Thèse de doctorat

Université de Limoges

Université de Limoges

ED 610 - Sciences et Ingénierie des Systèmes, Mathématiques, Informatique (SISMI)

Institut de Recherche Xlim – UMR CNRS 7252

Thèse pour obtenir le grade de

Docteur de l'Université de Limoges

Electronique des Hautes Fréquences, Photonique et Systèmes

Présentée et soutenue par

David KERGOUSTIN

Le 3 décembre 2019

Sources optiques infrarouges impulsionnelles ultra-courtes et spectralement ultra-larges générées par effet Raman dans les fibres creuses

Thèse dirigée par Fetah Benabid et co-encadrée par Frédéric Gérôme

JURY :

Président du jury

M. Vincent Kermène, Directeur de recherche CNRS, Xlim-Phocal, Limoges

Rapporteurs

M. Philippe Grelu, Professeur, Université de Bourgogne, Dijon

M. Ammar Hideur, Professeur, Université de Rouen, Rouen

Examinateurs

M. Fetah Benabid, Directeur de recherche CNRS, Xlim-GPPMM, Limoges

M. Frédéric Gérôme, Chargé de recherche CNRS, Xlim-GPPMM, Limoges

Mme Sylvie Lebrun, Maître de conférences, Laboratoire Charles Fabry, Palaiseau

M. Philippe Adam, Responsable du domaine Photonique, DGA/MRIS, Bagneux

Licence CC BY-NC-ND 3.0

« Une centaine d'échecs ne seraient que de peu d'importance puisqu'il suffisait d'une seule réussite »
2001 : L'odyssée de l'espace, Arthur C. Clarke

A mon grand-père

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Remerciements

Mes premiers remerciements vont tout naturellement à mon directeur de thèse, Fetah Benabid ainsi qu'à Frédéric Gérôme qui a également participé à l'encadrement. Je les remercie de m'avoir choisi et accueilli au sein du GPPMM et de m'avoir dirigé pendant ces 4 ans. Ma progression pendant tout ce temps passé à Limoges, je la dois en très grande partie à vous et votre exigence.

Je remercie Ammar Hideur et Philippe Grelu d'avoir accepté de rapporter ces travaux, ainsi que Sylvie Lebrun de faire partie du jury et Vincent Kermene d'en être le président. Je remercie Philippe Adam d'avoir suivi mes travaux en tant que tuteur pour la DGA.

Je remercie bien sûr les autres membres de l'équipe, qu'ils soient du GPPMM et/ou de GLOphotonics : Matthieu, Martin, Fred, Alex, Thomas, Jonas, « p'tit » Ben, « grand » Ben, Quentin, Ando, Ali, Julie, Jérôme, Jean, Jean-Marc, Christine et Nadine. Mention spéciale à Foued pour son soutien très précieux ! Comment y serais-je arrivé sans toi et tout soutien indéfectible ? Je te dois une fière chandelle et, crois-moi, je saurai m'en souvenir. Je souhaite enfin bon courage aux « petits nouveaux » pour leurs débuts de thèse : Axel, Kostiantyn, Jim et Clément.

Je n'oublie pas les anciens membres de l'équipe que j'ai pu côtoyer également : Abhilash, Muhammad, Ximeng, Ekaterina, Assaad, Aurélien, Karim, Maxime, Mustafa et Aymeric (conjointement avec Eva ;)).

J'étends mes remerciements aux membres d'Xlim d'autres équipes que j'ai pu avoir le plaisir de côtoyer, en particulier Vincent Couderc et Marc Fabert avec qui j'ai pu collaborer régulièrement pour leur gentillesse et leur aide, ainsi que Philippe Roy pour son soutien.

Merci enfin à tous les doctorants, post-doctorants ou membres de l'association SigmaDocX avec lesquels j'ai partagé de bons moments, que ce soit au travers justement de notre association, de nos sorties ludiques, sportives ou bien encore festives. Je serai très heureux de vous recroiser à l'occasion, après tout, le monde de la photonique Française est encore relativement petit !

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Petit clin d'œil à mes collègues bénévoles pour Football Manager : Benjamin et Ludovic. Nos discussions fréquentes (sérieuses ou moins sérieuses) pendant les différentes phases de mise à jour de la base de données auront souvent été un véritable bol d'air pour moi pendant mes temps libres.

Je ne pouvais pas ne pas remercier mes amis les plus proches, certes éloignés géographiquement, mais dont le soutien m'aura été d'une grande aide : Jérémy, Audrey, Loïc, Clémentine, Julien LD, Lise, François, Antoine, Maxime, Aurélia, Vanessa, Benoît, Sylvain, Delphine, Lucie, Barbara, Amélie et Julien R. Quelle chance j'ai de faire partie d'un groupe aussi soudé ! Et merci à Yves que je connais presque depuis le berceau !

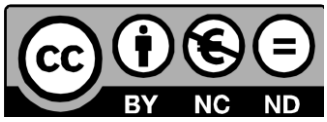
Ensuite, comment ne pas remercier ma famille ? Mes parents, pour les sacrifices qu'ils auront faits depuis plus de 20 ans afin que mes sœurs et moi puissions faire les études que nous voulions. On ne se dit pas souvent les choses (on n'est pas Bretons pour rien), mais cette thèse est aussi un peu la vôtre. Merci pour m'avoir toujours fait confiance dans mes choix sans jamais les discuter. Je pense pouvoir commencer à vous dire que vous avez bien fait. Merci justement à mes sœurs pour les « délires » (bien souvent accompagnés de Lewis, malgré lui !) qu'on a pu avoir à l'occasion de mes retours à la maison, c'est le genre de petits riens qui aèrent l'esprit et dont on a forcément besoin en 4 ans de stress intensif.

Enfin, je ne peux pas m'empêcher d'avoir une pensée pour mes grands-parents, eux qui m'ont toujours poussé à bien travailler et ce dès tout petit à l'école. Il y a fort à parier qu'ils y soient pour beaucoup, en particulier mon grand-père, dans le fait que mon cursus ait atteint ce niveau aujourd'hui. J'aurais d'ailleurs vraiment aimé qu'il soit là pour voir jusqu'où ses conseils et ses encouragements m'ont porté.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Droits d'auteurs

Cette création est mise à disposition selon le Contrat :
« **Attribution-Pas d'Utilisation Commerciale-Pas de modification 3.0 France** »
disponible en ligne : *http://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/3.0/fr/*



Licence CC BY-NC-ND 3.0

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Table des matières

Introduction générale 25
Chapitre I. Contexte scientifique et technologique 27
I.1. Introduction 28
I.2. La diffusion Raman stimulée 28
I.3. Les fibres creuses à gaine micro-structurée 30
I.4. Etat de l'art et applications 33
I.4.1. Les premières diffusions Raman stimulées dans le gaz 33
I.4.2. La diffusion Raman stimulée dans les fibres creuses remplies de gaz 33
I.4.3. Génération de peignes de fréquences Raman ultra-larges 34
I.4.4. Génération de peignes de fréquences Raman cohérents 37
I.4.5. Domaines d'applications ciblés 38
I.4.5.1. Réalisation de nouvelles sources laser 39
I.4.5.2. Synthèse d'ondes optiques 40
I.5. Présentation de la thèse 43
I.5.1. Objectifs 43
I.5.2. Présentation des chapitres 43
Chapitre II. Théorie de la diffusion Raman stimulée en régime impulsionnel 45
II.1. Introduction 46
II.2. La polarisation induite par effet Raman 48
II.2.1. Formalisme classique 48
II.2.2. Formalisme semi-classique 62
II.3. Equations de mouvement 66
II.4. Régime temporel d'amplification du Stokes 70
II.5. Description modale du champ Stokes 77
II.6. Diffusion Raman dans l'hydrogène 81
II.6.1. Transitions mises en jeu 81
II.6.2. Déphasage Raman 82
II.6.3. Coefficients de gain Raman correspondants 83
II.6.4. Effet de la polarisation 84
II.7. Résumé 85
Chapitre III. Fibres creuses à gaine micro-structurée 87
III.1. Introduction aux différents mécanismes de guidage 88
III.2. Les fibres à bande interdite photonique (BIP) 89
III.3. Les fibres à couplage inhibé (IC) 91
III.4. Présentation des fibres utilisées 99
III.5. Résumé 103
Chapitre IV. Dynamique spatio-temporelle de la cohérence Raman dans une fibre creuse . 105
IV.1. Introduction 106
IV.2. Travaux précédents 108
IV.3. Caractérisations de la cohérence Raman et de la différence de population 112
IV.3.1. Etude en fonction de la durée des impulsions 116

Licence CC BY-NC-ND 3.0

IV.3.2. Etude en fonction du gain 119
IV.3.3. Etude de la visibilité en fonction du délai 123
IV.3.4. Etude de la visibilité en fonction de la pression de gaz et de la puissance 127
IV.4. Résumé 129
Chapitre V. Seuil entre les régimes transitoire et spontané de la diffusion Raman stimulée 131
V.1. Introduction 132
V.2. Régime d'amplification et plage temporelle de la durée d'impulsion pour une DRS stimulée transitoire 133
V.3. Dispositif et protocole expérimental 136
V.4. Evolution du Stokes en fonction de $\Gamma\tau$ et G 139
V.5. Seuil d'énergie de la pompe en régimes spontané et transitoire 143
V.6. Intensité de l'émission spontané pour une DRS dans une fibre creuse 145
V.7. Résumé 146
Chapitre VI. Génération d'impulsions infrarouges ultra-courtes 147
VI.1. Introduction 148
VI.2. Montage expérimental 154
VI.3. Evolutions spectrale et temporelle de la source infrarouge 155
VI.4. Efficacité de conversion 169
VI.5. Résumé 174
Chapitre VII. Nouvelle source multi-octave à structure spectrale accordable 175
VII.1. Panorama des sources lasers à large spectre 176
VII.1.1. Supercontinuum 176
VII.1.2. Peignes de fréquences 177
VII.1.3. Résumé 177
VII.2. Montage expérimental 178
VII.3. D'un supercontinuum à un peigne de fréquences Raman 178
VII.4. Caractérisation systématique du spectre généré 180
VII.4.1. Etude réalisée en fonction de la durée des impulsions de pompe 180
VII.4.2. Etude réalisée en fonction de la puissance des impulsions de pompe 183
VII.5. Modélisation numérique 185
VII.6. Résumé 188
Chapitre VIII. Synthèse d'ondes optiques par voie de diffusion Raman stimulée transitoire 189
VIII.1. Les différentes techniques de synthèses d'ondes optiques 190
VIII.1.1. Génération d'harmonique d'ordre élevé 190
VIII.1.2. Raman impulsionnel 191
VIII.1.3. Modulation moléculaire 191
VIII.1.4. Diffusion Raman stimulée en régime transitoire dans les fibres creuses 192
VIII.1.5. Autres techniques en régime continu 193
VIII.2. Résultats précédents 194
VIII.3. Génération d'un peigne de fréquence ultra-large et cohérent par diffusion Raman stimulée à partir d'impulsions ultra-courtes 199
VIII.4. Profil temporel du peigne de fréquences : synthèse d'ondes 201

Licence CC BY-NC-ND 3.0

VIII.4.1. Structuration du spectre et du train d'impulsions par la polarisation 203
VIII.4.2. Structuration du spectre et du train d'impulsions par la puissance 207
VIII.5. Résumé 213
Conclusion générale et perspectives 215
Bibliographie 217
Contributions scientifiques 229

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Table des illustrations

Figure 1 : Diffusions possibles d'une molécule active Raman telle que l'eau (à gauche) lorsqu'un photon l'excite. La diffusion Rayleigh représente le cas dit « élastique » où il n'y a pas d'échange d'énergie entre le photon et la molécule. La diffusion Raman Stokes représente un cas dit « inélastique » où le photon cède une partie de son énergie à la molécule, le cas Anti-Stokes se produisant lorsque la molécule cède l'énergie acquise à un photon. Les niveaux d'énergie associés mis en jeu dans ces processus sont représentés à droite. 29

Figure 2 : Comparatif entre (a) la structure d'une fibre à saut d'indice [10], et (b) celle d'une fibre creuse micro-structurée (ici à maille Kagomé). 31

Figure 3 : Interaction lumière-matière dans une configuration en espace libre en comparaison d'une configuration utilisant une fibre creuse. Cette dernière configuration permet un confinement plus fort de la lumière et de la matière, et ceci sur de plus grandes longueurs, ce qui exacerbe les effets non-linéaires tels que l'effet Raman. 31

Figure 4 : Facteur de mérite en fonction du diamètre de cœur, pour un capillaire et les différents types de fibres creuses [11]. L'avantage par rapport à un capillaire est d'autant plus marqué que le diamètre du cœur est petit. 32

Figure 5 : (à gauche) Coupe transverse de la première fibre à maille Kagomé fabriquée, ainsi que les champs lointains des Stokes alors générés [14]. (à droite) Première efficacité de conversion à la limite quantique [17]. La puissance à la longueur d'onde de la pompe est convertie à la longueur d'onde du Stokes avec un écart de plus de 30 dB. 34

Figure 6 : (a) Peigne de fréquence ultra-large généré avec une polarisation de pompe linéaire et (b) sa lumière diffusée correspondante, (d) peigne de fréquence ultra-large généré avec une polarisation de pompe circulaire et (c) sa lumière diffusée correspondante [22]. Le peigne s'étend sur plus de 5 octaves. La génération des lignes en pointillés dans l'infrarouge est indirectement confirmée par l'observation de leurs lignes Anti-Stokes autour de 3 microns. 36

Figure 7 : Peigne de fréquences hybride généré dans du deutérium avec des lignes obtenues par effet Raman (en vert et bleu), et des lignes supplémentaires obtenues grâce à l'effet Kerr et au mélange à quatre ondes (en rouge) [24]. 37

Figure 8 : (en haut) Montage expérimental ayant permis de démontrer la cohérence intra-impulsionnelle par effet Raman stimulé, (en bas) spectre du peigne généré et franges d'interférences correspondantes, histogramme présentant la relation de phase entre le premier Stokes et le premier Anti-Stokes provenant d'une même impulsion [25]. 38

Figure 9 : Longueurs d'onde d'intérêt dans l'infrarouge (de 1 à 10 microns) et leurs domaines d'applications potentielles respectifs [26]. 39

Figure 10 : (à gauche) Peigne de fréquences dans le domaine spectral et (à droite) son train d'impulsions correspondant dans le domaine temporel. Plus le spectre est large et donc le nombre de composantes spectrales du peigne est élevé, plus les impulsions sont de courte durée [27]. 41

Figure 11 : (à gauche) Intensité et phase des différentes lignes d'un peigne de fréquences dans le domaine spectral et (à droite) son train d'impulsions correspondant dans le domaine temporel. Lorsque

Licence CC BY-NC-ND 3.0

l'on modifie la phase et l'intensité des lignes du peigne, alors la forme temporelle du signal est modifiée [27]. 42

Figure 12 : (a) Schéma classique de l'effet Raman basé sur le modèle de Lorentz, (b) diagramme quantique correspondant basé sur un système à 2 niveaux d'énergie. 49

Figure 13 : Indice effectif (en rouge) et indice de groupe (en bleu) en fonction de la longueur d'onde pour la fibre Kagomé utilisée dans les derniers chapitres de cette thèse et présentée en chapitre III. ... 54

Figure 14 : (a) Diagrammes quantiques de l'effet Kerr optique (b) des diffusions Raman et Brillouin stimulées (c) et de l'absorption à 2 photons. Les niveaux réels sont en trait continu et les niveaux virtuels en pointillés [31]. 58

Figure 15 : (a) Indice effectif du mode fondamental guidé HE_{11} en fonction de l'épaisseur t des ponts de silice. (b) indice effectif du milieu en fonction de t. Les différentes couleurs représentent les composantes spectrales (en bleu : la pompe, en orange : le Stokes et en vert : l'Anti-Stokes. (c) désaccord de phase en fonction du rayon interne du cœur de la fibre et de l'épaisseur des ponts t...... 61

Figure 16 : Gain du Stokes en fonction du désaccord de phase, tous deux normalisés par le coefficient de gain Raman en régime stationnaire. Les différentes couleurs représentent différentes susceptibilités non-résonantes (bleu : 0, orange : 0,2 et vert : 0,5). 62

