'ADL avec la technique ISRS, décrite au chapitre 6, a permis d'obtenir des mesures précises et rapides sur des échantillons chimiques complexes dans la bande des *Low-frequency* (inférieur à 200 cm^{-1}), tout en améliorant significativement la résolution spectrale par rapport aux dispositifs de type Dazzler précédemment utilisés pour ce type d'application. En effet, cette configuration permet de sonder les excitations moléculaires jusqu'à 51 ps, contre seulement 6 ps avec le Dazzler, ce qui à permit d'obtenir une résolution spectrale de 1.5 cm^{-1}, ce qui représente une amélioration d'un facteur 8 par rapport aux résultats obtenus avec un Dazzler. L'utilisation du balayage agile des délais a démontré la capacité à détecter sélectivement les espèces chimiques dans un même échantillon en fonction de leurs signatures temporelles. Cette approche a permis de réaliser des acquisitions hyperspectrales sur des échelles de l'ordre de la centaine de microns. Par ailleurs, des techniques de sous-échantillonnage temporel et de détection compressée ont été mises en œuvre pour réduire le nombre de points de balayage nécessaires, sans perte significative de résolution, pour diminuer le temps d'acquisition des images jusqu'à 2.3 ms pour un ballayage temporel de 7 ps. Ces résultats ont donné lieu à une publication complémentaire à l'article mentionné précédemment et ont été présentés lors de la même conférence internationale.

Les travaux présentés dans cette thèse apportent des avancées majeures aux technologies de microscopie et de spectroscopie basées sur le SRS et l'ISRS. La source OPA développée se positionne comme une alternative prometteuse aux OPOs, offrant des performances comparables tout en bénéficiant d'une stabilité accrue. De son côté, l'ADL s'est avérée être un outil puissant pour le contrôle précis des délais optiques, ouvrant la voie à des applications innovantes en détection chimique rapide

et en imagerie avancée. Ces contributions ouvrent de nouvelles perspectives pour la caractérisation dynamique et l'analyse détaillée d'échantillons complexes dans des domaines variés, tels que la biophotonique ou la pharmacologie.

7.1.1. Perspectives

La source OPA est actuellement en cours d'amélioration. Bien que cette dernière ait démontré son efficacité en microscopie, la technologie de fibre ANDi utilisée dans le système représente un point faible. En effet, en raison de la forte intensité par unité de surface au bord de la fibre, et malgré la présence de "end-caps" pour la protéger, une diminution des performances est observée au fil du temps. Dans ce contexte, une étude approfondie sur le maintien des performances et le couplage optimal dans ce type de fibre est nécessaire. Un effort d'industrialisation par Fastlite est actuellement en cours et les premiers résultats laissent à penser que ce problème peut être résolu par une meilleur intégration otpo-mecanique. Une fois ce problème résolu, l'OPA deviendra une source encore plus fiable.

Les résultats obtenus en SRS dans ce manuscrit constituent une introduction prometteuse à la microscopie SRS. Nous avons démontré la capacité de cette source à être utilisée dans des applications de microscopie, mais son potentiel reste sous-exploité. Outre l'application du *spectral focusing* pour améliorer la résolution spectrale, il est possible de varier la longueur d'onde d'un des faisceaux pour exciter des vibrations moléculaires spécifiques. La résolution des images SRS pourrait encore être optimisée en affinant les paramètres de couplage et en améliorant la stabilité et l'efficacité du système.

Comme mentionné précédemment, la ligne à retard agile (ADL) présente un chirp intrinsèque à sa géométrie, un aspect qui ne peut pas être amélioré à la différence de l'efficacité de diffraction, avec l'étude de réseaux de diffraction en transmission et des angles optimisés pour réduire les pertes optiques. Bien que l'ADL ait été appliquée avec succès à l'imagerie ISRS, elle possède un potentiel considérable pour d'autres applications nécessitant un contrôle précis des impulsions retardées, telles que les expériences d'optique ultrarapide et l'analyse de phénomènes dynamiques.

Bibliographie

[1] Hani A ALTURKISTANI, Faris M TASHKANDI et Zuhair M MOHAMMEDSALEH. « Histological stains : a literature review and case study ». In : *Global journal of health science* 8.3 (2016), p. 72 (cf. p. 20).

[2] Ernst RUSKA. « The development of the electron microscope and of electron microscopy ». In : *Reviews of modern physics* 59.3 (1987), p. 627 (cf. p. 20).

[3] Ernst ABBE. « Beiträge zur Theorie des Mikroskops und der mikroskopischen Wahrnehmung ». In : *Archiv für mikroskopische Anatomie* 9.1 (1873), p. 413-468 (cf. p. 20).

[4] Albert H COONS, Hugh J CREECH et R Norman JONES. « Immunological properties of an antibody containing a fluorescent group. » In : *Proceedings of the society for experimental biology and medicine* 47.2 (1941), p. 200-202 (cf. p. 20).

[5] Frits ZERNIKE. « Phase contrast, a new method for the microscopic observation of transparent objects ». In : *Physica* 9.7 (1942), p. 686-698 (cf. p. 20).

[6] Winfried DENK, James H STRICKLER et Watt W WEBB. « Two-photon laser scanning fluorescence microscopy ». In : *Science* 248.4951 (1990), p. 73-76 (cf. p. 20).

[7] Stefan W HELL et Jan WICHMANN. « Breaking the diffraction resolution limit by stimulated emission : stimulated-emission-depletion fluorescence microscopy ». In : *Optics letters* 19.11 (1994), p. 780-782 (cf. p. 20).

[8] Christian W FREUDIGER, Wei MIN, Brian G SAAR et al. « Label-free biomedical imaging with high sensitivity by stimulated Raman scattering microscopy ». In : *Science* 322.5909 (2008), p. 1857-1861 (cf. p. 20).

[9] Martin CHALFIE, Yuan TU, Ghia EUSKIRCHEN et al. « Green fluorescent protein as a marker for gene expression ». In : *Science* 263.5148 (1994), p. 802-805 (cf. p. 21).

[10] Hervé RIGNEAULT et Pascal BERTO. « Tutorial : Coherent Raman light matter interaction processes ». In : *Apl Photonics* 3.9 (2018) (cf. p. 21-23, 27, 85, 101).

[11] Ji-Xin CHENG et X Sunney XIE. « Vibrational spectroscopic imaging of living systems : An emerging platform for biology and medicine ». In : *Science* 350.6264 (2015), aaa8870 (cf. p. 21).

[12] Yong WANG, Chia-Yu LIN, Alexei NIKOLAENKO et al. « Four-wave mixing microscopy of nanostructures ». In : *Advances in optics and photonics* 3.1 (2010), p. 1-52 (cf. p. 22).

[13] Randy A BARTELS, Dan ORON et Hervé RIGNEAULT. « Low frequency coherent Raman spectroscopy ». In : *Journal of Physics : Photonics* 3.4 (2021), p. 042004 (cf. p. 24, 25, 46, 101).

[14] Sandro HEUKE, Ingo RIMKE, Barbara SARRI et al. « Shot-noise limited tunable dual-vibrational frequency stimulated Raman scattering microscopy ». In : *Biomedical optics express* 12.12 (2021), p. 7780-7789 (cf. p. 28, 91).

[15] Bahaa EA SALEH et Malvin Carl TEICH. *Fundamentals of photonics*. john Wiley & sons, 2019 (cf. p. 30, 33, 125).

[16] Orazio SVELTO, David C HANNA et al. *Principles of lasers*. T. 1. Springer, 2010 (cf. p. 30).

[17] Tobias STEINLE, Vikas KUMAR, Moritz FLOESS et al. « Synchronization-free all-solid-state laser system for stimulated Raman scattering microscopy ». en. In : *Light : Science & Applications* 5.10 (avr. 2016), e16149-e16149. ISSN : 2047-7538. DOI : 10.1038/lsa.2016.149. (Visité le 14/08/2024) (cf. p. 31, 44).

[18] Sterling BACKUS, Charles G DURFEE III, Margaret M MURNANE et al. « High power ultrafast lasers ». In : *Review of scientific instruments* 69.3 (1998), p. 1207-1223 (cf. p. 31).

[19] H WILLE, Miguel RODRÍGUEZ, Jérôme KASPARIAN et al. « Teramobile : a mobile femtosecond-terawatt laser and detection system ». In : *The European Physical Journal-Applied Physics* 20.3 (2002), p. 183-190 (cf. p. 31).

[20] Jean-Claude DIELS et Wolfgang RUDOLPH. *Ultrashort laser pulse phenomena*. Elsevier, 2006 (cf. p. 31, 55, 56).

[21] Robert W BOYD, Alexander L GAETA et Enno GIESE. *Nonlinear optics*. Springer, 2008, p. 1097-1110 (cf. p. 32, 33, 50, 52-55).

[22] Govind P AGRAWAL. « Nonlinear fiber optics ». In : *Nonlinear Science at the Dawn of the 21st Century*. Springer, 2000, p. 195-211 (cf. p. 33).

[23] KW CATTERMOLE. *The Fourier transform and its applications*. 1965 (cf. p. 42).

[24] R WA. « Principles of optics." » In : (1959) (cf. p. 42).

[25] Rick TREBINO. *Frequency-resolved optical gating : the measurement of ultrashort laser pulses*. Springer Science & Business Media, 2012 (cf. p. 43).

[26] Yasuyuki OZEKI, Takuya ASAI, Jingwen SHOU et al. « Multicolor Stimulated Raman Scattering Microscopy With Fast Wavelength-Tunable Yb Fiber Laser ». en. In : *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics* 25.1 (jan. 2019), p. 1-11. ISSN : 1077-260X, 1558-4542. DOI : 10.1109/JSTQE.2018.2830816. (Visité le 14/08/2024) (cf. p. 44).

[27] Shun TAKAHASHI, Kenichi OGUCHI, Kento KAMEI et al. « Widely tunable fiber optical parametric oscillator synchronized with a Ti :sapphire laser for stimulated Raman scattering microscopy ». en. In : *Biomedical Optics Express* 15.5 (mai 2024), p. 3191. ISSN : 2156-7085, 2156-7085. DOI : 10.1364/BOE.515446. (Visité le 14/08/2024) (cf. p. 44).

[28] X. AUDIER, S. HEUKE, P. VOLZ et al. « Noise in stimulated Raman scattering measurement : From basics to practice ». en. In : *APL Photonics* 5.1 (jan. 2020), p. 011101. ISSN : 2378-0967. DOI : 10.1063/1.5129212. (Visité le 20/08/2024) (cf. p. 44, 79).

[29] SK KATTI et A Vijaya RAO. *Handbook of the poisson distribution*. 1968 (cf. p. 44).

[30] Majid EBRAHIM-ZADEH et Suddapalli Chaitanya KUMAR. « Yb-fiber-laser-pumped ultrafast frequency conversion sources from the mid-infrared to the ultraviolet ». In : *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics* 20.5 (2014), p. 624-642 (cf. p. 45, 46).

[31] Sophie BRUSTLEIN, Patrick FERRAND, Nico WALTHER et al. « Optical parametric oscillator-based light source for coherent Raman scattering microscopy : practical overview ». en. In : *Journal of Biomedical Optics* 16.02 (fév. 2011), p. 1. ISSN : 1083-3668. (Visité le 14/08/2024) (cf. p. 45).

[32] Thomas WÜRTHWEIN, Kristin WALLMEIER, Maximilian BRINKMANN et al. « Multicolor stimulated Raman scattering with a frame-to-frame wavelength-tunable fiber-based light source ». en. In : *Biomedical Optics Express* 12.10 (oct. 2021), p. 6228. ISSN : 2156-7085, 2156-7085. DOI : 10.1364/BOE.436299. (Visité le 14/08/2024) (cf. p. 47).

[33] Arnaud COUAIRON et André MYSYROWICZ. « Femtosecond filamentation in transparent media ». In : *Physics reports* 441.2-4 (2007), p. 47-189 (cf. p. 47, 51, 62).

[34] E GERSHGOREN, RA BARTELS, JT FOURKAS et al. « Simplified setup for high-resolution spectroscopy that uses ultrashort pulses ». In : *Optics letters* 28.5 (2003), p. 361-363 (cf. p. 48).

[35] Nicolas THIRÉ, Raman MAKSIMENKA, Bálint KISS et al. « Highly stable, 15 W, few-cycle, 65 mrad CEP-noise mid-IR OPCPA for statistical physics ». In : *Optics express* 26.21 (2018), p. 26907-26915 (cf. p. 50).

[36] Yuen-Ron SHEN. « Principles of nonlinear optics ». In : (1984) (cf. p. 50, 55).

[37] Amnon YARIV. « Optical electronics in modern communications ». In : *(No Title)* (1997) (cf. p. 50).

[38] Maximilian BRADLER. « Bulk continuum generation : the ultimate tool for laser applications and spectroscopy ». Thèse de doct. lmu, 2014 (cf. p. 51, 62).

[39] Yan-Wei TZENG, Yen-Yin LIN, Chen-Han HUANG et al. « Broadband tunable optical parametric amplification from a single 50 MHz ultrafast fiber laser ». In : *Optics express* 17.9 (2009), p. 7304-7309 (cf. p. 53).

[40] Robert RIEDEL, J ROTHHARDT, K BEIL et al. « Thermal properties of borate crystals for high power optical parametric chirped-pulse amplification ». In : *Optics express* 22.15 (2014), p. 17607-17619 (cf. p. 53).

[41] Armel BAHOUKA. « Comparaison des propriétés optiques de beta-BBO obtenu par croissance TSSG et par tirage Czochralski en vue d'optimiser la génération de rayonnement UV ». Thèse de doct. Université de Metz, 2006 (cf. p. 55).

[42] N WAASEM, F KU, K BUSE et al. « High-sensitivity measurement of residual absorption of lithium triborate crystals ». In : *2013 Conference on Lasers & Electro-Optics Europe & International Quantum Electronics Conference CLEO EUROPE/IQEC*. IEEE. 2013, p. 1-1 (cf. p. 55).

[43] Elsa GARMIRE. « Resource letter NO-1 : nonlinear optics ». In : *American Journal of Physics* 79.3 (2011), p. 245-255 (cf. p. 55).

[44] Nicolas FORGET. « Des amplificateurs laser aux amplificateurs paramétriques : études de l'amplification paramétrique optique à dérive de fréquence et du blocage de modes dans les oscillateurs paramétriques optiques ». Thèse de doct. Ecole Polytechnique X, 2005 (cf. p. 57).

[45] Richard L SUTHERLAND. *Handbook of nonlinear optics*. CRC press, 2003 (cf. p. 59).

[46] I PIPINYTĖ, R GRIGONIS, K STANKEVIČIŪTĖ et al. « Laser-induced-damage threshold of periodically poled lithium niobate for 1030 nm femtosecond laser pulses at 100 kHz and 75 MHz ». In : *Pacific Rim Laser Damage 2013 : Optical Materials for High Power Lasers*. T. 8786. SPIE. 2013, p. 228-234 (cf. p. 59).

[47] Jing-yuan ZHANG, Jung Y HUANG, H WANG et al. « Second-harmonic generation from regeneratively amplified femtosecond laser pulses in BBO and LBO crystals ». In : *JOSA B* 15.1 (1998), p. 200-209 (cf. p. 61).

[48] Audrius DUBIETIS, Gintaras TAMOŠAUSKAS, Rosvaldas ŠUMINAS et al. « Ultrafast supercontinuum generation in bulk condensed media (Invited Review) ». In : *arXiv preprint arXiv :1706.04356* (2017) (cf. p. 62).

[49] Rosvaldas ŠUMINAS, Gintaras TAMOŠAUSKAS, Vytautas JUKNA et al. « Second-order cascading-assisted filamentation and controllable supercontinuum generation in birefringent crystals ». In : *Optics express* 25.6 (2017), p. 6746-6756 (cf. p. 63).