Figure 17 : Intensité du Stokes normalisée en fonction de la durée d'impulsion de pompe τ elle-même normalisée par le déphasage Γ lié essentiellement à la pression du gaz, les différentes courbes représentent des situations relatives à différentes valeurs de gain net Raman G. On peut distinguer les trois régimes de la diffusion Raman (spontané, transitoire et permanent), dont les frontières sont définies par des durées d'impulsions « limites » τ_1 et τ_2 [26]. 71

Figure 18 : Cartographie des différents régimes d'amplification Raman, en fonction de la durée de l'impulsion de pompe τ normalisée par le déphasage Γ, et du gain net Raman en régime stationnaire. Plus ce gain est fort, plus le régime transitoire est étendu à une plage large de durées d'impulsion possibles. En particulier ici pour Γ = 1 GHz, le régime transitoire est cantonné à des impulsions nanosecondes pour des gains faibles mais s'étend à des impulsions de durée inférieure à la picoseconde à partir d'un gain de 10 000. La bande jaune, représentant ici des gains nets allant de 20 à 30, représente le gain net au seuil de l'effet Raman, lorsque le Stokes sort du bruit. 72

Figure 19 : Présentation des différents régimes Raman impulsionnels, des conditions pour lesquelles ils sont valides, et de leur conséquence sur la génération et la cohérence de l'onde Stokes résultante.. 74

Figure 20 : Evolution de l'énergie du Stokes et des trois différents régimes de diffusion Raman stimulée : le régime transitoire, le régime stationnaire et le régime spontané en fonction de la durée d'impulsion du laser de pompe. Evolution calculée pour une fibre creuse de 15 m, de 10 µm de diamètre de cœur, avec des pertes de 60 dB/km, remplie de 12 bars de H_2 et pompée à 1064 nm [27]. 77

Figure 21 : (a) Ratios des différentes valeurs propres λ_i par rapport à λ_1 en fonction du produit du gain net Raman avec la durée d'impulsions normalisée. Ces ratios chutent rapidement avec le gain, montrant ainsi la favorisation de l'amplification d'un mode par rapport aux autres. (b) écart entre les valeurs propres λ_1 et λ_2 en fonction, là aussi, du même produit. Comme cité dans le texte, un écart de 30 dB est obtenu pour un gain d'environ 3 000. 80

Figure 22 : Représentation schématique des niveaux d'énergie accessibles par effet Raman lors de l'excitation d'une molécule d'hydrogène. Les 2 principales résonances, une vibrationnelle avec un

Licence CC BY-NC-ND 3.0

décalage de 125 THz et l'autre rotationnelle avec un décalage de 17,6 THz, sont très éloignées des transitions électroniques. 81

Figure 23 : (a) Gain Raman en fonction de la pression de gaz dans la fibre pour les transitions vibrationnelle (rouge) et rotationnelle (vert), (b) gain Raman pour la transition rotationnelle en fonction de la longueur d'onde de pompe [26]. 84

Figure 24 : Contenu modal des différents types de fibres optiques classées par mécanisme de guidage. RTI : Réflexion Totale Interne, BIP : Bande Interdite Photonique, IC : Couplage Inhibé [11]...... 88

Figure 25 : Analogie entre le modèle des états liés en physique du solide et sa structure de bandes électroniques (à gauche) et le modèle des états liés en photonique et sa structure de modes autorisés et interdits (à droite). 90

Figure 26 : Densité d'états photoniques représentative d'une fibre à bande interdite photonique. En haut à droite : maille formant le réseau de la gaine cristalline. 91

Figure 27 : Densité d'états photoniques représentatives d'une fibre à maille Kagomé (à gauche) et d'une fibre à maille tubulaire (à droite). En haut à droite de chaque diagramme est présenté la maille élémentaire de la structure de la gaine. 92

Figure 28 : Représentation schématique d'un état lié dans un continuum...... 94

Figure 29 : (a) Mode de cœur, (b) modes de gaine, et leur désaccord de phase transverse (au centre) pour une fibre guidant par mécanisme de couplage inhibé. 94

Figure 30 : Démonstration de l'amélioration du guidage dans une fibre Kagomé grâce à une structure hypocycloïdale. (a) Fibre Kagomé originelle avec le contour du mode qui épouse le contour du cœur et donc la totalité de la structure de silice, incluant de nombreux nœuds. (b) Fibre Kagomé à cœur hypocycloïdal dont le mode est mieux confiné. (c) Définition du paramètre b caractérisant la courbure des grandes arches de la structure hypocycloïdale. 95

Figure 31 : (a) Evolution des pertes par confinement en fonction du paramètre b. (b) Evolution de la structure de la fibre en fonction de ce même paramètre b. (c) Evolution des pertes par transmission à 1 µm (en rouge) et à 500 nm (en bleu). La bande de fortes pertes en (a) due aux résonances avec le milieu apparait à 700 nm [11]...... 97

Figure 32 : Evolution des pertes en fonction de la longueur d'onde, pour différentes structures hypocycloïdales (différents paramètres b et épaisseurs des ponts t). Les pertes diminuent avec l'augmentation du paramètre b, et les bandes se décalent vers l'infrarouge avec une épaisseur de pont croissante [60]. 98

Figure 33 : Coupe transversale de la fibre au microscope (en haut à gauche). Contenu modal à 1064 nm (en bas à gauche). Spectres de transmission et pertes (respectivement en haut à droite et en bas) de la fibre à BIP utilisée pour l'étude de la dynamique de la cohérence Stokes inter-impulsionnelle. 100

Figure 34 : Transmission et dispersion de la fibre à BIP, en fonction de la longueur d'onde. La valeur de cette dernière à 1064 nm est de -91 ps/nm/km. 101

Figure 35 : Coupe transversale de la fibre au microscope (en haut à gauche). Contenu modal à 1030 nm (en bas à gauche). Spectres de transmission et pertes (respectivement en haut à droite et en bas) de la fibre Kagomé utilisée dans la seconde partie de cette thèse...... 102

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Figure 36 : Indice effectif et GVD de la fibre Kagomé utilisée au cours de cette thèse en fonction de la longueur d'onde. 103

Figure 37 : (a) Montage expérimental, λ/2 : lame demi-onde, PBS : cube séparateur polarisé, M : miroir, PM : puissance-mètre, PD1 : photo-détecteur 1, PD2 : photo-détecteur 2. (b) Intensité du Stokes généré par la sonde en fonction du délai entre la pompe et la sonde. La courbe rouge représente l'ajustement expérimental exp(-0,14τ). La courbe verte l'ajustement expérimental pour le déphasage exp(-2Γτ) (avec Γ~2 GHz) du Raman rotationnel à une pression de 10 bars [86], [87]. 109

Figure 38 : (a) Cohérence Raman calculée (en bleu), et différence de population entre l'état rotationnel excité et l'état fondamental, exprimé en D+1 (courbe rouge) en fonction du temps, lorsque le milieu est excité par une impulsion de pompe et une sonde séparées d'un délai de 12 ns. (b) énergie du Stokes le long de la fibre, pour différents délais entre la pompe et la sonde. (c) fraction d'énergie du Stokes par rapport à toute l'énergie venant de l'impulsion de pompe, pour des longueurs de propagation de 2 m (en rouge) et 80 cm (en vert) [87]. 111

Figure 39 : Cartographies spatio-temporelles (a) de la cohérence Raman et (b) de la différence de population (D+1) en fonction du délai après le passage de l'impulsion de pompe (en ns) et de la coordonnée spatiale au sein de la fibre (en m). 114

Figure 40 : Evolution de la cohérence et de la différence de population (a) en fonction du temps et pour une position donnée dans le milieu Raman (ici la sortie des 4 mètres de fibre), et (b) en fonction de la position dans le milieu Raman après le passage de l'impulsion. 115

Figure 41 : (a) Evolution de la cohérence Raman le long du milieu, après le passage de l'impulsion. (b) Evolution de la différence de population le long du milieu, après le passage de l'impulsion. Différentes durées d'impulsions sont testées, de 1 ps à 1 ns. 117

Figure 42 : (Colonne de gauche) valeur maximale de cohérence et sa position le long du milieu Raman en fonction de la durée d'impulsion. (Colonne de droite) valeur maximale de la différence de population et sa position le long du milieu Raman en fonction de la durée d'impulsion. Différents gains sont testés. 118

Figure 43 : (a) Evolution de la cohérence Raman le long du milieu, après le passage de l'impulsion. (b) Evolution de la différence de population le long du milieu, après le passage de l'impulsion. Différents gains nets sont testés, de 100 à 100 000. 120

Figure 44 : (Colonne de gauche) valeur maximale de cohérence et sa position le long du milieu Raman en fonction du gain net. (Colonne de droite) valeur maximale de la différence de population et sa position le long du milieu Raman en fonction du gain net. Différentes durées d'impulsions sont testées. 121

Figure 45 : (a) Evolution de la cohérence Raman en fonction du temps et pour une position donnée dans le milieu Raman (ici la sortie des 4 mètres de fibre) (b) Evolution de la différence de population. Différents gains nets en régime stationnaire sont testés, de 100 à 100 000. 122

Figure 46 : Schéma du montage expérimental interférométrique utilisé pour la mesure de la visibilité du Stokes. En insert : exemple de franges d'interférences observées. 123

Figure 47 : (a) Exemple typique de franges d'interférences observées entre deux Stokes générés par deux impulsions de pompe consécutives, (b) extraction de la visibilité. (c) ensemble de visibilités et (d) de phases mesurées pour un délai donné de 27,93 ns. 125

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Figure 48 : Visibilité des franges d'interférences en fonction du délai entre les impulsions Stokes générées dans la fibre. 125

Figure 49 : Variance de la phase normalisée tracée en fonction du délai entre les impulsions, lui-même normalisé par Γ. En pointillés est tracée la gigue propre au laser lui-même. 126

Figure 50 : Visibilité du Stokes en fonction de la puissance moyenne injectée dans la fibre à BIP, pour différentes pressions d'hydrogène à l'intérieur de cette dernière. 127

Figure 51 : Les différents régimes Raman délimités par les valeurs de τ_1 et τ_2 en fonction du gain G_{SS}. 135

Figure 52 : Intensité du Stokes normalisée en fonction de la durée d'impulsion de pompe normalisée pour différentes valeurs de gain. La droite noire en pointillés représente les différentes durées d'impulsions (en fonction du gain) pour lesquelles on passe du régime spontané au régime transitoire. La zone délimitée par les pointillés rouges représente la gamme de durées d'impulsions accessibles avec le laser de pompe à disposition. 136

Figure 53 : Evolution de l'énergie et de la puissance moyenne du laser Tangerine HP en fonction du taux de répétition choisi (données fournies par Amplitude Systèmes). 137

Figure 54 : Traces temporelles et spectrales mesurées à la sortie du laser Tangerine HP pour des durées d'impulsions demandées de 250 fs et 10 ps. 137

Figure 55 : Schéma du montage expérimental, OSA 1 : 350 nm – 1750 nm, OSA 2 : 1500 nm – 3400 nm, F1 : passe-haut 1650 nm, F2 : passe-bas 1150 nm, P1 : photodiode pour le Stokes, P2 ; photodiode pour la pompe. 138

Figure 56 : Bandes de transmission de la fibre centrées à la fois sur la pompe à 1030 nm, et sur le premier Stokes vibrationnel à 1,8 µm. 139

Figure 57 : Spectre optique montrant la raie de la pompe à 1030 nm et le premier Stokes vibrationnel à 1,8 µm au seuil. 139

Figure 58 : Evolution expérimentale du signal Stokes détecté en fonction de Γτ pour différentes valeurs de gain. 140

Figure 59 : Evolution de la puissance en µW en fonction de la puissance en Volts détectée par le photodétecteur. 141

Figure 60 : Evolution expérimentale de l'intensité du Stokes en fonction de Γτ pour différentes valeurs de gain. 142

Figure 61 : Evolution de l'intensité du Stokes et de son ajustement en fonction de Γτ pour différentes valeurs de gain. Les résultats expérimentaux (en pointillés) sont en bon accord avec les résultats théoriques (en trait plein). Les points d'inflexion de chaque courbe sont reliés pour donner une droite séparant le régime spontané du régime transitoire. Celle-ci permet de remonter à la valeur de τ_1 dans chaque cas. 143

Figure 62 : Energie par impulsion de pompe nécessaire pour se placer en régime transitoire, en fonction de la durée d'impulsion τ. Les points représentent les résultats expérimentaux et les traits pleins les résultats théoriques pris pour différentes valeurs de gain net Raman au seuil G_{th} (14, 15 et 16). Les résultats expérimentaux sont en accord avec une valeur de 15 qui est communément reprise dans la littérature (entre 15 et 30 selon les cas). 144

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Figure 63 : Domaines d'applications des sources IR ultra-rapides, classées en fonction de leur intérêt pour les particularités spectrales ou temporelles de ces sources [90]. 148

Figure 64 : Différentes sources lasers dans l'infrarouge et leurs plages en longueur d'onde, la bande rouge située entre environ 1 et 2 µm représente la gamme spectrale qui nous intéresse dans ce chapitre [91]. 149

Figure 65 : Graphique permettant de comparer les différentes technologies de génération d'impulsions IR entre approximativement 1,5 et 2 µm en termes de durées d'impulsions et de puissance moyenne. 152

Figure 66 : (à gauche) Puissance du Stokes émis à 1800 nm en fonction de la puissance de la pompe injectée dans la fibre (en insert : champ proche du Stokes à la puissance maximale), (à droite) spectre normalisé obtenu en sortie de fibre (1 mètre de longueur et 24 bars d'hydrogène) [26]. 153

Figure 67 : Montage expérimental de génération d'impulsions à 1,8 µm par effet Raman stimulé dans une fibre creuse remplie de gaz. 154

Figure 68 : (a) Trace temporelle du Stokes pour une longueur de fibre de 3 m, une durée d'impulsion pompe de 10 ps et une puissance injectée dans la fibre de 10 W. (b) Spectre correspondant, avec la pompe à 1030 nm et le Stokes à 1800 nm. 154

Figure 69 : (a) Traces d'autocorrélation pour une longueur de fibre de 3 m et des impulsions de pompe de 5 ps mesurées pour différentes puissances de pompe, en (b) les spectres correspondants. En (c), la durée du Stokes en fonction de la puissance de pompe et en (d), cartographie regroupant les spectres mesurés en (b). 156

Figure 70 : (a) Traces d'autocorrélation pour une longueur de fibre de 3 m et des impulsions de pompe de 1 ps mesurées pour différentes puissances de pompe, en (b) les spectres correspondants. En (c), la durée du Stokes en fonction de la puissance de pompe et en (d), cartographie regroupant les spectres mesurés en (b). 159

Figure 71 : (a) Traces d'autocorrélation pour une longueur de fibre de 1 m et des impulsions de pompe de 5 ps mesurées pour différentes puissances de pompe, en (b) les spectres correspondants. En (c), la durée du Stokes en fonction de la puissance de pompe et en (d), cartographie regroupant les spectres mesurés en (b). 160

Figure 72 : (a) Traces d'autocorrélation pour une longueur de fibre de 1 m et des impulsions de pompe de 1 ps mesurées pour différentes puissances de pompe, en (b) les spectres correspondants. En (c), la durée du Stokes en fonction de la puissance de pompe et en (d), cartographie regroupant les spectres mesurés en (b). 162

Figure 73 : (a) Traces d'autocorrélation pour une longueur de fibre de 50 cm et des impulsions de pompe de 5 ps mesurées pour différentes puissances de pompe, en (b) les spectres correspondants. En (c), la durée du Stokes en fonction de la puissance de pompe et en (d), cartographie regroupant les spectres mesurés en (b). 164

Figure 74 : (a) Traces d'autocorrélation pour une longueur de fibre de 50 cm et des impulsions de pompe de 1 ps mesurées pour différentes puissances de pompe, en (b) les spectres correspondants. En (c), la durée du Stokes en fonction de la puissance de pompe et en (d), cartographie regroupant les spectres mesurés en (b). 165

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Figure 75 : Durée du Stokes en fonction de la puissance de la pompe, pour différentes durées d'impulsions de pompe. Les différentes couleurs représentent différentes longueurs de fibre. 167

Figure 76 : (colonne de gauche) Durée du Stokes en fonction de la puissance de la pompe, pour différentes puissances injectées dans la fibre. (Colonne de droite) Durée du Stokes en fonction de la puissance de la pompe et de la durée des impulsions de pompe. 168