[50] Jinendra K RANKA, Robert S WINDELER et Andrew J STENTZ. « Visible continuum generation in air–silica microstructure optical fibers with anomalous dispersion at 800 nm ». In : *Optics letters* 25.1 (2000), p. 25-27 (cf. p. 64).

[51] Bernd METZGER, Andy STEINMANN, Felix HOOS et al. « Compact laser source for high-power white-light and widely tunable sub 65 fs laser pulses ». In : *Optics letters* 35.23 (2010), p. 3961-3963 (cf. p. 64).

[52] Pedram ABDOLGHADER, Adrian F PEGORARO, Nicolas Y JOLY et al. « All normal dispersion nonlinear fibre supercontinuum source characterization and application in hyperspectral stimulated Raman scattering microscopy ». In : *Optics Express* 28.24 (2020), p. 35997-36008 (cf. p. 65, 67).

[53] Philip St J RUSSELL. « Photonic-crystal fibers ». In : *Journal of lightwave technology* 24.12 (2006), p. 4729-4749 (cf. p. 65).

[54] Etienne GENIER, Sacha GRELET, Rasmus D ENGELSHOLM et al. « Ultra-flat, low-noise, and linearly polarized fiber supercontinuum source covering 670–1390 nm ». In : *Optics Letters* 46.8 (2021), p. 1820-1823 (cf. p. 71-73, 82).

[55] Alexander M. HEIDT, Dirk-Mathys SPANGENBERG, Anupamaa RAMPUR et al. « All-Normal Dispersion Fiber Supercontinuum : Principles, Design, and Applications of a Unique White Light Source ». en. In : *The Supercontinuum Laser Source*. Sous la dir. de Robert R. ALFANO. Cham : Springer International Publishing, 2022, p. 299-341. ISBN : 978-3-031-06196-7 978-3-031-06197-4. DOI : 10.1007/978-3-031-06197-4_6. (Visité le 19/08/2024) (cf. p. 83).

[56] Ines MARTIN, Yoann PERTOT, Olivier ALBERT et al. « Ultralow-Noise Optical Parametric Amplifier for Stimulated Raman Scattering Imaging ». In : *arXiv preprint arXiv :2305.07357* (2023) (cf. p. 84, 144).

[57] Daimay LIN-VIEN, Norman B COLTHUP, William G FATELEY et al. *The handbook of infrared and Raman characteristic frequencies of organic molecules*. Elsevier, 1991 (cf. p. 85, 93).

[58] Romain APPAY, Barbara SARRI, Sandro HEUKE et al. « Live Stimulated Raman Histology for the Near-Instant Assessment of Central Nervous System Samples ». In : *The Journal of Physical Chemistry B* 127.16 (2023), p. 3624-3631 (cf. p. 86, 89, 91, 100).

[59] Jieping XU et Robert STROUD. *Acousto-optic devices : principles, design, and applications*. Wiley, 1992 (cf. p. 88).

[60] BE SALEH. *Fundamentals of Photonics*. 1991 (cf. p. 88).

[61] Mikhail POLYANSKIY. « Refractiveindex. info ». In : *MediaWiki. http ://refractiveindex. info, accessed* 10 (2014) (cf. p. 90).

[62] Sophie BRUSTLEIN, Patrick FERRAND, Nico WALTHER et al. « Optical parametric oscillator-based light source for coherent Raman scattering microscopy : practical overview ». In : *Journal of biomedical optics* 16.2 (2011), p. 021106-021106 (cf. p. 91).

[63] Thomas A POLOGRUTO, Bernardo L SABATINI et Karel SVOBODA. « ScanImage : flexible software for operating laser scanning microscopes ». In : *Biomedical engineering online* 2 (2003), p. 1-9 (cf. p. 91).

[64] A SELVARAJAN. « Raman spectrum of dimethyl sulfoxide (DMSO) and the influence of solvents ». In : *Proceedings of the Indian Academy of Sciences-Section A*. T. 64. 1. Springer. 1966, p. 44-50 (cf. p. 98).

[65] Michael G GIACOMELLI, Lennart HUSVOGT, Hilde VARDEH et al. « Virtual hematoxylin and eosin transillumination microscopy using epi-fluorescence imaging ». In : *PLoS One* 11.8 (2016), e0159337 (cf. p. 98).

[66] Siddarth SHIVKUMAR, Dekel RANANN, Samuel METAIS et al. « Selective detection in impulsive low-frequency Raman imaging using shaped probe pulses ». In : *Physical Review Applied* 19.5 (2023), p. 054075 (cf. p. 102, 132, 136, 139, 142).

[67] Weiguo YANG, Dorine KEUSTERS, Debabrata GOSWAMI et al. « Rapid ultrafine-tunable optical delay line at the 1.55-μm wavelength ». In : *Optics letters* 23.23 (1998), p. 1843-1845 (cf. p. 102, 104, 145).

[68] Thomas A GERMER. « pySCATMECH : a Python interface to the SCATMECH library of scattering codes ». In : *Reflection, scattering, and diffraction from surfaces VII*. T. 11485. SPIE. 2020, p. 43-54 (cf. p. 117).

[69] Nicolas CHATEAU et Jean-Paul HUGONIN. « Algorithm for the rigorous coupled-wave analysis of grating diffraction ». In : *J. Opt. Soc. Am. A* 11.4 (avr. 1994), p. 1321-1331. DOI : 10.1364/JOSAA.11.001321 (cf. p. 117).

[70] Max BORN et Emil WOLF. « Principles of Optics, 7th (expanded) edition ». In : *United Kingdom : Press Syndicate of the University of Cambridge* 461 (1999), p. 401-424 (cf. p. 120).

[71] J SMITH et A DOE. « Faraday Effect and Its Applications in Optical Devices ». In : *Journal of Applied Physics* 128.4 (2020), p. 123-130 (cf. p. 120).

[72] Gilles DALLA-BARBA. « Architecture D'amplificateur Paramétrique Optique Dans L'espace des Fréquences Pour la Génération de Sources Laser Intenses de Quelques Cycles Optiques Dans L'infrarouge Moyen ». Thèse de doct. Institut National de la Recherche Scientifique (Canada), 2022 (cf. p. 121).

[73] Joseph W GOODMAN. *Introduction to Fourier optics*. Roberts et Company publishers, 2005 (cf. p. 125, 127).

[74] L LEPETIT, G CHÉRIAUX et M JOFFRE. « Linear techniques of phase measurement by femtosecond spectral interferometry for applications in spectroscopy ». In : *JOSA B* 12.12 (1995), p. 2467-2474 (cf. p. 127).

[75] Stéphanie GRABIELLE. « Manipulation et caractérisation du champ électrique optique : applications aux impulsions femtosecondes ». Thèse de doct. Ecole Polytechnique X, 2011 (cf. p. 127).

[76] Xavier AUDIER, Naveen BALLA et Hervé RIGNEAULT. « Pump-probe micro-spectroscopy by means of an ultra-fast acousto-optics delay line ». In : *Optics Letters* 42.2 (2017), p. 294-297 (cf. p. 132, 136, 142).

[77] GN HORTOBAGYI. « Anthracyclines in the treatment of cancer : an overview ». In : *Drugs* 54.Suppl 4 (1997), p. 1-7 (cf. p. 132).

[78] Edmond TREACY. « Optical pulse compression with diffraction gratings ». In : *IEEE Journal of quantum Electronics* 5.9 (1969), p. 454-458 (cf. p. 133).

[79] Xavier AUDIER. « An Analysis of Example ». PhD thesis. Université Aix-Marseille, déc. 2018 (cf. p. 133).

[80] Samuel METAIS, Sisira SURESH, Paulo DINIZ et al. « Hyperspectral acquisition with ScanImage at the single pixel level : application to time domain coherent Raman imaging ». In : *Optics Express* 32.22 (2024), p. 38849-38863 (cf. p. 136).

[81] Thomas OKSENHENDLER, D KAPLAN, P TOURNOIS et al. « Intracavity acousto-optic programmable gain control for ultra-wide-band regenerative amplifiers ». In : *Applied Physics B* 83 (2006), p. 491-494 (cf. p. 136).