Figure 77 : Efficacités de conversion de l'énergie de la pompe vers le premier Stokes vibrationnel pour les différentes longueurs de fibre et les différentes durées d'impulsions de la pompe testées dans ce chapitre. 171

Figure 78 : (Colonne de gauche) Puissance du Stokes en fonction de la puissance de la pompe, pour différentes durées d'impulsions de pompe. (Colonne de droite) Puissance du Stokes en fonction de la puissance de la pompe et de la durée des impulsions de pompe. 173

Figure 79 : Schéma du montage expérimental utilisé ici. La lumière blanche sortant de la fibre remplie de gaz, que ce soit sous forme d'un supercontinuum ou d'un peigne de fréquences, est analysée spectralement par différents appareils. 178

Figure 80 : (en bas) Une première étude du spectre de sortie est réalisée à l'aide d'un réseau optique placé à la sortie du milieu actif. Les différentes composantes spectrales sont alors dirigées vers un écran pour observation. (en haut) Spectre obtenu en sortie de fibre après avoir dispersé la lumière avec un réseau. Différents cas, obtenus avec différentes durées d'impulsions de pompe, sont superposés. On voit bien la transition d'un peigne de fréquences vers un supercontinuum. Dans cet exemple, la puissance injectée dans la fibre est de 10 W. 179

Figure 81 : Le spectre étant très dépendant des conditions expérimentales, la fibre s'illumine elle-même de couleurs différentes lorsque ces conditions changent. La puissance d'entrée dans la fibre est de 3 W. 180

Figure 82 : Transition (au centre) d'un spectre de supercontinuum obtenu avec des impulsions de durée égale à 250 fs (en bas) vers un spectre de peigne de fréquences obtenue avec des impulsions de durée égale à 10 ps (en haut). La puissance moyenne du faisceau de pompe est de 15 W. Le spectre total s'étend sur trois octaves, de 370 nm à 2,5 µm. 181

Figure 83 : Pour une puissance donnée (ici 15 W), la transition d'un peigne de fréquences vers un supercontinuum apparait à de plus grandes durées d'impulsions avec l'augmentation de la longueur d'onde. De manière qualitative, la hauteur des lobes en pointillés blancs entourant les continuums n'est pas la même en fonction de la longueur d'onde. 182

Figure 84 : Transition (au centre de chaque graphe) d'un spectre obtenu avec des impulsions de puissance égale à 300 mW (en bas) vers un spectre obtenu avec des impulsions de puissance égale à 15 W (en haut). La durée des impulsions de pompe est de 1 ps pour la carte du haut et de 10 ps pour la carte du bas. 184

Figure 85 : Graphique montrant l'évolution de log R (rapport du gain Kerr sur le gain Raman) en fonction des paramètres d'entrée que sont la durée et la puissance des impulsions de pompe. Les zones en bleu et blanc représentent la domination de l'effet Raman où un peigne de fréquence sera généré, et celles en jaune et orange la domination de l'effet Kerr conduisant à la génération d'un supercontinuum. 187

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Figure 86 : (a) Spectre schématique caractéristique obtenu par HHG, reconnaissable par son plateau, (b) modèle en 3 étapes : 1) l'électron est dans son potentiel atomique, 2) le laser influe sur le potentiel atomique permettant à l'électron de fuir par effet tunnel, 3) il est accéléré par le champ du laser et émet une radiation dans l'UV ou les rayons X par recombinaison avec un atome du milieu. 190

Figure 87 : (a) Peigne généré par modulation moléculaire avec des impulsions femtosecondes [133]*, (b) et démonstration de synthèse d'ondes* [134] 192

Figure 88 : (a) Exemple de micro-résonateur, (b) et le type de peignes de fréquences qu'il est capable de produire [124] 193

Figure 89 : (a) Schéma expérimental de la première synthèse d'ondes par effet Raman stimulé dans une fibre creuse remplie de gaz. (b) Peigne SFG dispersé sur un écran noir pour distinguer les différentes composantes avec le spectre mesuré correspondant, ainsi que la phase relative de chaque ligne et le contraste. (c) Trace d'autocorrélation expérimentale du train d'impulsions fs. (en rouge) profil reconstruit numériquement basé sur la phase du peigne et sur la supposition que toutes les lignes partagent la même intensité [87] 195

Figure 90 : Schéma du montage expérimental de la synthèse d'ondes optiques, avec notamment le FROG pour la détection du train d'impulsions femtosecondes. 200

Figure 91 : Exemple de peigne Raman ultra-large généré par diffusion Raman stimulée dans une fibre à cœur creux remplie d'hydrogène. Celui-ci s'étend sur 3 octaves. La zone entourée de pointillés jaunes représente la zone de travail du FROG. En insert en haut à droite : fibre rayonnant la lumière blanche et spectre correspondant dispersé par un réseau et visible grâce à un écran noir. 201

Figure 92 : Exemple typique de spectrogramme FROG mesuré (a) et retrouvé (b). 201

Figure 93 : (a) Spectre en sortie de fibre reconstruit par le FROG (magenta) et reconstruit par notre programme (bleu), (b) spectrogramme FROG, (c) trace d'autocorrélation du FROG (magenta) et trace d'autocorrélation reconstruite par notre programme (bleu), (d) trace temporelle donnée par notre programme et représentant le train d'impulsion qu'il est supposé d'obtenir dans ces conditions. 202

Figure 94 : Exemple de train d'impulsions femtosecondes obtenu dans le cas d'une polarisation linéaire du faisceau de pompe. En bleu : trace d'autoccorélation. En vert : trace temporelle. L'espacement inter-impulsions est de 8 fs. La durée des impulsions du train a été mesurée inférieure à 5 ps. En rouge : spectre correspondant en sortie de fibre possédant un espacement de 125 THz entre chaque ligne. 204

Figure 95 : Exemple de train d'impulsions femtosecondes obtenu dans le cas d'une polarisation circulaire du faisceau de pompe. En bleu : trace d'autoccorélation. En vert : trace temporelle. L'espacement inter-impulsions est de 57 fs. La durée des impulsions du train a été mesurée à 15 ps. En rouge : spectre correspondant en sortie de fibre possédant un espacement de 17,6 THz entre chaque ligne. 206

Figure 96 : Spectrogrammes FROG mesurés à différentes puissances, pour une polarisation circulaire des impulsions de pompe. 209

Figure 97 : Traces d'autocorrélation (en bleu) et traces temporelles correspondantes (en vert), pour différentes puissances moyennes de pompe avec une polarisation circulaire. Le contraste augmente avec la puissance. 210

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Figure 98 : Spectrogrammes FROG mesurés à différentes puissances, pour une polarisation linéaire des impulsions de pompe. 211

Figure 99 : Traces d'autocorrélation (en bleu) et traces temporelles correspondantes (en vert), pour différentes puissances moyennes de pompe avec une polarisation linéaire. Le contraste augmente avec la puissance mais deux trains se superposent. 212

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Table des tableaux

Tableau 1 : Gain et décalages Raman pour différentes espèces gazeuses. 53

Tableau 2 : Dépendance du gain Raman en fonction de la polarisation de l'onde de pompe et celle de l'onde Stokes. 85

Tableau 3 : Bref historique des fibres creuses micro-structurées. L'accent est porté ici sur la découverte de chaque mécanisme de guidage, de la première fabrication de chaque fibre et de leurs records actuels de pertes (sans considération de longueur d'onde). 99

Tableau 4 : Résumé des différentes caractéristiques optiques de chaque technologie destinée à la génération de spectres larges. 177

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Introduction générale

Depuis l'avènement du laser dans les années 60, de très nombreux progrès basés sur cette technologie profitant d'une cohérence spatiale et temporelle ont pu être réalisés. Parmi ces progrès nous pouvons citer de manière non-exhaustive : les télécommunications par fibre optique, la lecture et l'enregistrement de supports optiques numériques (CD, DVD, etc…), la métrologie, la transmission d'énergie sans fil, la découpe de matériaux ou encore l'amélioration des opérations dentaires et ophtalmologiques.

Aujourd'hui, et malgré toutes les possibilités déjà offertes par les lasers, le potentiel reste énorme. Au niveau de la recherche fondamentale, il existe un intérêt certain pour la génération d'impulsions toujours plus courtes, en particulier afin de pouvoir sonder et étudier de manière toujours plus précise la dynamique de la matière.

Au niveau purement technologique, de nombreux secteurs comme l'industrie ou l'armement présentent des besoins en termes de longueurs d'onde ou de puissance par exemple. Ainsi, parvenir à proposer de nouvelles sources dans l'infrarouge serait bénéfique en vue d'atteindre les bandes d'absorption de très nombreuses molécules, en particulier les molécules dites « du vivant ». Mais les besoins ne se limitent pas au domaine spectral infrarouge uniquement, et il reste important de proposer de nouvelles sources (impulsionnelles ou continues) dans tout le domaine spectral optique.

La photonique peut également permettre d'améliorer des technologies déjà existantes. Les ordinateurs actuels, basés sur l'électronique, atteignent en effet leurs limites de performances. Des recherches sont ainsi menées sur la possibilité de réaliser un ordinateur basé non-plus sur l'électron mais sur le photon. La fréquence de calcul de tels appareils serait supérieure à la technologie actuelle (l'optique se situe dans le domaine THz du spectre électromagnétique, donc bien au-dessus du domaine GHz de l'électronique).

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Mes travaux de thèse viennent se placer dans ce contexte. En effet, en se basant sur la diffusion Raman stimulée (DRS) en régime transitoire dans des fibres creuses remplies de gaz, il est possible d'adresser un certain nombre des revendications ci-dessus. La génération de peignes de fréquence (ou de supercontinuum) sur un large spectre permet d'atteindre de très nombreuses longueurs d'onde et ainsi de proposer de nouvelles sources, par exemple dans l'infrarouge. Il est également possible, dans des conditions favorables développées dans ce mémoire, de synthétiser des trains d'impulsions ultra-courts. Ceci ouvre la voie à la synthèse d'ondes de formes universelles (ondes en créneau, en triangle, etc…) en vue de parvenir à un générateur de fonctions optique. Un tel dispositif serait un élément de base d'un ordinateur photonique, en particulier pour son processeur.

Ce sont autour de ces différents résultats que vient s'articuler la structure de cette thèse. Après trois premiers chapitres introductifs traitant respectivement du contexte, de la théorie de l'effet Raman, et des fibres creuses, les cinq suivants seront tous en lien avec un résultat : la cohérence inter-impulsionnelle par effet Raman, l'étude du seuil entre les régimes spontané et transitoire, la génération d'impulsions infrarouges ultra-courtes, la génération de peignes ou de supercontinuum ultra-larges, et enfin la synthèse d'ondes.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

CHAPITRE I

Contexte scientifique et technologique

Le premier chapitre a pour but de présenter un panorama des éléments principaux s'inscrivant dans le cadre de mes travaux de recherche à savoir la technologie des fibres creuses et l'effet Raman stimulé. Ainsi, nous verrons tout d'abord pourquoi ces guides d'onde photoniques sont un moyen privilégié pour la génération d'effets non-linéaires. Puis nous dresserons l'état de l'art de l'effet Raman stimulé dans ces fibres, en particulier la génération de peignes de fréquences larges et cohérents sera détaillée. Enfin, ce point sera mis en perspective avec la synthèse d'ondes optiques qui est l'objectif principal de cette thèse. La dernière section sera une présentation des objectifs et des différents chapitres constituant ce mémoire.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

I.1. Introduction

Aujourd'hui, il est reconnu que les performances des ordinateurs conventionnels convergent vers une limite. Ainsi, depuis les années 1960, le nombre de transistors gravés sur les microprocesseurs suivait de près la loi de Moore prédisant un doublement de leur nombre tous les deux ans. Or il n'est pas possible de diminuer la taille de ces derniers en-dessous de 2 ou 3 nanomètres car à cette échelle les électrons commencent à avoir un comportement quantique, ce qui a des conséquences désastreuses sur la fiabilité des processeurs. De plus, les électrons se déplaçant toujours plus vite sur des puces de plus en plus petites, la question de la thermique est aussi un problème. C'est pourquoi la vitesse d'horloge se trouve limitée et qu'un moyen de pallier à ce phénomène a consisté tout simplement à multiplier le nombre de processeurs. En parallèle, d'autres voies sont à l'étude pour améliorer les performances de calcul des ordinateurs : l'ordinateur quantique par exemple, ou bien encore l'ordinateur optique. Dans ce contexte, mes travaux de thèse auront pour but en particulier de poser des jalons en vue de la réalisation d'un générateur de fonctions optique. Cet outil sera essentiel à la réalisation de processeurs optiques, le processeur étant le composant central de la puissance de calcul d'un ordinateur. Pour parvenir à un tel générateur de fonctions, la voie choisie ici est la synthèse d'ondes optiques. Pour ce faire, la solution proposée dans le cadre de ma thèse sera de générer des peignes de fréquence larges et cohérents grâce à l'effet Raman stimulé en régime transitoire dans des fibres creuses remplies de gaz.

I.2. La diffusion Raman stimulée

En optique, les effets non-linéaires permettent par exemple de modifier la longueur d'onde d'un faisceau lorsque celui-ci excite un matériau avec une intensité suffisante. Un des phénomènes les plus connus est la diffusion Raman, observée pour la première fois en 1928 par C.V. Raman et son étudiant K. S. Krishnan dans un liquide [1], bien que déjà prédit théoriquement en 1923 par Smekal [2]. Il est possible d'expliquer l'effet Raman d'un point de vue de la physique classique aussi bien que de la physique quantique. Si l'on considère cette dernière, l'exemple le plus basique possible d'interaction lumière-matière repose sur la rencontre entre un photon et une molécule

Licence CC BY-NC-ND 3.0

(ou un atome) par le biais de ses électrons : soit le photon cède une partie de son énergie à la molécule résultant en un photon de moindre énergie et de plus grande longueur d'onde (photon Stokes), soit c'est la molécule qui cède de l'énergie au photon incident, résultant en un photon d'énergie supérieure et de longueur d'onde plus courte (photon Anti-Stokes). La diffusion Raman est un cas de diffusion inélastique où la lumière et la matière échangent de l'énergie. Dans le cas où il n'y a pas d'échange d'énergie, la diffusion est élastique (diffusion Rayleigh). Tout ceci est illustré par la *Figure 1*.

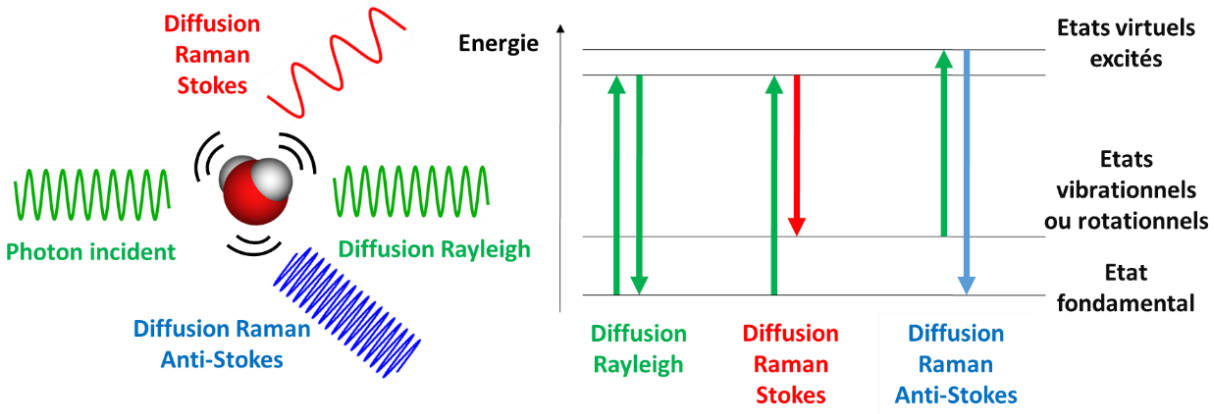


Figure 1 : Diffusions possibles d'une molécule active Raman telle que l'eau (à gauche) lorsqu'un photon l'excite. La diffusion Rayleigh représente le cas dit « élastique » où il n'y a pas d'échange d'énergie entre le photon et la molécule. La diffusion Raman Stokes représente un cas dit « inélastique » où le photon cède une partie de son énergie à la molécule, le cas Anti-Stokes se produisant lorsque la molécule cède l'énergie acquise à un photon. Les niveaux d'énergie associés mis en jeu dans ces processus sont représentés à droite.

En régime spontané seulement 1 photon sur 1 million est diffusé, de plus il peut l'être dans toutes les directions de l'espace. Pour augmenter l'efficacité de diffusion (ce qui a été l'objet de nombreuses recherches) il convient de se placer en régime stimulé, ce qu'il est possible de faire en utilisant des faisceaux lasers intenses. Dans ce régime la diffusion est limitée à un cône étroit dans la direction de propagation du faisceau incident (ainsi que dans la direction contraire). La première diffusion Raman stimulé a été réalisée en 1962 par Woodbury et Ng à l'aide d'un laser à rubis dans du nitrobenzène, et identifié la même année par Eckhardt *et al.* [3]. Nous nous focaliserons dans ce manuscrit à la diffusion Raman stimulée dans le gaz.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

I.3. Les fibres creuses à gaine micro-structurée

La fibre optique est une des découvertes majeures du siècle dernier, conduisant le monde à une véritable révolution sur le plan technologique, en particulier dans les télécommunications. Bien que le principe de guider de la lumière dans un guide d'onde fût connu depuis l'expérience du jet d'eau de D. Colladon en 1841 [4], il aura fallu attendre 1969 pour que C. Kao et M. W. Jones atteignent des niveaux de pertes raisonnables dans la silice (4 dB/km) [5] et pour que des fibres optiques basées sur ce matériau soient considérées comme des guides d'ondes crédibles. Quelques années plus tard, en 1978, une équipe du laboratoire NTT (Nippon Telegraph and Telephone) réalise la première fibre monomode avec des pertes à 0,2 dB/km à 1550 nm [6], longueur d'onde standard en télécommunications. Cette technologie a donc dû attendre un certain niveau de maturation avant de la voir déployée à l'échelle mondiale. De plus, sans l'avènement du laser découvert par Maiman en 1960 [7], toute tentative de communication par fibre optique aurait été vaine.

Les fibres optiques, telles qu'elles sont alors conçues, sont composées de deux parties en verre extrêmement pur : le cœur et la gaine, d'indices de réfraction n différents, celui du cœur étant supérieur à celui de la gaine de manière à permettre un guidage de la lumière par réflexion totale interne (RTI, ou TIR pour l'anglais Total Internal Reflection). La lumière est donc "prisonnière" du cœur d'indice supérieur et est perpétuellement réfléchie aux interfaces entre ce dernier et la gaine qui l'entoure. Guider la lumière dans un cœur de verre impose certaines limitations : des pertes lors de la propagation, l'apparition d'effets non-linéaires (voire thermiques) à haute puissance, ou encore la dispersion chromatique. Ceci limite notamment la puissance que ces fibres sont capables de supporter sans subir de dommages. De plus, la limite fondamentale de la diffusion Rayleigh dans la silice est aujourd'hui atteinte et il devient très difficile d'améliorer encore les pertes, ou alors de façon incrémentale avec la valeur de 0,1419 dB/km à 1560 nm en 2017 [8]. Enfin, la silice n'est « réellement » transparente que de 400 nm à 3 µm [9].

Une manière de contourner toutes ces limites, imposées par le matériau lui-même, est de guider la lumière dans un cœur creux. Celui-ci ne serait donc composé que d'air ambiant. La conséquence immédiate est un changement de paradigme, le mécanisme

Licence CC BY-NC-ND 3.0

de guidage devenant nécessairement différent puisque l'indice de réfraction de la gaine sera supérieur à celui du cœur composé d'air. Il ne peut donc plus y avoir de guidage par réflexion totale interne. Plusieurs pistes ont été étudiées pour parvenir à guider de la lumière dans un cœur creux. Ces différentes voies seront détaillées dans le Chapitre III.

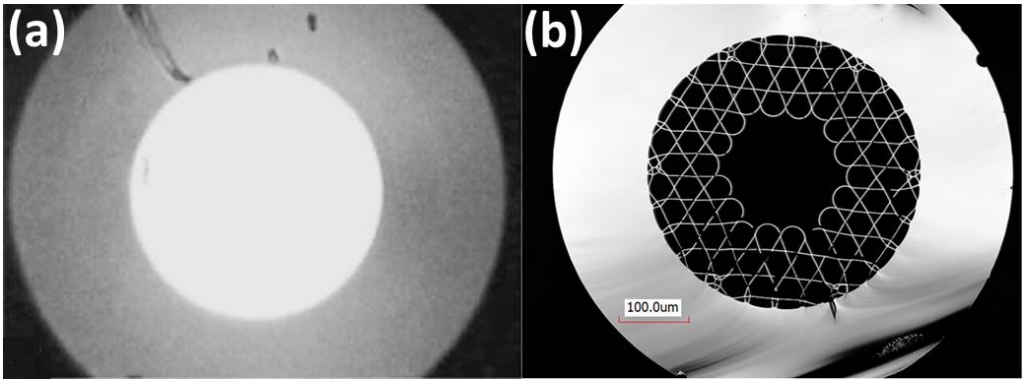


Figure 2 : Comparatif entre (a) la structure d'une fibre à saut d'indice [10], et (b) celle d'une fibre creuse micro-structurée (ici à maille Kagomé).

De plus, l'intérêt d'utiliser ces fibres optiques à cœur creux en tant qu'outil non-linéaire est très vite apparu. En effet, contrairement aux fibres conventionnelles, leur cœur étant vide il est possible de le remplir de matière. Il peut s'agir d'un liquide ou d'un gaz non-linéaire, voire d'un plasma. Ainsi la lumière et la matière, piégées dans un cœur de dimensions micrométriques, vont voir leur interaction exacerbée. Ce phénomène est illustré par la *Figure 3* ci-dessous :

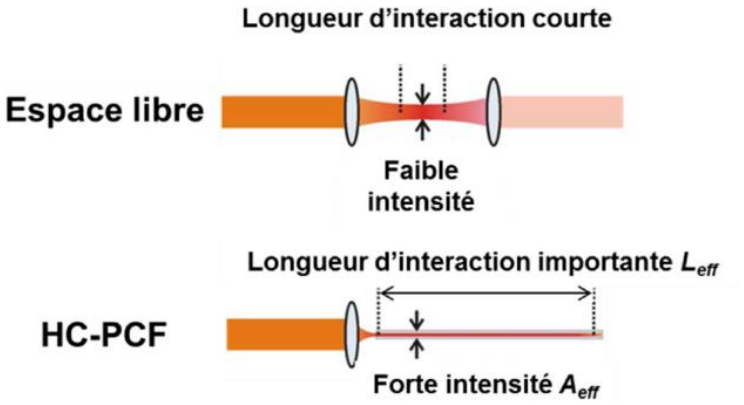


Figure 3 : Interaction lumière-matière dans une configuration en espace libre en comparaison d'une configuration utilisant une fibre creuse. Cette dernière configuration permet un confinement plus fort de la lumière et de la matière, et ceci sur de plus grandes longueurs, ce qui exacerbe les effets non-linéaires tels que l'effet Raman.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Ceci permet de comprendre l'intérêt de l'utilisation de fibres creuses en comparaison à une configuration en espace libre, où la longueur d'interaction entre la lumière et la matière est limitée par la longueur de Rayleigh (théorie des faisceaux Gaussiens). Le facteur de mérite (FOM : Figure Of Merit), qui traduit le gain de cette configuration, est proportionnel à la longueur d'interaction L_{int} divisée par son aire effective A_{eff} :

$$FOM = \lambda \frac{L_{int}}{A_{eff}} \tag{1.1}$$

Il est aisé de constater que ce facteur peut atteindre de hautes valeurs dans le cas des fibres creuses (*Figure 4*), les dimensions transverses du cœur de ces fibres étant de l'ordre du micron ou de quelques dizaines de microns et la longueur pouvant être de plusieurs mètres.

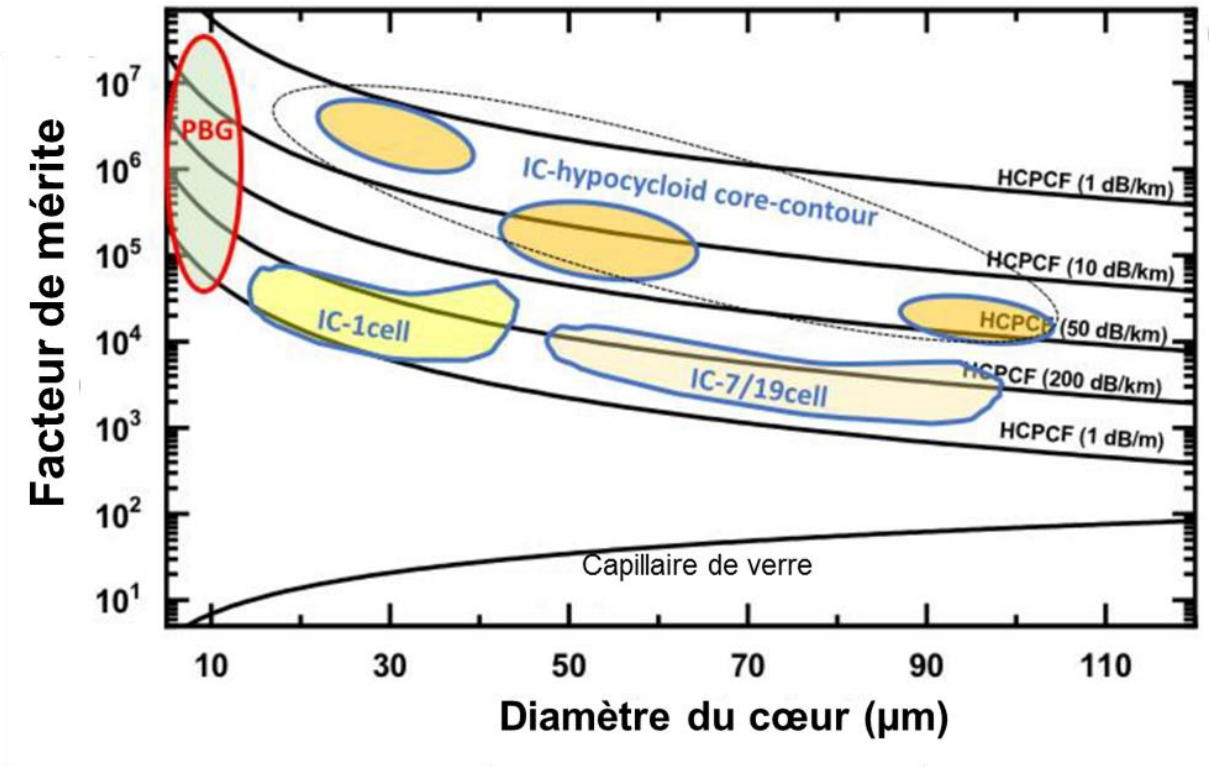


Figure 4 : Facteur de mérite en fonction du diamètre de cœur, pour un capillaire et les différents types de fibres creuses [11]. L'avantage par rapport à un capillaire est d'autant plus marqué que le diamètre du cœur est petit.

De tels facteurs de mérite auront pour conséquence l'apparition d'effets non-linéaires tels que l'effet Raman, que nous allons détailler tout au long de ce mémoire, à bas seuil. En d'autres termes, l'utilisation de fibres creuses va permettre de générer des effets

Licence CC BY-NC-ND 3.0

non-linéaires avec une efficacité telle qu'il n'est plus nécessaire d'utiliser des niveaux d'énergie de plusieurs dizaines de milli-Joules comme dans une configuration en espace libre.

I.4. Etat de l'art et applications

I.4.1. Les premières diffusions Raman stimulées dans le gaz

Avant l'invention et la fabrication des fibres creuses, la diffusion Raman stimulée dans les gaz était réalisée dans des cellules hermétiques pouvant contenir du gaz à haute pression (jusqu'à plusieurs dizaines de bars) [12]. La lumière était focalisée dans ces cellules afin d'atteindre de hautes intensités. Or en espace libre, plus un faisceau est focalisé plus sa longueur d'interaction optimale avec le gaz est réduite. Il y avait ainsi un compromis à trouver entre avoir un faisceau intense et avoir une interaction entre le gaz et la lumière sur la plus grande longueur possible, (plusieurs mètres typiquement). Dans le but d'augmenter cette longueur d'interaction, d'autres expériences ont été menées en remplaçant la cellule par un capillaire [13]. Le problème du capillaire est qu'il présente de fortes pertes de propagation de plusieurs dB/m, en particulier lorsque le diamètre de son cœur est réduit à quelques centaines de micromètres afin d'avoir l'intensité nécessaire à l'apparition de la DRS. La longueur d'interaction s'en trouve donc ici aussi limitée. Dans ce contexte, l'utilisation de fibres creuses remplies de gaz comme milieux Raman va se révéler des plus performantes et démontrer qu'il n'est plus nécessaire de disposer de telles intensités pour se placer en régime stimulé.

I.4.2. La diffusion Raman stimulée dans les fibres creuses remplies de gaz

C'est en 2002, en utilisant la première fibre creuse à maille *Kagomé*, que Benabid *et al.* parviennent à réaliser la diffusion Raman stimulée à bas seuil (*Figure 5*) [14]. Le laser de pompe émettait à 532 nm des impulsions de 6 ns et la fibre était remplie d'hydrogène. Le seuil de génération du Stokes était alors déjà inférieur au micro-Joule. L'efficacité de conversion était de 30%. En 2004, à l'aide d'une source délivrant des impulsions de 800 ps à 1064 nm, cette efficacité a dépassé les 90% [15]. Puis l'année suivante, la transition du régime transitoire vers le régime permanent est observée à l'aide d'impulsions de 14 ns. La fibre était cette fois une fibre à bande interdite

Licence CC BY-NC-ND 3.0

photonique (PBG – voir Chapitre III pour plus de détails sur les familles de fibres creuses) remplie d'hydrogène, de longueur 10 m et avec un diamètre de cœur égal à 7 µm. Le seuil était alors de 150 nJ [16].

Enfin en 2007, toujours en utilisant une fibre PBG remplie d'hydrogène mais avec un laser de pompe continu, un seuil de génération Raman inférieur au Watt a été démontré ainsi qu'une efficacité de conversion à la limite quantique (99,99%, *Figure 5*) [17]. C'est également cette année que le premier peigne Raman ultra-large généré par effet Raman stimulé dans une fibre creuse (et qui fait l'objet de la section suivante) a été observé [18].

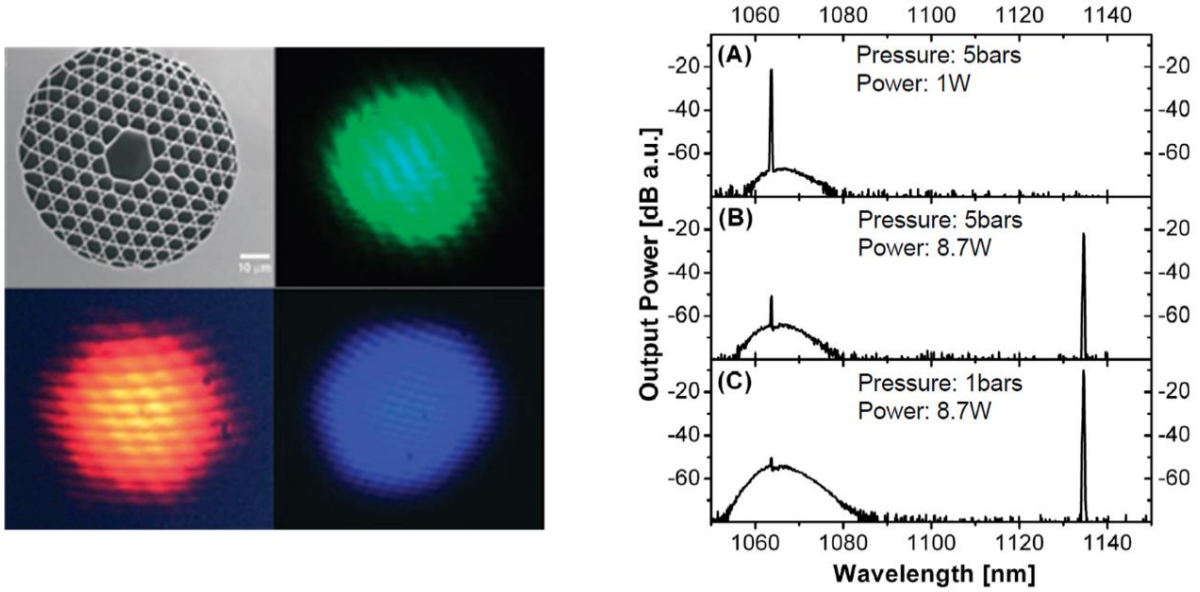


Figure 5 : (à gauche) Coupe transverse de la première fibre à maille Kagomé fabriquée, ainsi que les champs lointains des Stokes alors générés [14]. (à droite) Première efficacité de conversion à la limite quantique [17]. La puissance à la longueur d'onde de la pompe est convertie à la longueur d'onde du Stokes avec un écart de plus de 30 dB.