[82] Jesse W WILSON, Philip SCHLUP et Randy A BARTELS. « Synthetic temporal aperture coherent molecular phase spectroscopy ». In : *Chemical Physics Letters* 463.4-6 (2008), p. 300-304 (cf. p. 139).

[83] Xavier AUDIER, Sandro HEUKE, Peter VOLZ et al. « Noise in stimulated Raman scattering measurement : From basics to practice ». In : *Apl Photonics* 5.1 (2020), p. 011101 (cf. p. 154).

[84] Xavier AUDIER. « Spectroscopie Raman stimulée rapide et imagerie spectrale ». Thèse de doct. Aix-Marseille, 2018 (cf. p. 154, 163).

[85] Zurich INSTRUMENTS. https ://www.zhinst.com/europe/fr/support/download-center. viewed on 01/18/22 (cf. p. 155).

A. Annexe : RIN

Nous décrivons, étape par étape, la méthode permettant de caractériser le bruit d'intensité relative (Relative Intensity Noise, RIN) d'un laser impulsionnel à l'aide d'un amplificateur synchrone (lock-in amplifier). Des exemples expérimentaux sont fournis.

A.1. Introduction

Nous caractérisons le bruit d'intensité relative (Relative Intensity Noise, RIN) d'un laser femtoseconde à fibre (Tangerine, Amplitude), opérant à une fréquence de répétition de 40 MHz et à une longueur d'onde de 1030 nm. La durée d'impulsion est de 350 fs.

Pour quantifier le RIN, nous utilisons une photodiode InGaAs, une charge de 50 Ω (pour convertir le photocourant en tension), un filtre passe-bas, un amplificateur de tension et un amplificateur synchrone (Lock-In Amplifier, LIA) en mode balayage (cf. figure A.10). L'observable est la densité spectrale de puissance (Power Spectral Density, PSD) de la tension mesurée à l'entrée du LIA. De plus, le LIA est utilisé pour caractériser la fonction de transfert (réponse en fréquence) des différents éléments de la chaîne de détection, incluant la charge, les filtres, l'amplificateur et le LIA lui-même.

En résumé, nous avons utilisé :

— Une source de pompage (Tangerine, Amplitude) à 40 MHz, 23 W, 1030 nm
— Une photodiode rapide InGaAs (DET10N2, 5 ns, Thorlabs)
— Un filtre passe-bas à 25 MHz (BLP-25, 15542, Mini-Circuits)
— Un amplificateur à faible bruit (ZFL-500LN-BNC+, Mini-Circuits)
— Un amplificateur synchrone (HF2LI, Zurich Instrument)
— Un oscilloscope (Wavesurfer 3054, 500 MHz, 4 gigasamples/s, Teledyne Lecroy)

La méthodologie et les calculs suivent les travaux de [83] et [84].

A.1.1. Photodiode

La photodiode (DET10N2, Thorlabs) est une photodiode polarisée (5 V), couplée en continu (DC-coupled) et fonctionnant en espace libre. Elle présente un temps de montée de 5 ns et une bande passante de 70 MHz. Le photocourant de saturation est spécifié à 5 mA. Avec une efficacité quantique d'environ 0.7 mW à 1030 nm, la puissance optique moyenne maximale admissible est inférieure à 7 mW à cette longueur d'onde. Une charge traversante de 50 Ω est directement connectée à la sortie de la photodiode.

A.1.2. Filtre(s)

Un filtre passe-bas à 25 MHz (BLP-25+, 15542, Mini-Circuits) est utilisé pour atténuer la fréquence de répétition à 40 MHz ainsi que les harmoniques du train d'impulsions optiques. La perte d'insertion est d'environ 0.5 dB, avec une fréquence de coupure à -3 dB à 28 MHz et un taux de rejet de 34 dB à 40 MHz. Le rapport d'onde stationnaire (VSWR) est de 1.3 :1 dans la bande passante, ce qui nécessite un positionnement proche de l'entrée de l'amplificateur. Un filtre bloqueur de composante continue (DC-block, Thorlabs) peut être ajouté en option si l'amplificateur n'est pas couplé en alternatif (AC-coupled). Avec l'amplificateur ZFL-500LN-BNC+, cela n'est pas nécessaire.

A.1.3. Amplificateur

Le domaine dynamique du LIA n'étant pas suffisant pour atteindre la densité spectrale de puissance ciblée, un amplificateur de tension est requis. Nous utilisons un amplificateur à faible bruit et couplé en alternatif (ZFL-500LN-BNC+, Mini-Circuits) offrant un gain supérieur à 24 dB sur une plage de fréquence de 0.1 à 500 MHz. Alimenté sous 15 V, le gain est spécifié à 28 dB. La puissance de sortie maximale (à -1 dB de compression) est d'environ 8 dBm (soit 6 mW ou 1.6 V crête-à-crête sur une charge de 50 Ω).

A.1.4. Amplificateur synchrone (Lock-in)

L'amplificateur synchrone (HF2LI, Zurich Instruments) possède une bande passante de 50 MHz (DC-50 MHz) et un taux d'échantillonnage de 210 MSa/s. Le logiciel utilisé est LabOne [85] en mode balayage (sweeper mode). L'amplificateur de courant associé (HF2TA), jugé trop bruyant et ayant une bande passante très limitée, a été avantageusement remplacé par le ZFL-500LN-BNC+.

A.2. Calibration

Comme décrit dans l'introduction, nous mesurons d'abord la fonction de transfert (c'est-à-dire le gain ou la perte d'insertion en fonction de la fréquence) des différents éléments : amplificateur synchrone (LIA), filtre passe-bas (LPF) et amplificateur (Ampli). La méthode consiste à effectuer une détection synchrone : le LIA génère un signal sinusoïdal à une fréquence donnée et enregistre la densité spectrale de puissance (PSD) à cette même fréquence. La fréquence est ensuite balayée sur une plage de 0.1 à 40 MHz. En comparant le rapport entre l'entrée et la sortie avec ou sans l'élément inséré entre le port de génération et celui de détection, la fonction de transfert de l'élément est déterminée.

A.2.1. LIA + charge

A.2.1.1. Montage expérimental

Nous commençons avec l'amplificateur synchrone (LIA). Connectez la sortie `Signal Output 1` à l'entrée `Signal Input 1` à l'aide d'un câble BNC-BNC, en insérant une charge de 50 Ω, comme illustré à la figure A.1. Sur LabOne, sélectionnez l'outil `Sweeper`, plus



FIGURE A.1. – Configuration du LIA.

précis que les outils `Scope` `FFT` ou `Spectrum Analyzer`. Configurez les paramètres comme indiqué ci-dessous et illustré à la figure A.2.



FIGURE A.2. – Configuration du LIA dans LabOne.

1. L'entrée `Signal Input` étant terminée par une charge de 50 Ω, sélectionnez les options `AC` et 50 Ω|*dans*`Signal Input`.
2. Réglez la plage d'entrée sur 0.2 V (192.5 mV).
3. Définissez le débit de transfert des données à 14 kSamples/s.
4. Activez la sortie `Signal Output` (`On`) et réglez l'amplitude à 1 mV (991.8 μV).

5. Comme illustré à la figure A.3, définissez les fréquences de début et de fin (`Start-frequency` et `Stop-Frequency`) à 100 kHz et 40 MHz respectivement, avec 1000 points.
6. Affichez la composante polaire `R`, sélectionnez l'échelle logarithmique (`log`) pour l'axe des abscisses et `dB` pour l'axe des ordonnées.
7. Réglez le mode d'application (`Application`) sur `Parameters Sweep Averaged`.
8. Dans le mode avancé (`Advanced`), définissez la bande passante (`BW mode`) sur `Fixed` (car le signal de sortie est continu dans ce cas) et réglez-la à 30 kHz.
9. Pour calculer la PSD, sélectionnez l'algorithme `Average Power` dans la section statistiques et activez l'option `spectral density` dans les paramètres.