I.4.3. Génération de peignes de fréquences Raman ultra-larges

Les peignes de fréquences sont l'intérêt de nombreuses recherches de par le monde depuis le prix Nobel de 2005 décerné conjointement à John L. Hall et Theodor W. Hänsch pour leurs travaux précurseurs dans ce domaine (conjointement avec Roy J. Glauber pour l'optique quantique) [19]–[21]. Cependant, nous nous limiterons dans cette thèse au cas des peignes de fréquences générés par effet Raman. En effet, la diffusion Raman stimulée dans des fibres creuses remplies de gaz se révèle si efficace que la génération d'ordres supérieurs d'ondes Stokes et Anti-Stokes est possible,

Licence CC BY-NC-ND 3.0

chaque nouvelle onde devenant à son tour une pompe pour l'onde d'ordre supérieur. Il en résulte la génération de nombreuses lignes équidistantes en fréquence, ce qui n'est pas sans rappeler un peigne pour se coiffer, d'où le nom de « peignes de fréquences ». Chaque ligne spectrale voit sa fréquence s'exprimer sous la forme :

$$\omega = \omega_L \pm n\Omega_R \tag{1.2}$$

Où n est un entier naturel, Ω_R la modulation Raman et ω_L la fréquence centrale du peigne correspondant à la fréquence de la pompe. Le record de largeur obtenu à ce jour par cette méthode est de plus de 5 octaves (*Figure 6*), de 321 nm à 12,5 µm (soit de 24 à 933 THz) [22]. Le laser alors utilisé était un Hegoa de la société Eolite délivrant des impulsions de 27 ps à 1030 nm. La puissance moyenne utilisée pour générer le peigne était de 22,7 W, à une cadence de 1 MHz, résultant en une énergie par impulsion de 22,7 µJ et une puissance crête de 840 kW. Le milieu Raman consistait en une fibre *Kagomé* de 3 mètres de long et de diamètre interne égal à 48 µm remplie d'hydrogène à une pression de 24 bars.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

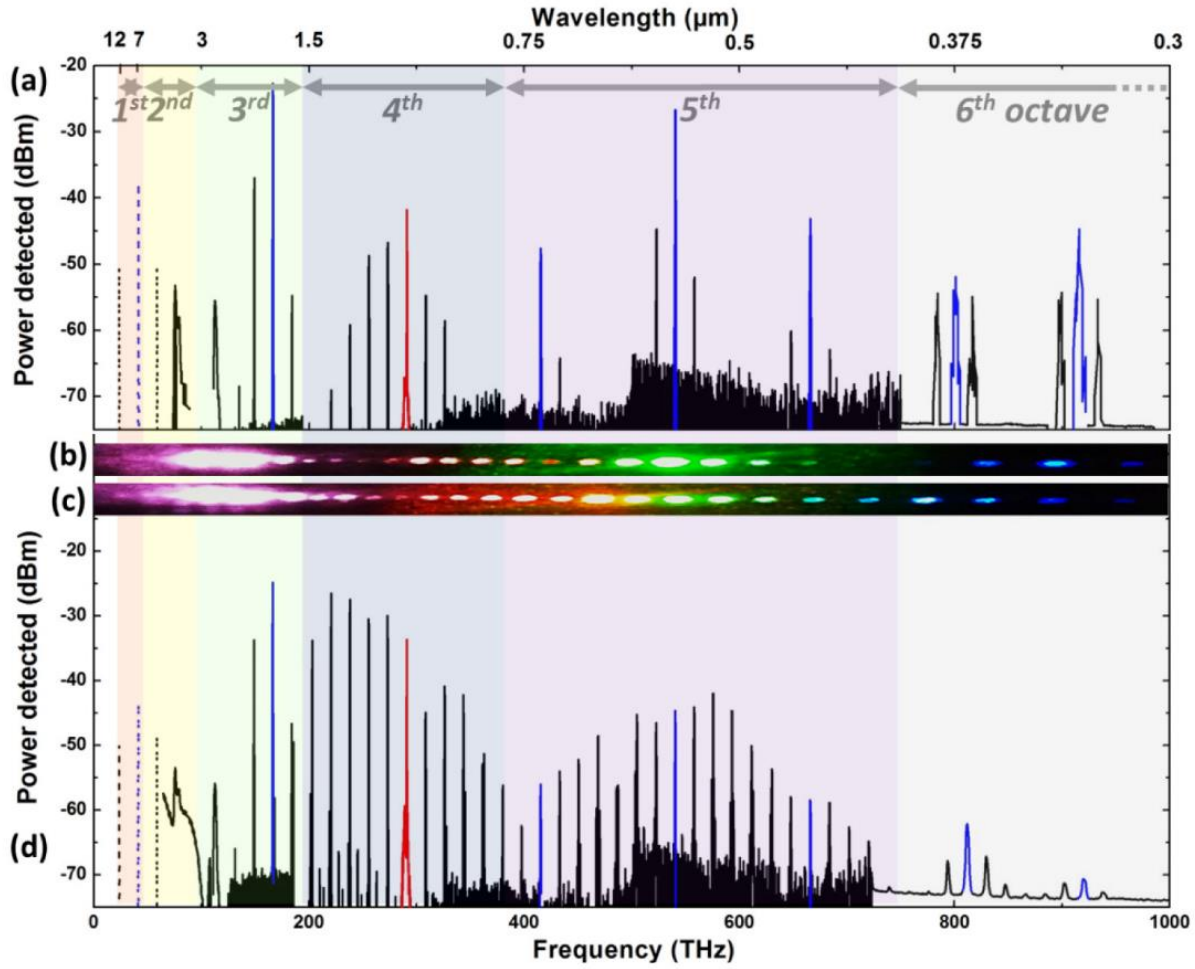


Figure 6 : (a) Peigne de fréquence ultra-large généré avec une polarisation de pompe linéaire et (b) sa lumière diffusée correspondante, (d) peigne de fréquence ultra-large généré avec une polarisation de pompe circulaire et (c) sa lumière diffusée correspondante [22]. Le peigne s'étend sur plus de 5 octaves. La génération des lignes en pointillés dans l'infrarouge est indirectement confirmée par l'observation de leurs lignes Anti-Stokes autour de 3 microns.

De larges peignes de fréquences Raman, mais plus denses, ont également pu être générés. En effet, l'écart entre différentes lignes spectrales se compte en THz et bien souvent en dizaines voire centaines de THz. En utilisant un mélange de gaz composé d'hydrogène (H_2), de deutérium (D_2) et de Xénon (Xe), Hosseini *et al.* ont pu générer un peigne s'étalant de 280 nm à 1 µm, avec un écart de 2,2 THz (soit 135 lignes). Le laser de pompe émettait des impulsions nanosecondes à 532 nm et 5 µJ d'énergie [23]. Cet écart a été réduit à 1,7 THz lorsque Benoît *et al.* ont réussi à générer un peigne de fréquence hybride, grâce à un mélange à quatre ondes piloté par effet Raman dans du deutérium afin d'obtenir une centaine de lignes sur près de 200 THz (*Figure 7*) [24].

Licence CC BY-NC-ND 3.0

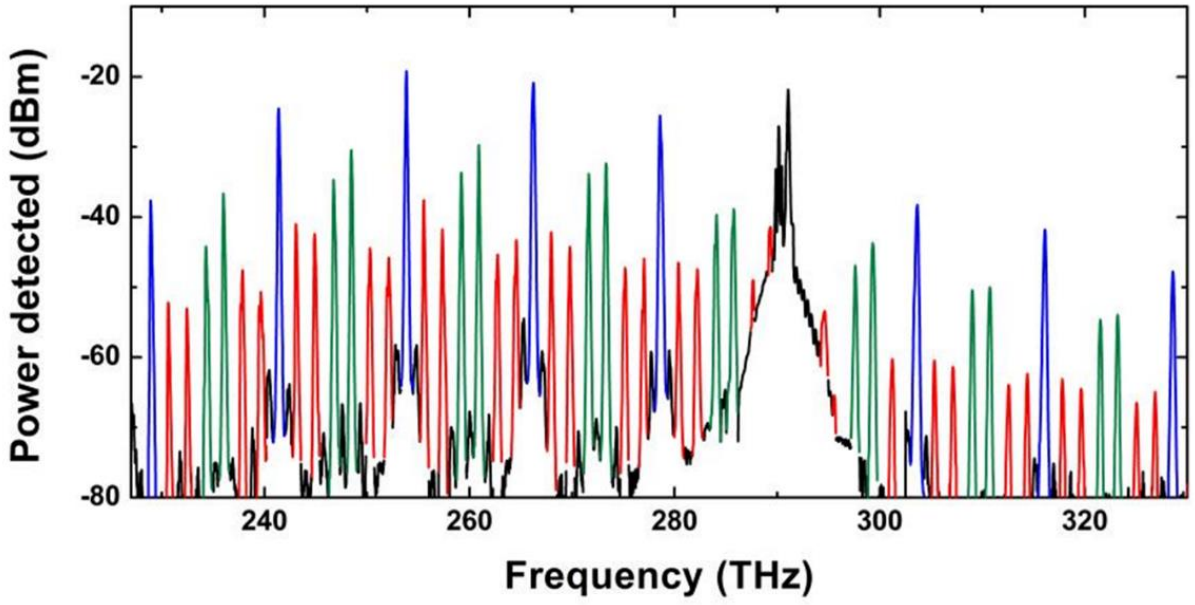


Figure 7 : Peigne de fréquences hybride généré dans du deutérium avec des lignes obtenues par effet Raman (en vert et bleu), et des lignes supplémentaires obtenues grâce à l'effet Kerr et au mélange à quatre ondes (en rouge) [24].

I.4.4. Génération de peignes de fréquences Raman cohérents

Disposer de larges peignes de fréquences est une chose, mais pouvoir les exploiter en est une autre. C'est dans ce but que leur cohérence est étudiée encore aujourd'hui. Il a notamment été démontré qu'une impulsion Stokes pouvait être auto-cohérente, et que les différentes lignes d'un peigne de fréquence généré au sein d'une même impulsion Stokes présentaient une cohérence mutuelle [25]. Ces résultats ont été obtenus grâce au montage interférométrique Mach-Zender présenté en *Figure 8*. Le laser de pompe était un modèle Nd:YAG générant des impulsions de 12 ns à 1064 nm à une fréquence de 50 Hz. Le faisceau était séparé en deux parties d'égales puissances (30 mW) afin d'être dirigé vers deux fibres *Kagomé* de 30 µm de diamètre interne et de 70 cm de longueur, remplies chacune de 15 bars d'hydrogène moléculaire. Les faisceaux étaient ensuite recombinés et dirigés vers un réseau, afin de séparer les différentes longueurs d'ondes du peigne généré. Une caméra CCD permettait d'enregistrer les figures d'interférences obtenues et ceci en régime « single shot », ce qui est d'ailleurs une des raisons du choix d'un laser de pompe avec un faible taux de répétition (50 Hz correspondant à une période de 20 ms).

Licence CC BY-NC-ND 3.0

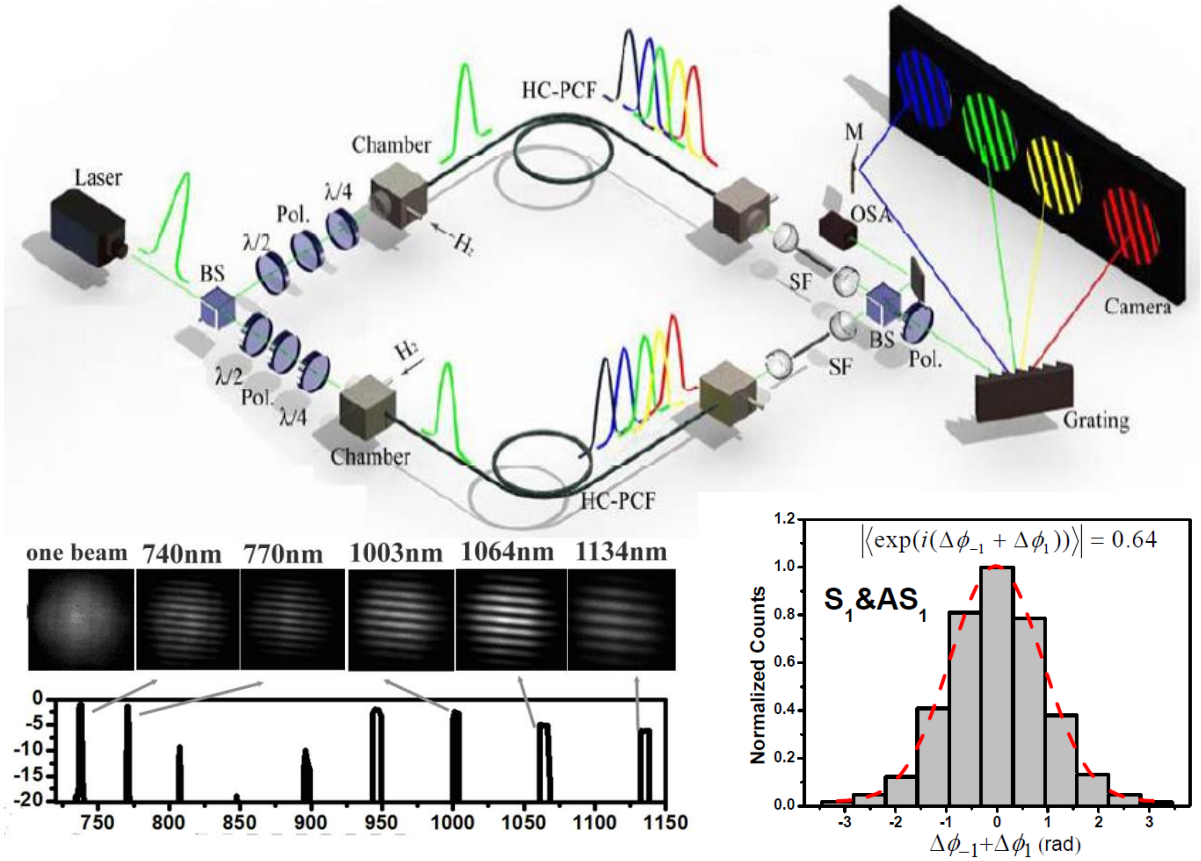


Figure 8 : (en haut) Montage expérimental ayant permis de démontrer la cohérence intra-impulsionnelle par effet Raman stimulé, (en bas) spectre du peigne généré et franges d'interférences correspondantes, histogramme présentant la relation de phase entre le premier Stokes et le premier Anti-Stokes provenant d'une même impulsion [25].

La cohérence « intra-impulsionnelle » des ondes Stokes générées par effet Raman stimulé dans des fibres creuses a ainsi été démontrée. Il reste cependant à prouver qu'il est possible, tout du moins dans certaines conditions, d'obtenir une cohérence « inter-impulsionnelle ». En effet pour le moment, bien qu'il soit possible de générer des impulsions Stokes cohérentes, il n'en est pas moins que de telles impulsions générées consécutivement par le processus décrit ici soient toutes différentes, elles ne partagent pas de relation de phase. Ce type de travaux, mené au sein de notre groupe de recherche, est aujourd'hui toujours en cours.

I.4.5. Domaines d'applications ciblés

Générer des peignes de fréquences Raman larges et cohérents présente un fort potentiel en vue d'applications très diverses. Ceci permet premièrement de réaliser de nouvelles sources laser à des gammes de longueurs d'ondes qu'il est difficile, voire

Licence CC BY-NC-ND 3.0

impossible, d'atteindre à l'heure actuelle par d'autres moyens. En effet, chaque ligne peut être isolée en tant que source individuelle. Par ailleurs, en combinant ces lignes il serait possible de réaliser des sources à impulsions ultra-courtes d'une part, mais aussi d'autre part de synthétiser des ondes optiques. Le potentiel de ces applications est détaillé ci-dessous de façon non exhaustive.