L'unité affichée sur l'axe des ordonnées devrait être dBV^2/Hz. Contrairement à ce qui est indiqué dans la liste déroulante (`spectral density`), ce n'est pas réellement la PSD, car l'impédance n'est pas prise en compte. Il s'agit de la densité spectrale de la variance de la tension. Voici quelques commentaires fournis par Zurich Instruments (ZI) dans le cadre de mes échanges avec leur équipe technique :

— « Comme vous l'avez souligné, l'instrument mesure la tension, et toutes les unités sont donc en V et ses dérivés comme V^2 dBV, dBV^2, $dBV/\sqrt{Hz}$, ou dBV^2/Hz. Le terme "puissance" ici désigne le carré de la tension (V^2). Nous ne calculons pas la puissance physique en W, dBW ou dBm, car cela dépend de l'impédance d'entrée utilisée pour la mesure. »

— « La mesure de l'amplificateur synchrone correspond à la valeur efficace (RMS) de l'amplitude du signal. En d'autres termes, si un signal de la forme $A\sin(\omega t)$ est appliqué à l'entrée, la "puissance moyenne" (`Average Power`) générée par le balayage (`Sweeper`) produit un pic de $A^2/2$ à la fréquence ω lorsque l'option `Spectral Density` est désactivée. »

— « Comme la mesure est en RMS, pour calculer la puissance, il suffit de soustraire le terme $10\log_{10}(50)$ au spectre en dBV^2 ou dBV^2/Hz pour obtenir la puissance en dBW ou dBW/Hz. Ensuite, ajoutez 30 pour obtenir le résultat en dBm ou dBm/Hz. Notez que la puissance physique n'a de sens que si l'impédance d'entrée du HF2LI est réglée sur 50 Ω. »

— « La densité spectrale est calculée en divisant la mesure par la bande passante NEP (Noise-Equivalent Power) du filtre de mesure. Ainsi, lorsque la densité spectrale est calculée, la forme du filtre est déjà prise en compte dans sa bande passante NEP. Par exemple, si la bande passante NEP du filtre est B [en Hz] pour le signal ci-dessus, la densité spectrale mesurée est $(A^2)/(2B)$. »

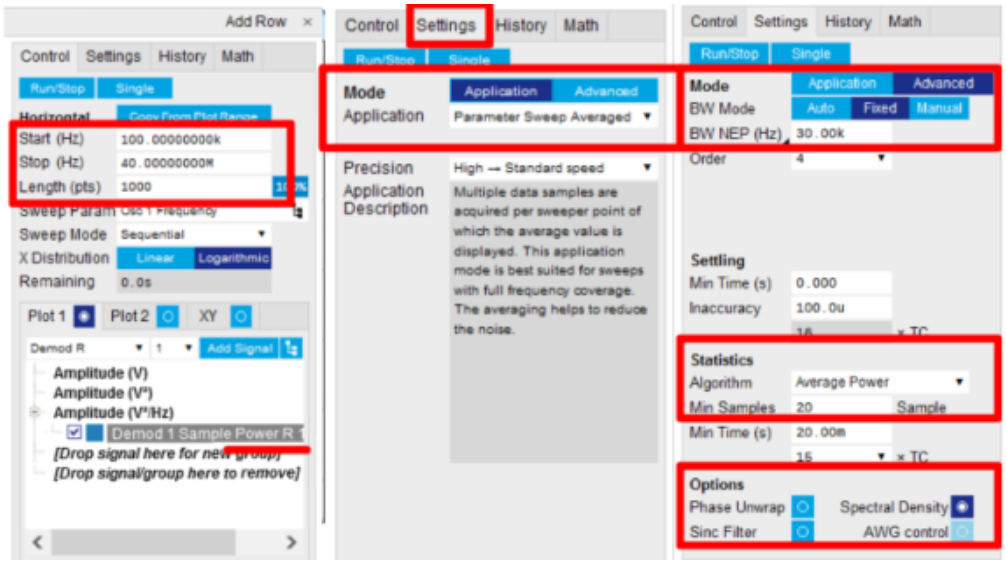


FIGURE A.3. – Configuration de LabOne pour les mesures de "PSD".

A.2.1.2. Mesure

Lancez la commande `Single`. Vous devriez obtenir le graphique présenté en figure A.4.

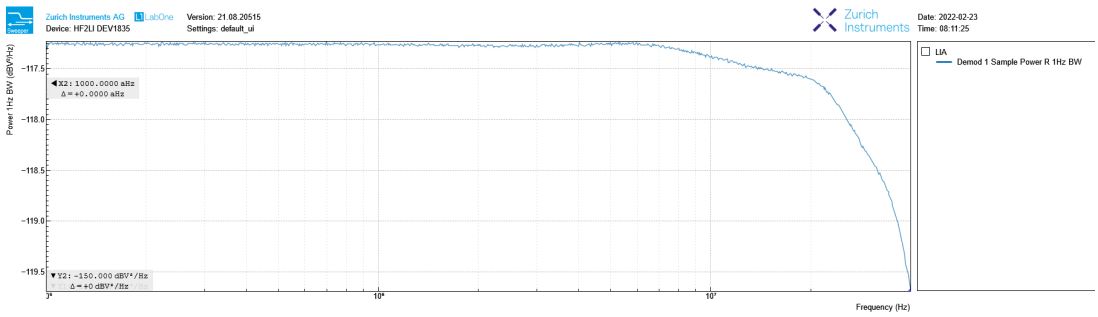


FIGURE A.4. – Fonction de transfert : LIA.

Le niveau détecté est d'environ -117 dBV^2/Hz, ce qui est bien au-dessus du bruit de fond. Enregistrez les données dans un fichier `.csv` nommé `LIA.csv`.

A.2.2. Filtre passe-bas

Ajoutez le filtre passe-bas (LPF) au système précédent comme illustré dans figure A.5, et répétez les étapes décrites dans la sous-section A.2.1.

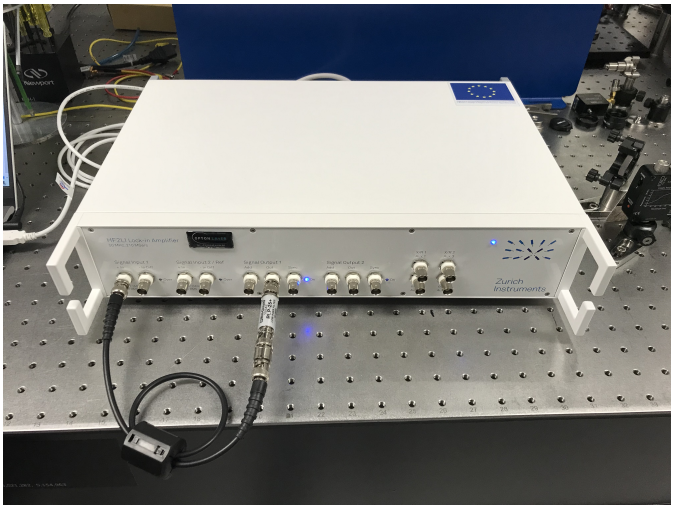


FIGURE A.5. – Configuration avec filtre passe-bas.

Le résultat obtenu est présenté en figure A.6. Enregistrez les données dans un fichier

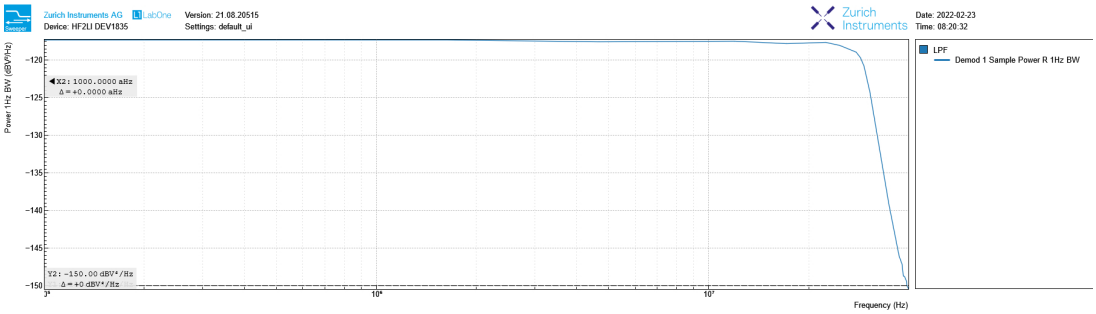


FIGURE A.6. – Fonction de transfert : filtre passe-bas.

nommé `LPF.csv`.