I.4.5.1. Réalisation de nouvelles sources laser

Comme il a été montré précédemment, l'état de l'art montre qu'il est possible de générer des peignes de fréquences sur de très larges spectres et ainsi d'atteindre des régions où il existe un fort besoin technologique, comme l'infrarouge. De nombreux domaines sont ainsi demandeurs de sources dans cette gamme de longueurs d'onde : le militaire pour la vision et la détection de cibles ou d'armes chimiques, le médical pour la chirurgie, ou encore la climatologie pour la détection de polluants atmosphériques ou d'aérosols. Certaines molécules présentent en effet de fortes bandes d'absorption dans l'infrarouge : le dioxyde de carbone (2 et 2,6 µm), le méthane (3,3 et 7,6 µm) ou bien encore l'eau (autour de 3 et 6,1 µm) comme ceci est résumé dans la *Figure 9*.

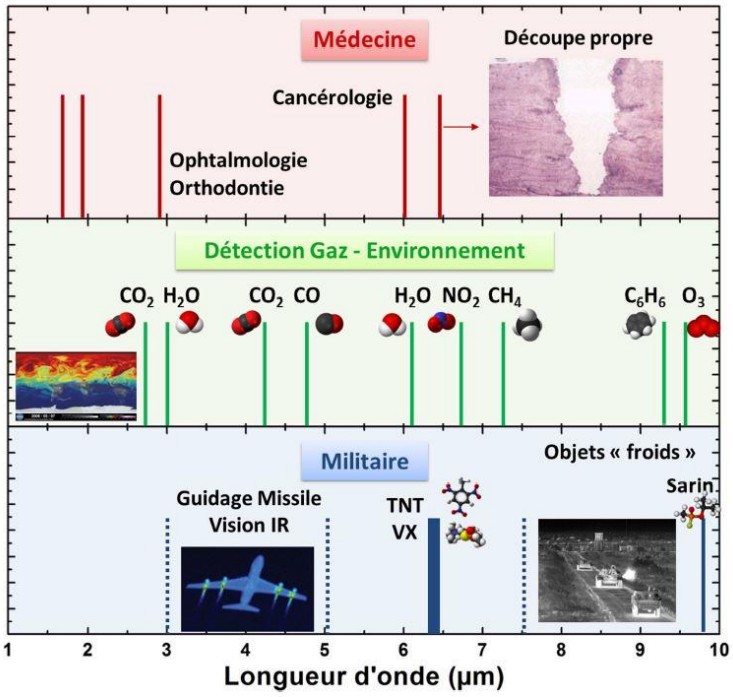


Figure 9 : Longueurs d'onde d'intérêt dans l'infrarouge (de 1 à 10 microns) et leurs domaines d'applications potentielles respectifs [26].

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Bien que des applications précises nécessitent souvent des sources à des longueurs d'onde précises, il peut être aisé pour la photonique des gaz de répondre à ce cahier des charges. L'effet Raman est en effet un phénomène non-résonant, c'est-à-dire qu'il ne dépend pas de la longueur d'onde de pompe. Pomper à une longueur d'onde différente aura pour seule incidence de générer des ondes Stokes à des longueurs d'onde différentes, car le décalage Raman est constant pour une même espèce gazeuse. En conséquence, changer l'espèce gazeuse excitée permet également d'atteindre des longueurs d'onde différentes à partir d'une même pompe. En jouant donc sur le couple type de gaz - longueur d'onde de pompe il est ainsi possible d'adresser un très grand nombre de nouvelles fréquences, et de répondre à la demande de nombreuses applications potentielles. Finalement, disposer d'un laser de pompe accordable marquerait un grand pas dans la versatilité de sources lasers basées sur l'effet Raman stimulé dans des fibres creuses remplies de gaz.

I.4.5.2. Synthèse d'ondes optiques

En plus de la réalisation de sources lasers à de nouvelles longueurs d'ondes, générer des peignes de fréquences larges et cohérents présente d'autres intérêts, non seulement technologiques mais aussi scientifiques. La relation temps-fréquence nous explique que plus le spectre d'une impulsion est large alors plus sa durée est courte, et inversement. Ainsi, générer des peignes de fréquences ultra-larges permet de générer des impulsions ultra-courtes (*Figure 10*). Une largeur spectrale de plusieurs octaves permettrait d'atteindre le régime attoseconde (10^{-18} seconde). Disposer de sources laser délivrant de telles impulsions serait extrêmement utile dans le but de sonder la dynamique de la matière, de comprendre comment les transitions de phase ou bien encore les réactions chimiques se déroulent.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

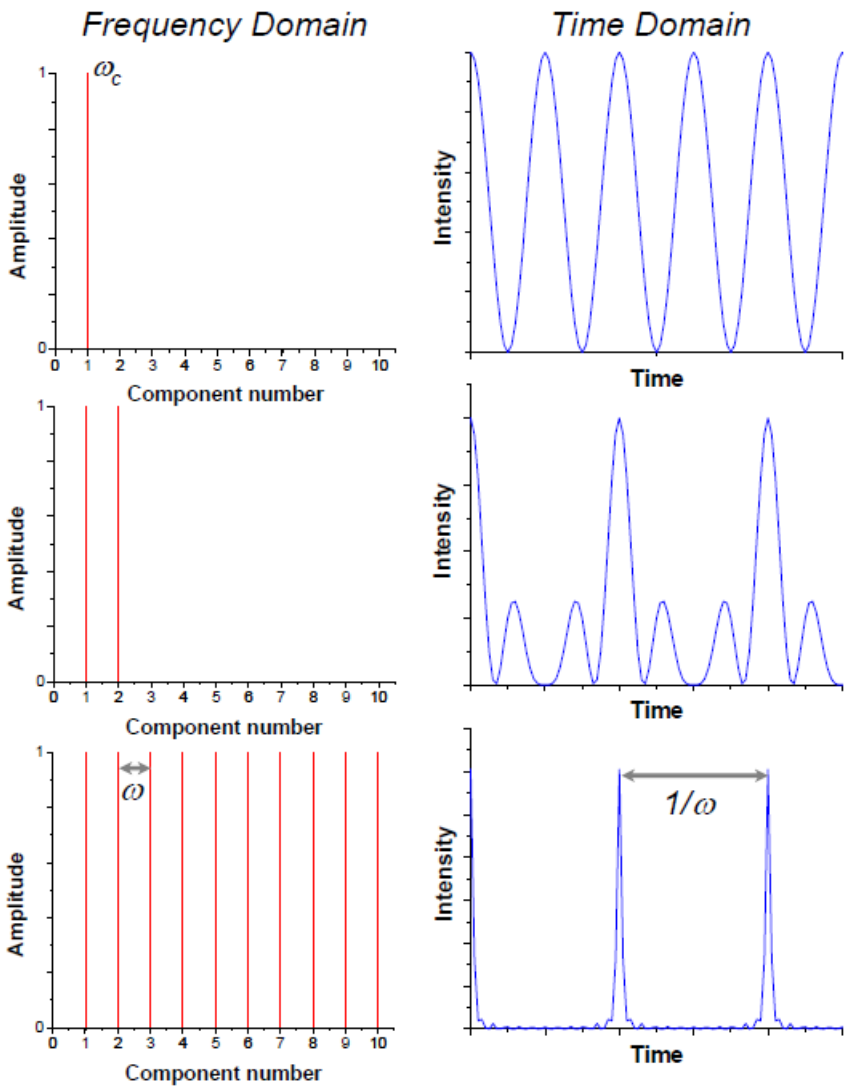


Figure 10 : (à gauche) Peigne de fréquences dans le domaine spectral et (à droite) son train d'impulsions correspondant dans le domaine temporel. Plus le spectre est large et donc le nombre de composantes spectrales du peigne est élevé, plus les impulsions sont de courte durée [27].

D'un point de vue plus technologique cette fois, les peignes de fréquences larges et cohérents pourraient être des éléments de base de l'ordinateur photonique. En effet, un des composants cruciaux des ordinateurs d'aujourd'hui est le micro-processeur et la caractéristique principale de ce dernier est sa vitesse de travail. On l'exprime généralement en fréquence, à l'heure actuelle elle se situe autour de plusieurs GHz (10^9 Hz). C'est à cette fréquence qu'il émet les informations, les fameux *bits* qui sont des suites de 0 et de 1, sous forme de signaux arbitraires complexes. Afin de générer de tels signaux, il est nécessaire de disposer de nombreux signaux simples (ou « purs ») appelés harmoniques. La théorie de Fourier explique en effet que chaque signal complexe peut se décomposer en une somme de signaux simples, et plus on dispose

Licence CC BY-NC-ND 3.0

d'un grand nombre d'entre eux plus il est aisé d'obtenir un signal complexe donné en jouant sur leur intensité et leur phase (*Figure 11*).

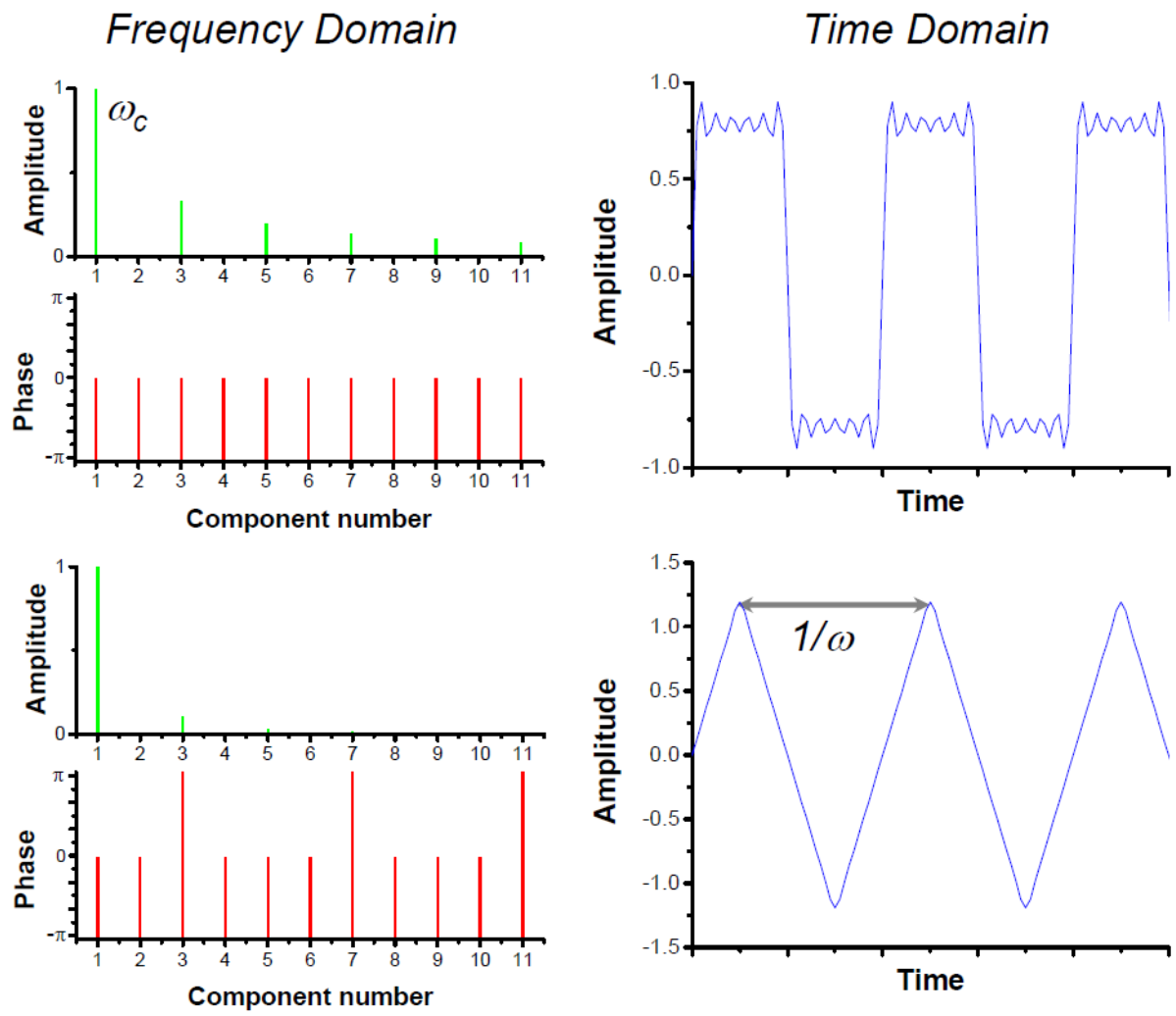


Figure 11 : (à gauche) Intensité et phase des différentes lignes d'un peigne de fréquences dans le domaine spectral et (à droite) son train d'impulsions correspondant dans le domaine temporel. Lorsque l'on modifie la phase et l'intensité des lignes du peigne, alors la forme temporelle du signal est modifiée [27].

En théorie, un micro-processeur basé sur l'optique délivrerait des informations à une fréquence beaucoup plus élevée, car la gamme de fréquences des ondes optique se situe autour des centaines de THz (10^{12} Hz). Il serait donc possible de gagner jusqu'à 5 ordres de grandeurs par rapport à la technologie actuelle, basée sur l'électronique.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

I.5. Présentation de la thèse

I.5.1. Objectifs

Dans le contexte décrit ci-dessus, les objectifs de cette thèse seront donc multiples et sont ici résumés:

1) Un premier objectif sera d'étudier la cohérence inter-impulsionnelle entre deux impulsions Stokes générées consécutivement par effet Raman stimulé dans une fibre creuse remplie d'hydrogène. Une étude systématique sera portée sur l'influence de différents paramètres comme le délai entre les impulsions ou bien encore la pression du gaz. Des travaux numériques seront également menés.

2) Toujours à partir du même phénomène physique, un travail sera de générer et optimiser le premier Stokes vibrationnel à 1,8 µm afin de proposer une nouvelle solution dans le domaine des sources infrarouges. Les caractérisations spectrales et temporelles associées seront aussi réalisées. L'accent sera également porté sur la possibilité de la génération, par effet Raman en régime transitoire, d'impulsions les plus courtes possible à 1,8 µm.

3) Nous proposerons également une source large bande ayant une structure accordable, d'un peigne de fréquences à un supercontinuum.

4) Enfin, grâce à un contrôle des paramètres d'entrée (durée d'impulsions, longueur de fibre, etc…), la génération de larges peignes de fréquences cohérents sera étudiée pour aboutir à la synthèse d'un train d'impulsions ultra-courtes.

I.5.2. Présentation des chapitres

Après cette première partie introductive, cette thèse sera divisée en 7 autres chapitres. Le **chapitre II** commencera avec la diffusion Raman stimulée en régime impulsionnel. Les différents régimes de génération et d'amplification seront détaillés, ainsi que la théorie permettant d'expliquer comment il est possible de générer des ondes Stokes cohérentes. Puis viendra le **chapitre III** traitant des fibres creuses à gaine micro-structurée où les différentes conceptions et mécanismes de guidage seront présentés. Nous en profiterons pour évoquer les fibres utilisées dans le cadre de ces travaux de

Licence CC BY-NC-ND 3.0

thèse et pourquoi nous les avons retenues. Le **chapitre IV** reviendra sur la diffusion Raman stimulée et la cohérence de l'onde Stokes générée en apportant cette fois des explications sur son évolution temporelle. Une étude sera aussi portée sur la possibilité de proposer un nouveau genre de sources lasers à blocage de modes. Le **chapitre V** traitera du seuil d'apparition de l'effet Raman stimulé, et en particulier des différences entre l'apparition de ce seuil dans le cas des fibres creuses en comparaison avec une configuration en espace libre. La génération d'impulsions infrarouges ultra-courtes par effet Raman stimulé dans une fibre creuse remplie de gaz sera alors présentée dans le **chapitre VI**. Celui-ci entame la dernière partie de ce manuscrit consacré aux résultats expérimentaux majeurs obtenus pendant cette thèse. Il est en effet suivi du **chapitre VII** démontrant la réalisation d'une source aux propriétés spectrales particulières. Non-seulement cette source génère un spectre sur une gamme couvrant plusieurs octaves, mais la nature même de ce spectre change en fonction des conditions initiales, en particulier la durée des impulsions de pompe. Ce chapitre permet également d'illustrer quelles conditions font que l'effet Raman, ou l'effet Kerr, prend le dessus lors de la genèse du spectre. Enfin, le **chapitre VIII** vient clore ce mémoire en démontrant la synthèse d'un train d'impulsions ultra-courtes par effet Raman stimulé en régime fortement transitoire. Ce résultat donnera les bases pour la réalisation d'un futur générateur de fonctions optiques.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

CHAPITRE II

Théorie de la diffusion Raman Stimulée en régime impulsionnel

Ce chapitre dresse les fondations théoriques de la diffusion Raman stimulée et ses propriétés pour la génération d'impulsions courtes et de peignes ultra-larges depuis le bruit quantique. Ces notions seront nécessaires par la suite à la compréhension des objectifs et des résultats présentés dans ce mémoire. Nous présenterons en particulier les équations régissant les phénomènes physiques mis en jeu tout au long de cette thèse. L'accent est mis ici sur les effets optiques Raman et Kerr, régis par la susceptibilité non-linéaire d'ordre 3. Celle-ci peut être obtenue à l'aide de différents formalismes dont la pertinence dépend de l'objet d'étude (effet Kerr, cohérence, population des niveaux d'énergie). Les différents régimes d'amplification et leur incidence sur la génération et la cohérence d'une onde Stokes sont également détaillés. Il est ensuite présenté un modèle modal pour décrire le Stokes généré de la fluctuation du vide et comment il est exploité pour générer des peignes de fréquences cohérents. Enfin, ce chapitre se terminera avec une présentation des spécificités liées à l'utilisation de la molécule d'hydrogène.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

II.1. Introduction

La diffusion Raman stimulé (DRS) est un phénomène optique non-linéaire, qui consiste en la conversion de la fréquence de l'onde optique d'un laser en une fréquence plus basse, on parle d'onde Stokes, et/ou plus haute, on parle alors d'onde Anti-Stokes. Aussi, et suivant les conditions d'excitation optique du milieu Raman, la DRS peut impliquer la génération d'un large peigne de fréquences composé de multiples lignes Stokes et Anti-Stokes, comme elle peut impliquer la conversion d'une onde de pompe en une ligne unique de Stokes. Elle est régie par l'équation de propagation d'une onde électromagnétique dans un milieu non-linéaire, reproduite ci-dessous :

$$\nabla \times \nabla \times \boldsymbol{E} = -\frac{1}{c}\frac{\partial^2 \boldsymbol{E}}{\partial t^2} - \mu_0 \frac{\partial^2 \boldsymbol{P}}{\partial t^2} \tag{2.1}$$

Ici, E est le champ électromagnétique en interaction, P la polarisation du milieu, c la célérité de la lumière dans le milieu et μ_0 la perméabilité magnétique du vide. La polarisation peut se scinder en une partie linéaire et une seconde non linéaire, cette dernière est elle-même due à différentes contributions (phénomènes acoustiques, électrostriction, effet Raman, transitions électroniques). Dans le cas d'un milieu Raman, la polarisation non-linéaire est principalement résonante, elle est maximale autour de fréquences angulaires $\omega_{\pm m} = \omega_0 \pm m\Omega_R$, avec $m = \pm 1, \pm 2$ ...., et sur une plage spectrale donnée par la largeur de raie de la résonance Raman. Pour le cas des milieux gazeux, ce qui est le cas dans ce mémoire, cette largeur est de l'ordre du GHz. Cette propriété de résonance de la polarisation induite par la DRS la distingue de celles générées par d'autres phénomènes physiques tels que l'effet Kerr ou autres mélanges de fréquences. Aussi, parmi les spécificités de la DRS par rapport à d'autres effets non-linéaires on note que celle-ci est un effet de seuil, c'est-à-dire que la DRS n'atteint son régime stimulé qu'à partir d'un certain niveau de puissance. Une autre de ces spécificités est que l'amplification du Stokes dans la DRS ne nécessite pas d'accord de phase. Ces caractéristiques sont intrinsèques aux propriétés de la polarisation non-linéaire de la diffusion Raman. L'effet de ces propriétés se manifeste dans toute la dynamique spectro-temporelle de la DRS. Ce chapitre traite de ces particularités de la DRS, en mettant l'accent sur une génération dans une fibre creuse remplie de gaz.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Nous traiterons en particulier l'aspect du gain, qui est très fort dans une telle configuration. Nous étudierons également l'interaction entre le gaz qui remplit ces fibres et la lumière et comment certains paramètres (comme la durée d'impulsion) influent sur la génération du Stokes. Enfin, nous ferons le lien avec la génération de peignes de fréquences ou bien encore l'effet Kerr.

La structure du chapitre est la suivante : nous commençons par revoir l'expression de la polarisation induite par l'effet Raman dans le cas de 2 différents formalismes (classique et semi-classique), et comment ces formalismes donnent des expressions du gain qui est la quantité représentative du phénomène de DRS. Ensuite, nous dresserons les équations de mouvement associés à cette dernière. Viennent alors les différents régimes d'amplification, où sera traité l'aspect modal de la génération du Stokes. Ceci nous amènera au phénomène de cohérence Raman duquel découleront certaines grandeurs caractéristiques comme le déphasage Raman qui est relié à la durée de relaxation moléculaire. Tous ces aspects seront enfin illustrés par le cas de la molécule d'hydrogène qui est utilisée tout au long de cette thèse.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

II.2. La polarisation induite par effet Raman

L'équation (2.1) indique clairement l'importance de connaitre l'expression de la polarisation du milieu excité et la dynamique physique sous-jacente. Extraire une expression générale de la polarisation est très difficile, sinon pratiquement impossible. En effet, en plus de dépendre de la structure atomique et moléculaire du milieu, de sa symétrie géométrique et de l'orientation du champ électromagnétique relative à ce milieu, la polarisation est aussi induite par le champ qui peut être une excitation externe ou résultant de l'interaction de ce dernier avec le milieu. Enfin, cette interaction peut être exclusivement un phénomène d'interférence (effets paramétriques), ou une combinaison avec une dynamique de la polarisation intrinsèque au milieu (effets Raman, Kerr, Brillouin ou ionisation). Il est donc pratique d'identifier préalablement le milieu, la configuration de l'excitation et son champ.

Dans notre cas, nous nous limitons à un milieu Raman et une excitation impulsionnelle à une fréquence fixée. Dans ce cadre et dans le but de déterminer les différentes contributions à la polarisation induite par effet Raman, nous nous focaliserons tout d'abord sur la polarisation à la fréquence du Stokes. Nous traiterons ensuite le cas de la polarisation à la fréquence de l'Anti-Stokes qui se révélera tributaire d'un terme d'accord de phase (processus paramétrique), sans oublier la contribution due à l'effet Kerr optique.

Notons toutefois que l'expression de la polarisation sera donnée en suivant deux formalismes différents : classique et semi-classique. Ceci est justifié par le fait que ces deux formalismes sont courants dans la littérature, et que chacun possède des avantages pratiques propres.

II.2.1. Formalisme classique

Le modèle de Lorentz

Le modèle classique pour déduire la polarisation du milieu induit par effet Raman repose sur l'interaction d'un champ électromagnétique avec la vibration ou la rotation d'une molécule. Ses noyaux atomiques subissent un mouvement qui peut être décrit par celui d'un oscillateur harmonique (modèle de Lorentz) (*Figure 12*). Dans

Licence CC BY-NC-ND 3.0

l'approximation scalaire, cette interaction induit une polarisabilité optique donnée par l'expression suivante sous la forme d'une série de Taylor [28]:

$$\alpha(t) = \alpha_0 + (\partial\alpha/\partial q)_0 q(t) + \cdots \tag{2.2}$$

avec la variable q(t) représentant les coordonnées nucléaires normalisées.

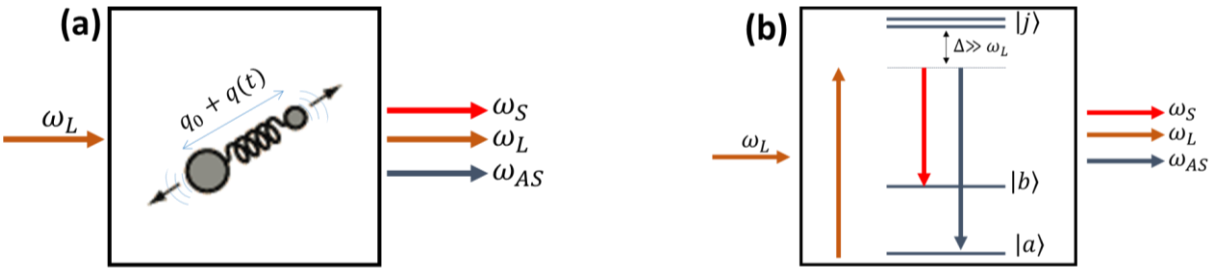


Figure 12 : (a) Schéma classique de l'effet Raman basé sur le modèle de Lorentz, (b) diagramme quantique correspondant basé sur un système à 2 niveaux d'énergie.

En vibrant, la molécule se voit donc associée à un dipôle. En se limitant au premier ordre de la série de la polarisabilité, la polarisation induite par un champ électrique E est donc :

$$\begin{aligned} P_{Raman} &= N\alpha(t)E \\ &= N\alpha_0 E + N(\partial\alpha/\partial q)_0 q(t)E \\ &= P_{Raman}^{(L)} + P_{Raman}^{(NL)} \end{aligned} \tag{2.3}$$

$P_{Raman}^{(L)} = N\alpha_0 E$ est la polarisation linéaire, et est la source du changement de l'indice de réfraction du milieu. $P_{Raman}^{(NL)} = (\partial\alpha/\partial q)_0 q(t)E$ est la polarisation non-linéaire, et la source de l'effet de DRS.

Utilisant le résultat du modèle de l'oscillateur harmonique [28], l'expression complexe de $q(t)$ est :

$$q(t) = \frac{1}{2} Q(\omega) e^{-i(\Omega_R t - k_q z)} + \text{c.c} \tag{2.4}$$

avec k_q le vecteur d'onde associé au mouvement de la molécule. La vibration de l'oscillateur pique à une fréquence donnée qui est la fréquence Raman Ω_R. Cette vibration d'amplitude $\partial\alpha/\partial q$ est amortie, et a une durée de vie limitée par le temps de

Licence CC BY-NC-ND 3.0

relaxation moléculaire T_2 (correspondant au déphasage $\Gamma = T_2^{-1}$). Par consequent, cette vibration peut s'écrire sous la forme d'une Lorentzienne :

$$Q(\omega) = \frac{(\epsilon_0/m)\left(\frac{\partial \alpha}{\partial q}\right)_0}{\omega^2 - \Omega_R^2 - 2i\Gamma\omega} \tag{2.5}$$

Pour déduire l'expression de la polarisation non-linéaire induite, nous nous limitons au cas où le champ de la pompe, ou l'excitation externe, est monochromatique, à savoir :

$$E = E_L e^{-i(\omega_L t - k_L z)} + c.c. \tag{2.6}$$

avec E_L le champ du laser de pompe, ω_L sa pulsation et k_L son vecteur d'onde. En conséquence, la polarisation non-linéaire se décompose comme ceci :

$$\begin{aligned} P_{Raman}^{(NL)} = (\partial\alpha/\partial q)_0 \{ & qE_L^* e^{i((\omega_L - \Omega_R)t - (k_L - k_q)z)} + q^* E_L e^{-i((\omega_L - \Omega_R)t - (k_L - k_q)z)} \\ & + qE_L e^{-i((\omega_L + \Omega_R)t - (k_L + k_q)z)} + q^* E_L^* e^{i((\omega_L + \Omega_R)t - (k_L + k_q)z)} \} \end{aligned} \tag{2.7}$$

Cette expression montre que la polarisation non-linéaire Raman comporte deux fréquences de résonance : la première à $\omega_L - \Omega_R$, correspondant au champ Stokes, et la seconde à $\omega_L + \Omega_R$, correspondant au champ Anti-Stokes. Par conséquent, on peut écrire :

$$P_{Raman}^{(NL)} = P_S(\omega) e^{-i\omega_S t} + P_{AS}(\omega) e^{-i\omega_{AS} t} + c.c. \tag{2.8}$$

où ω_S représente l'onde Stokes et ω_{AS} l'onde Anti-Stokes pour lesquelles nous allons étudier les différentes contributions. Commençons par écrire la polarisation à la fréquence du Stokes :

$$P_S(\omega) = N\epsilon_0 \left(\frac{\partial \alpha}{\partial q}\right)_0 Q^*(\omega) E_L e^{ik_S z} \tag{2.9}$$

On peut donc déduire l'expression suivante pour le champ du Stokes, en reprenant l'équation (2.1). En appliquant les approximations classiques de l'enveloppe lentement variable (car la durée de nos impulsions est bien supérieure à celle d'un cycle optique)

Licence CC BY-NC-ND 3.0

et d'une onde électromagnétique plane (car nous utilisons une équation d'onde scalaire dans un milieu homogène), pour chaque composante spectrale du champ l'équation devient :

$$\left(\frac{\partial}{\partial z}+\frac{\partial}{v_n}\frac{\partial}{\partial t}\right)E_n=-\frac{i\mu_0\omega_n^2}{2k_n}P_{NL}(\omega_n)e^{ik_nz} \tag{2.10}$$

Ici l'indice *n* correspond à une ligne spectrale particulière (car le spectre est composé d'un ensemble de lignes discrètes). Si on ne considère que le premier Stokes, ceci donne l'équation de mouvement suivante :

$$\left(\frac{\partial}{\partial z}+\frac{\partial}{v_S}\frac{\partial}{\partial t}\right)E_s=-\frac{i2\pi N\omega_S v_S}{c^2}\left(\frac{\partial\alpha}{\partial q}\right)_0 Q^*E_L \tag{2.11}$$

On rappelle que le mouvement nucléaire de la molécule, $q(t)$, est résonant à une fréquence donnée par le battement entre le champ de la pompe et celui du Stokes, on peut alors écrire $q \propto E_L E_S$. En conséquence, et si nous considérons le régime stationnaire pour lequel nous ignorons la dépendance avec le temps, nous pouvons écrire :

$$\frac{\partial}{\partial z}E_S=\frac{g_{SS}}{2}E_S \tag{2.12}$$

Le paramètre g_{SS} est le coefficient de gain Raman dans le régime stationaire, et son expression dans le formalisme classique se base sur l'émission Raman spontanée. En effet, dans le cas de la DRS (sans amplification), le champ du Stokes E_S est issu du bruit quantique. C'est-à-dire que le champ du Stokes de la DRS est initié par l'émission spontanée. La section efficace correspondant au nombre de photons Stokes est $d\sigma/d\Omega$. On peut en déduire le nombre de photons Stokes émis spontanément pour une longueur de matériau dz donnée et un angle solide $d\Omega$ par l'équation des taux suivante [29] :

$$(dN_S)_{SP} = N_1 N_L(\partial\sigma_{SP}^R/\partial\Omega)d\Omega dz \tag{2.13}$$

Licence CC BY-NC-ND 3.0

avec N_1 le nombre de molécules par unité de volume dans l'état fondamental, N_L le nombre de photons incidents et σ_{SP}^{R} est la section efficace de diffusion Raman spontanée par atome. Dans ces conditions, le gain Raman est déduit en écrivant que :

$$\frac{dN_S}{dz} = g_{ss}N_S \tag{2.14}$$

La DRS correspondant à une croissance exponentielle de l'intensité du Stokes le long d'un milieu de longueur z étant :

$$I_S(z) = I_0 e^{g_{ss}z} \tag{2.15}$$

où I_0 est l'intensité du Stokes à z = 0. Cela donne enfin :

$$g_{ss} = \Delta N \frac{\partial\sigma}{\partial\Omega} \frac{c^3}{\gamma v_s^2 4 n_L n_S} |E_L|^2 \tag{2.16}$$

équation pour laquelle $\Delta N = (N_1 - N_2)$, avec N_2 le nombre de molécules par unité de volume dans l'état excité. Nous introduisons aussi le terme γ, caractéristique d'un déphasage relatif à la différence de population que nous expliciterons plus loin. Remarquons cependant que :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{\omega_s^4 \hbar}{2m\Omega_R c^4} \left(\frac{\partial\alpha}{\partial q}\right)_0^2 \tag{2.17}$$

Ce qui permet d'écrire le coefficient de gain Raman en régime stationnaire en fonction du déphasage Γ :

$$g_{ss} = \Delta N \frac{2\,\pi\,\omega_S v_S}{m\Omega_R c^2} \left(\frac{\partial\alpha}{\partial q}\right)_0^2 \frac{|E_L|^2}{\Gamma} \approx \Delta N \frac{4\,\pi^2\,\omega_S^2}{m\Omega_R n_L n_S c^2} \left(\frac{\partial\alpha}{\partial q}\right)_0^2 \frac{I_L}{\Gamma} \tag{2.18}$$

Dans les équations précédentes, v_S et n_S sont la vitesse de groupe et l'indice du milieu à la fréquence du Stokes, n_L l'indice à la fréquence de la pompe et I_L l'intensité de cette dernière. Le *Tableau 1* ci-dessous donne quelques valeurs comparatives pour différentes espèces Raman gazeuses, on comprend bien l'intérêt de l'hydrogène par rapport à d'autres espèces. Il permet de générer des lignes Raman lointaines spectralement et de manière efficace grâce à un fort gain.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

	$\left(\frac{\partial \alpha}{\partial q}\right)_0$ (10^{-16} cm^2)	Gain G/I_L (à 694 nm)	$\Omega_{R\ vibra}$ (THz)
H_2		15	125
D_2		11	90
O_2	1,43	0,16	47
N_2	1,69	0,71	70
CH_4	1,04	6,6	87

Données provenant de Kaiser et Maier (1972) et de Simon et Tittel (1994)

Tableau 1 : Gain et décalages Raman pour différentes espèces gazeuses.