A.2.3. Amplificateur ZFL-500LN-BNC+

Retirez le LPF et remplacez-le par l'amplificateur, comme indiqué dans figure A.7. Le résultat attendu est présenté en figure A.8. Enregistrez les données dans un fichier nommé `Ampli.csv`.

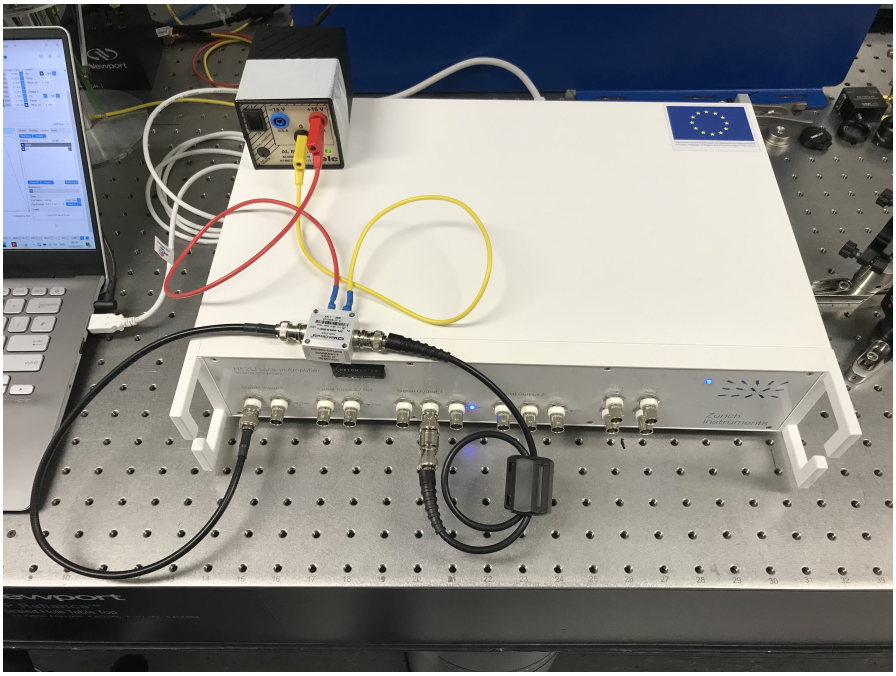


FIGURE A.7. – Configuration avec amplificateur.

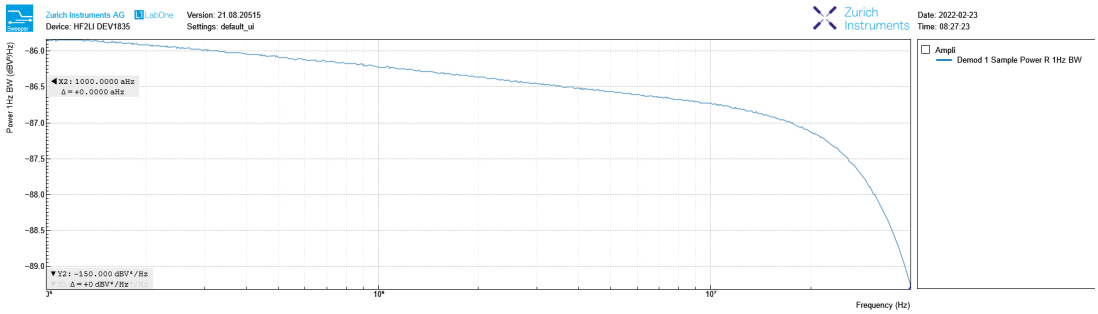


FIGURE A.8. – Fonction de transfert : amplificateur.

A.2.4. Fonctions de transfert

Les fonctions de transfert du système LIA+50 Ω, du filtre passe-bas (LPF) et de l'amplificateur sont présentées dans figure A.9.

A.3. Mesure du bruit relatif d'intensité (RIN)

La tension moyenne à la sortie de la photodiode est d'abord mesurée en connectant cette sortie à un oscilloscope (en mode DC, et non AC) via un câble BNC-BNC 50 Ω. Le laser est doucement focalisé (par exemple, avec une lentille de f = 300 mm) sur la photodiode et la puissance optique est augmentée jusqu'à l'apparition d'effets de saturation (**N.B. :** une densité variable a été utilisée pour ce réglage). Avec la photodiode

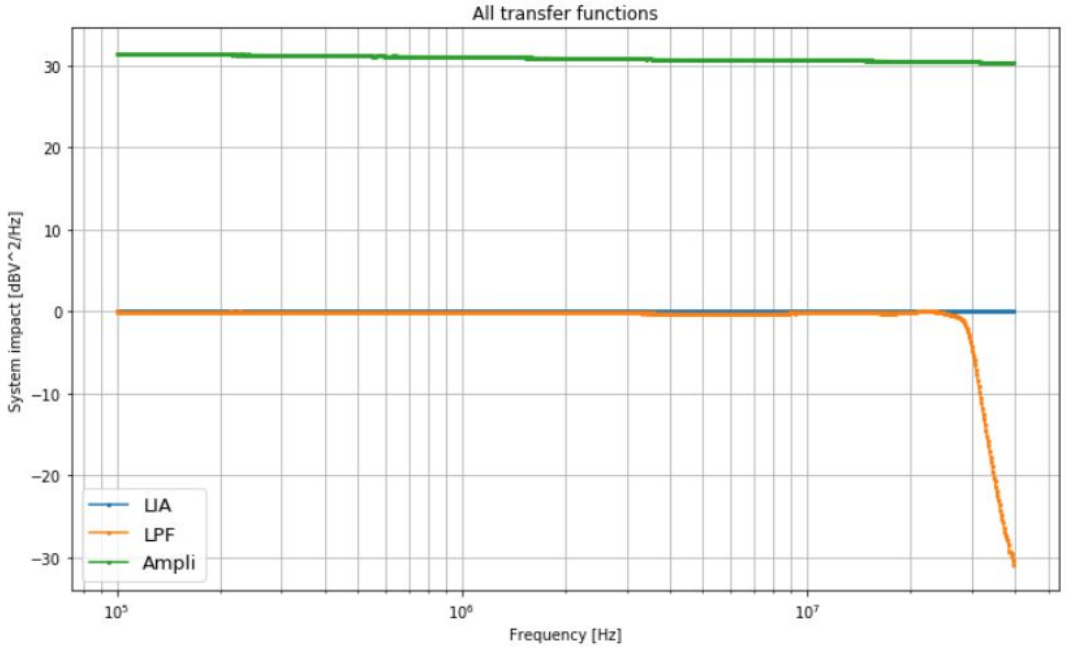


FIGURE A.9. – Fonctions de transfert des configurations LIA+50 Ω, LPF et amplificateur.

DET10N2, nous obtenons une tension moyenne de U_{avg} = **163 mV**. Cette valeur est lue via la fonction intégrée de l'oscilloscope. Le niveau crête-à-crête correspondant est de **820 mV**.

L'oscilloscope est ensuite déconnecté, et une charge traversante de 50 Ω est directement reliée à la photodiode. L'extrémité libre de cette charge est connectée à l'amplificateur, puis au LIA. Il est conseillé d'éviter les câbles BNC trop longs. Une charge de 50 Ω est connectée à l'entrée `-In Diff` de `Signal Input 1` pour éviter un circuit ouvert. Le montage expérimental est illustré dans figure A.10. Il est essentiel de minimiser les sources de bruit : fixez les câbles à la table optique (proche d'un plan conducteur), ne les torsadez pas, utilisez des câbles blindés de 50 Ω, mettez la table à la masse, et limitez au maximum le nombre de connecteurs.

Dans LabOne, le `Signal output 1` est désactivé comme indiqué dans figure A.11, et les autres paramètres restent inchangés.

Pour éviter les effets de bord, le mode de bande passante (`BW Mode`) est réglé sur `auto`, comme illustré dans figure A.12.

Avec notre laser (non spécifié comme étant limité par le bruit de grenaille), nous obtenons les résultats présentés dans figure A.13. En parallèle, le bruit noir est enregistré en bloquant le laser, et les données sont sauvegardées sous les fichiers `Pump.csv` et `Dark.csv`. Le bruit noir mesuré est illustré dans figure A.14.

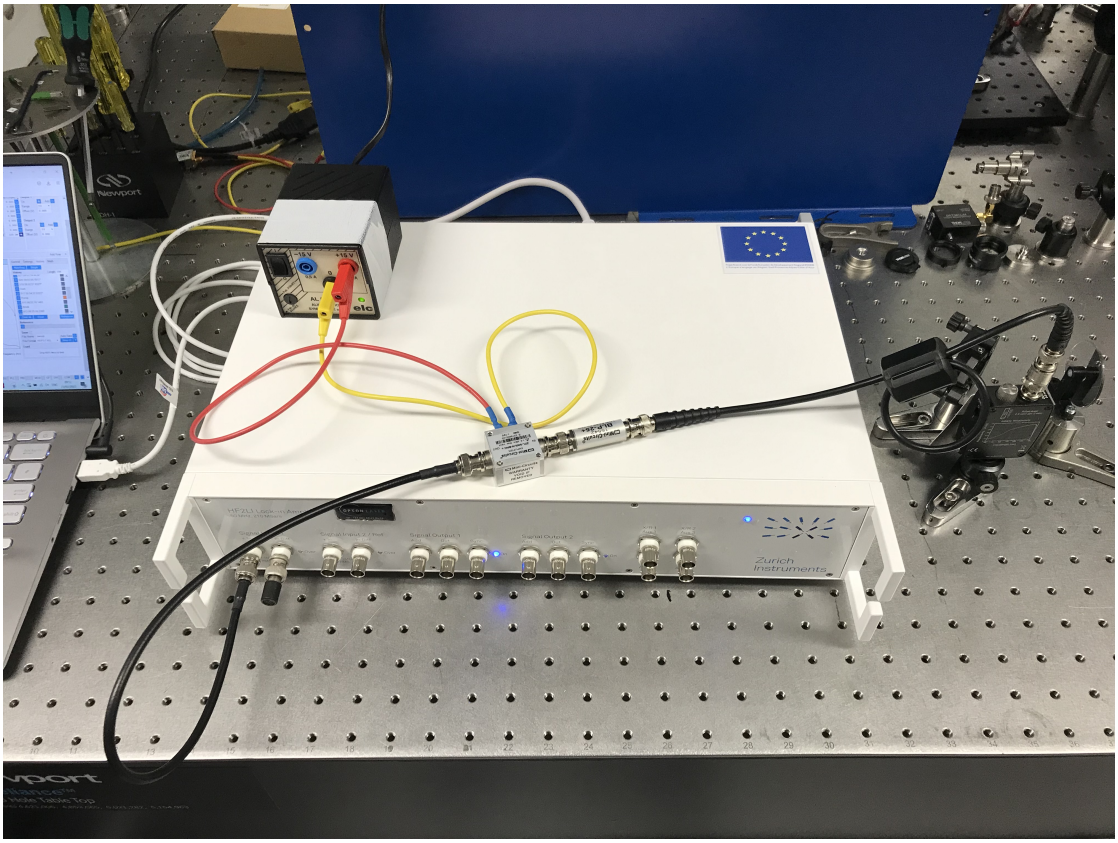


FIGURE A.10. – Montage expérimental pour la mesure du bruit laser.

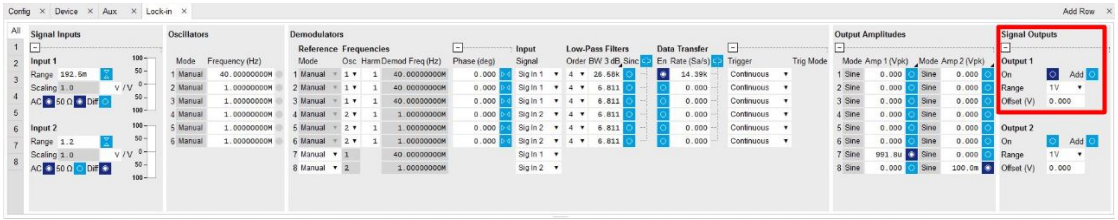


FIGURE A.11. – Capture d'écran de LabOne pour la mesure de PSD.

A.4. Analyse

A.4.1. Niveau de bruit de grenaille attendu

Dans section A.3, nous avons mesuré une tension moyenne de $U_{avg} = 163\,\text{mV}$ et une puissance moyenne de $P_{avg} = 4.2\,\text{mW}$ sur une charge de $50\,\Omega$, ce qui correspond à un photocourant moyen de $I_{avg} = 3.6\,\text{mA}$.

Le bruit de grenaille d'un courant électrique est donné par :

$$\langle i^2 \rangle = 2qI_{avg}/\Delta f \tag{A.1}$$

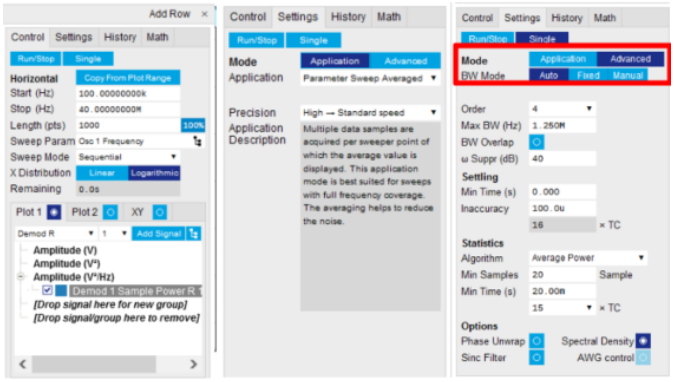


FIGURE A.12. – Capture d'écran de LabOne pour la configuration PSD.

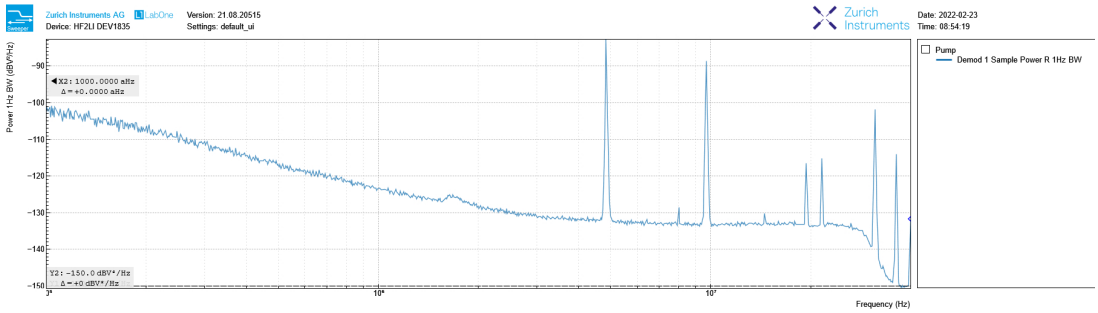


FIGURE A.13. – PSD mesurée avec le laser allumé.

La densité spectrale correspondante s'écrit :

$$S_i(f) = 2qI_{avg} \tag{A.2}$$

où q représente la charge électrique élémentaire. L'unité de $S_i(f)$ est A^2/Hz. La densité spectrale de puissance électrique dissipée dans une charge R (PSD, en W/Hz) est alors $RS_i(f)$. Le bruit relatif d'intensité (RIN) associé au bruit de grenaille s'obtient en divisant $RS_i(f)$ par la puissance électrique moyenne RI_{avg}^2. Ainsi, le RIN du bruit de grenaille s'écrit [84] :

$$\text{RIN}_{\text{grenaille}} = \frac{2q}{I_{avg}} \tag{A.3}$$

En pratique, des unités logarithmiques sont utilisées avec la convention $\text{dB} = 10\log_{10}()$. Pour le photocourant moyen mesuré, nous attendons :

$$\text{PSD}_{\text{grenaille}} = -192\,\text{dBW/Hz} \tag{A.4}$$

$$\text{RIN}_{\text{grenaille}} = -160\,\text{dB/Hz} \tag{A.5}$$

A.4.2. Calcul du RIN expérimental

La procédure de calcul est la suivante :

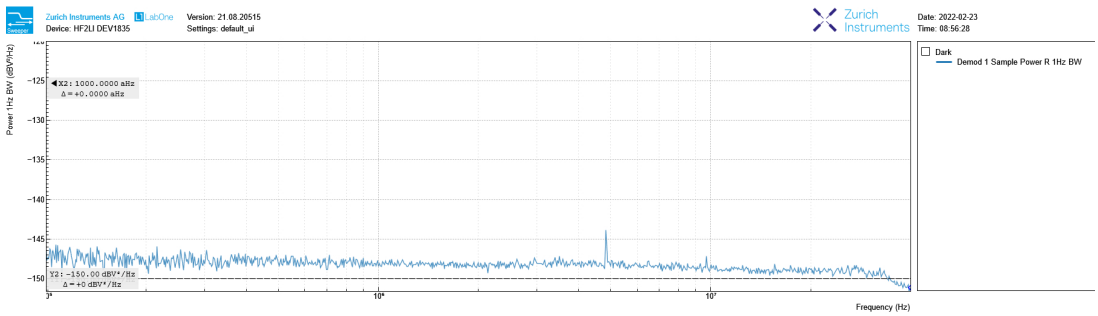


FIGURE A.14. – PSD mesurée avec le laser éteint (bruit noir).

— Convertir la densité spectrale de variance de tension expérimentale mesurée par le LIA, en V^2/Hz, en PSD en divisant par $R = 50\,\Omega$. En échelle logarithmique, cela équivaut à ajouter -17 dBΩ.
— Diviser la PSD mesurée par la fonction de transfert totale de la chaîne de détection (charge, filtre, amplificateur, réponse du LIA) comme décrit dans le script Python en **??**. En échelle logarithmique, cela revient à soustraire environ -30 dB (soit le gain de l'amplificateur avec des corrections mineures liées au filtre et au LIA).
— Appliquer équation A.3 en divisant la PSD par la puissance électrique moyenne RI_{avg}^2. En échelle logarithmique, pour le photocourant mesuré sur une charge de 50 Ω, cela équivaut à ajouter $+32$ dB.

Comme on peut le remarquer, pour le photocourant maximal linéaire, il faut ajouter approximativement :

$$-17\,\text{dB}\Omega - 30\,\text{dBW} + 32\,\text{dB} = -15\,\text{dBV}^2/\text{Hz}$$

afin de convertir les valeurs affichées par LabOne en valeurs de RIN.

A.5. Résultats expérimentaux

A.5.1. Laser Tangerine (40 MHz)

La courbe de RIN du laser Tangerine est présentée en figure A.15. Comme attendu, le bruit noir est légèrement en dessous du bruit de grenaille prédit pour ce laser. Celui-ci présente un bruit excédentaire de plus de 10 dB dans la gamme des 10 MHz, avec des pics étroits (peut-être liés à un AOM intégré au système ?).

A.5.2. Laser CW à 1550 nm

Pour vérifier que le bruit de grenaille peut être atteint, nous avons effectué la même mesure sur une diode laser CW à fréquence unique émettant à 1550 nm (`LP1550-SAD2`). Nous mesurons une tension moyenne de $U_{avg} = 70\,\mathbf{mV}$ et une puis-

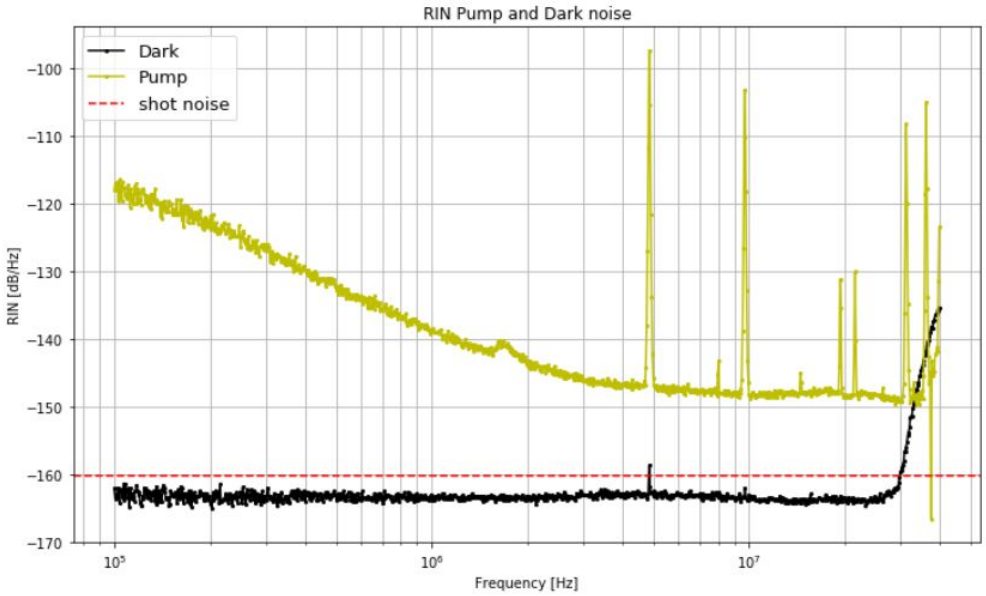


FIGURE A.15. – RIN du laser Tangerine.

sance moyenne de $P_{avg} = 2\,\mathbf{mW}$, ce qui donne un niveau de bruit de grenaille attendu de $-156\,\mathrm{dB/Hz}$. Comme illustré en figure A.16, le plancher de bruit de grenaille est atteint à partir de 2 MHz.

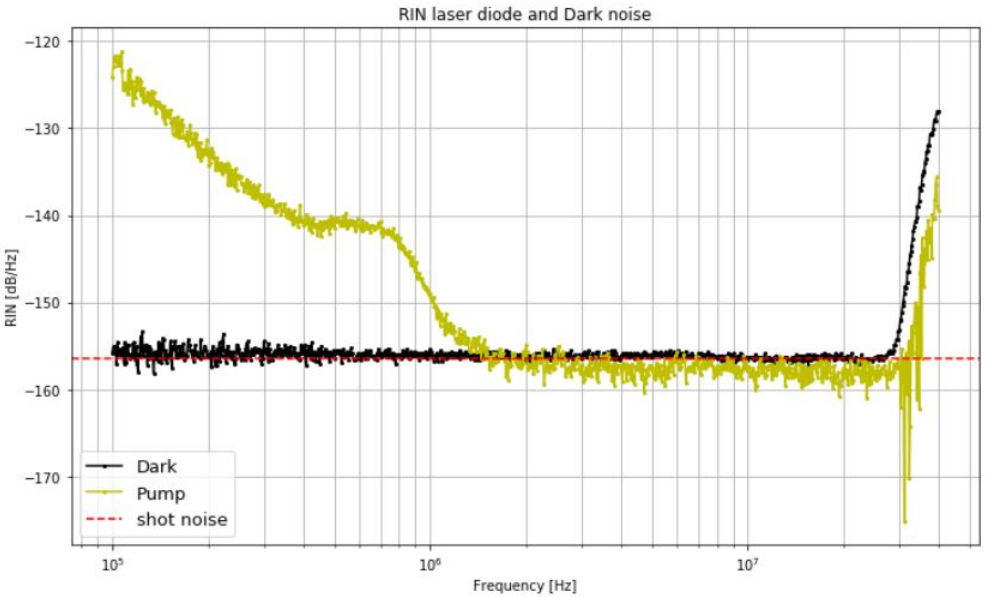


FIGURE A.16. – RIN de la diode laser à 1550 nm.