Seuil de la génération de la DRS

La DRS est générée depuis le bruit quantique du champ du Stokes. Afin qu'il soit amplifié de façon stimulée, le champ de la pompe doit dépasser un certain seuil d'énergie. Comme nous l'avons vu plus haut, l'expression de l'intensité du Stokes dans le régime stationnaire est $I_S = I_0 e^G$ avec $G = g_R I_L z$, la condition du seuil s'écrit donc $G > G_{th}$. Dans la pratique, G_{th} est fixé à une valeur comprise entre 15 et 30. C'est à partir de telles valeurs de gain que le signal Stokes sort du bruit, et devient détectable au niveau macroscopique par des appareils de mesure. L'expression du minimum requis en intensité du laser de pompe $I_{L,th}$ dépend de la durée d'impulsion et du temps de relaxation du milieu Raman T_2. Dans une section ci-dessous nous détaillerons les régimes temporels dans l'amplification dans la DRS et les seuils associés.

Effets dus à la dispersion

Lors de la propagation d'impulsions au sein d'un milieu, la dispersion peut infliger un effet de walk-off sur celles-ci. Des composantes spectrales de fréquences différentes vont en effet se propager à des vitesses de groupe différentes, entrainant *in fine* une possible diminution de leur superposition temporelle. Cet effet peut par exemple être

Licence CC BY-NC-ND 3.0

la cause d'une diminution de l'efficacité de conversion, voire même d'une déformation de l'impulsion.

Pour savoir si nous pouvons négliger cet effet délétère, il faut que la différence des indices de groupe aux longueurs d'ondes de la pompe et du Stokes, $\Delta n_g = |(n_g)_L - (n_g)_S|$ obéisse à la relation suivante :

$$\Delta n_g \ll c\, g_R P / c(\omega_P - \omega_S) A_{eff} \qquad (2.19)$$

g_R étant le coefficient de gain Raman en régime stationnaire (environ 1 cm/GW pour le Stokes vibrationnel sous 20 bars d'hydrogène) et c la vitesse de la lumière dans le vide. A_{eff} est l'aire effective, et P est la puissance crête du laser de pompe.

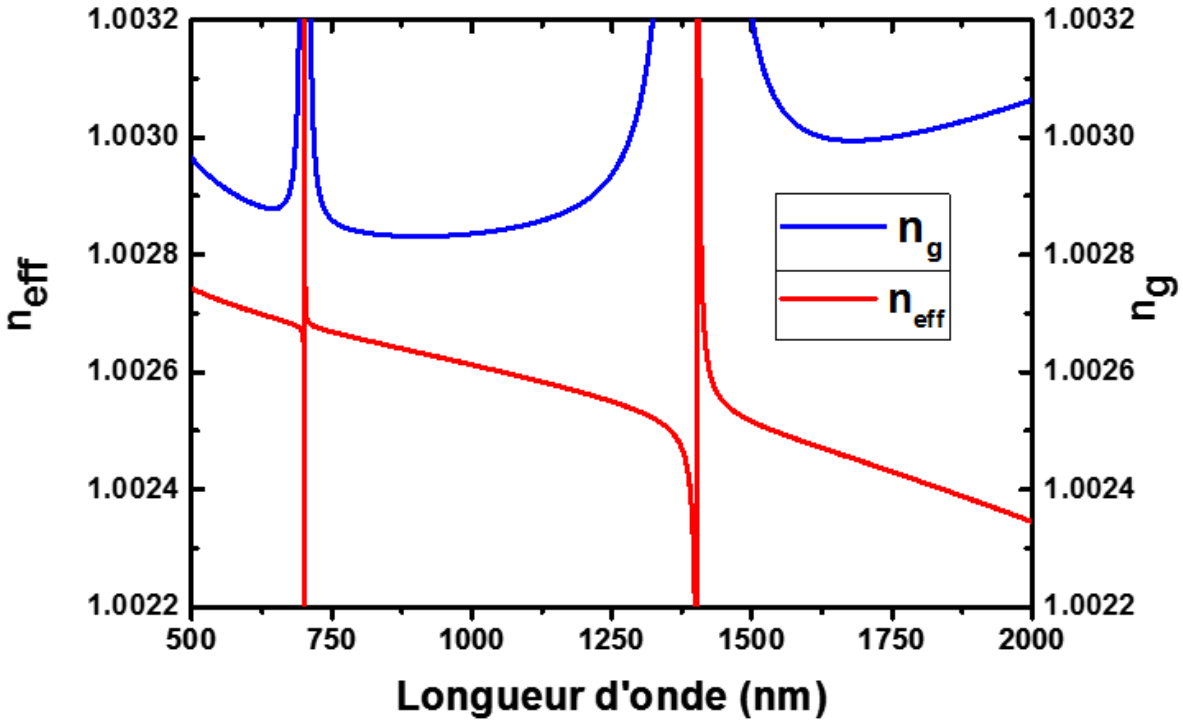


Figure 13 : Indice effectif (en rouge) et indice de groupe (en bleu) en fonction de la longueur d'onde pour la fibre Kagomé utilisée dans les derniers chapitres de cette thèse et présentée en chapitre III.

Dans le cas de la fibre *Kagomé* qui sera présentée à la fin du chapitre III et qui est la fibre principalement utilisée dans ces travaux, l'indice effectif (*Figure 13*) est de 1,00261 à 1030 nm (la longueur d'onde de pompe) et de 1,00241 à 1800 nm (la longueur d'onde du premier Stokes vibrationnel dans l'hydrogène). L'indice de groupe à 1030 nm est de 1,00284 et de 1,00301 à 1800 nm, donnant une différence de $1{,}7.10^{-3}$ très largement inférieure au critère dont la valeur est de ~0.2 pour une puissance crête de 10 MW, et

Licence CC BY-NC-ND 3.0

pour un rayon de fibre de 20 µm. Ainsi, pour les travaux présentés dans ce mémoire, nous considérerons le walk-off comme étant négligeable.

Susceptibilité électrique

Une autre approche classique pour déterminer la polarisation induite dans le phénomène de la DRS est l'utilisation de la notion de tenseur susceptibilité. Comme on le verra ci-dessous, cette approche permet de mettre en évidence la contribution d'autres phénomènes optiques non-linéaires, tels que le mélange à quatre ondes, au signal Raman. Dans cette approche, et en se limitant à l'approximation scalaire, la polarisation du milieu peut être développée en puissances croissantes du champ :

$$P(t) = \varepsilon_0\left[\chi^{(1)}E(t) + \chi^{(2)}E^2(t) + \chi^{(3)}E^3(t) + \chi^{(4)}E^4(t) + \cdots\right] = P_L + P_{NL} \qquad (2.20)$$

avec $P_L = \varepsilon_0\chi^{(1)}E(t)$ la polarisation linéaire de susceptibilité linéaire $\chi^{(1)}$, et P_{NL} la polarisation non-linéaire faisant intervenir les susceptibilités non-linéaires $\chi^{(n)}$ d'ordre n. Par soucis de simplification cette équation est écrite avec des quantités scalaires, mais le champ et la polarisation sont en réalité des vecteurs. Ainsi, les susceptibilités $\chi^{(n)}$ sont des tenseurs de rang n+1.

Les phénomènes non-linéaires prépondérants sont ceux du deuxième et du troisième ordre, dont les polarisations respectives s'écrivent $P^{(2)}(t) = \varepsilon_0\chi^{(2)}E^2(t)$ et $P^{(3)}(t) = \varepsilon_0\chi^{(3)}E^3(t)$. Ces polarisations distinctes résultent en des processus physiques eux-mêmes différents. Par exemple, les phénomènes du second ordre n'interviennent que dans des cristaux ne possédant pas de centre d'inversion. Ainsi, les solides amorphes (comme la silice des fibres optiques) et les gaz étant invariants par symétrie d'inversion, leur susceptibilité $\chi^{(2)}$ est nulle. Dans le cadre de mes travaux de thèse nous nous limiterons ainsi aux processus non-linéaires d'ordres 3. Dans ce cadre la polarisation non-linéaire se réduit à :

$$P_{NL} = \varepsilon_0\left[3\chi^{(3)}E^3(t)\right] \qquad (2.21)$$

Notons que l'effet Raman est un effet optique avec une susceptibilité d'ordre 3. En d'autres termes, le phénomène Raman est un mélange d'ondes paramétrique impliquant quatre ondes. Contrairement, au mélange d'ondes typique, ici on a affaire,

Licence CC BY-NC-ND 3.0

en plus de l'onde du Stokes et de la pompe, à une onde de battement entre la pompe et le Stokes ($\omega_L - \omega_S$) qui est fortement couplée avec la résonance Raman. Nous pouvons donc écrire la susceptibilité induite par effet Raman à la fréquence du Stokes comme $\chi_R^{(3)}(\omega_S) = \chi^{(3)}(\omega_S{:}\,\omega_S, \omega_L, -\omega_L)$ [28]. En tenant compte de la dégénérescence du mélange d'onde, nous pouvons écrire par identification :

$$P(\omega_S) = 6\epsilon_0 \chi_R(\omega_S)|E_L|^2 E_S e^{iksz} \tag{2.22}$$

et

$$\begin{aligned} \chi_R(\omega_S) = \chi_R' + i\chi_R'' &= \frac{\epsilon_0 (N/6m)(\partial\alpha/\partial q)_0^2}{\Omega_R^2 - (\omega_L - \omega_S)^2 + 2i(\omega_L - \omega_S)\Gamma} \\ &\approx \frac{\epsilon_0 (N/12m\Omega_R)(\partial\alpha/\partial q)_0^2}{\Omega_R - (\omega_L - \omega_S) + i\Gamma} \end{aligned} \tag{2.23}$$

L'expression approximative est associée aux conditions proches de la résonance ($\omega_S = \omega_L - \Omega_R$). Nous introduisons le décalage fréquentiel à deux photons $\Delta\omega_{2p} = (\omega_L - \omega_S) - \Omega_R$, nous pouvons donc écrire :

$$\begin{cases} \chi_R' = -\dfrac{\epsilon_0 (N/12m\Omega_R)(\partial\alpha/\partial q)_0^2}{{\Delta\omega_{2p}}^2 - \Gamma^2}\Delta\omega_{2p} & \text{(2.24 (a))} \\ \chi_R'' = -\dfrac{\epsilon_0 (N/12m\Omega_R)(\partial\alpha/\partial q)_0^2}{{\Delta\omega_{2p}}^2 - \Gamma^2}\Gamma & \text{(2.24 (b))} \end{cases}$$

La partie réelle χ_R' contribue à la dispersion et la partie imaginaire χ_R'' au gain (ou à l'atténuation). A la résonance, $\Delta\omega_{2p} \ll \Gamma$, on a $\chi_R''^{(max)} = (\epsilon_0 (N/12m\Omega_R)(\partial\alpha/\partial q)_0^2)/\Gamma$. Enfin, la relation entre le gain en régime stationnaire et la susceptibilité peut être déduite de l'équation d'évolution du Stokes dans le cadre de l'approximation de l'enveloppe lentement variable [30] :

$$g_{ss} = 4\pi \frac{\omega_S}{n_S c} \chi_R'' |E_L|^2 \tag{2.25}$$

Mélange d'ondes et DRS

Il est aussi possible d'exprimer une polarisation et une susceptibilité pour une onde Anti-Stokes. En remplaçant formellement ω_S par ω_{AS}, et sachant que :

Licence CC BY-NC-ND 3.0

$$\omega_L - \omega_S = -(\omega_L - \omega_{AS}) \tag{2.26}$$

On remarque que $\chi_R(\omega_{AS}) = \chi_R(\omega_S)^*$. Ainsi à la résonance Raman, cette susceptibilité est alors un imaginaire positif. La partie réelle du coefficient d'absorption est donc également positive, ce qui implique une atténuation de l'onde Anti-Stokes. Or comme on peut le voir dans la génération de peignes de fréquences Raman les rayonnements Anti-Stokes sont bien mesurables expérimentalement. La génération de ces ondes a donc une autre origine et une autre contribution à la polarisation non-linéaire du système. On peut l'écrire en fonction de l'amplitude du Stokes :

$$P(\omega_{AS}) = N\epsilon_0 \left(\frac{\partial \alpha}{\partial q}\right)_0 q(\Omega) E_L \tag{2.27}$$

Cette contribution peut ainsi s'écrire en fonction d'un terme d'une susceptibilité d'un mélange à 4 ondes $\chi_{FWM}(\omega_{AS}) = \chi^{(3)}(\omega_{AS} = \omega_L + \omega_L - \omega_S)$ via la relation :

$$P(\omega_{AS}) = 3\epsilon_0 \chi_{FWM}(\omega_{AS}) E_L^2 E_S^* e^{i(2k_L - k_S)z} \tag{2.28}$$

Le principe de la spectroscopie CARS (pour l'anglais Coherent Anti-Stokes Raman Scattering) repose sur cette équation possédant un terme d'accord de phase. La susceptibilité à la fréquence de l'Anti-Stokes s'exprime alors comme suit :

$$\chi_{FWM}(\omega_{AS}) = \frac{(N\epsilon_0/3m)(\partial\alpha/\partial q)_0^2}{\omega_v^2 - (\omega_L - \omega_{AS})^2 + 2i(\omega_L - \omega_{AS})\gamma} \tag{2.29}$$

Ceci permet notamment de remarquer que $\chi_{FWM}(\omega_{AS}) = 2\chi_R(\omega_{AS})$. Enfin, la polarisation totale à la fréquence de l'Anti-Stokes devient :

$$P(\omega_{AS}) = 6\epsilon_0 \chi_R(\omega_{AS}) |E_L|^2 E_S e^{ik_{AS}z} + 3\epsilon_0 \chi_{FWM}(\omega_{AS}) E_L^2 E_S^* e^{i(2k_L - k_S)z} \tag{2.30}$$

Il y a aussi une contribution du mélange à 4 ondes dans la polarisation du Stokes décrite par une susceptibilité $\chi_{FWM}(\omega_S)$. Cela a pour conséquence une polarisation totale à la fréquence du Stokes s'écrivant de la manière suivante :

$$P(\omega_S) = 6\epsilon_0 \chi_R(\omega_S) |E_L|^2 E_S e^{ik_S z} + 3\epsilon_0 \chi_{FWM}(\omega_S) E_L^2 E_{AS}^* e^{i(2k_L - k_{AS})z} \tag{2.31}$$

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Il convient de préciser qu'au contraire de la contribution purement Raman, ces contributions du mélange à 4 ondes à la polarisation non-linéaire du système sont soumises à un accord de phase, comme le montre le terme exponentiel.

L'expression de la polarisation de l'équation (2.31) met en évidence à la fois les limites du modèle de Lorentz, et l'importance des phénomènes d'interférence entre les ondes à travers l'utilisation de la notion du tenseur susceptiblité.

Dans ce cadre, il convient de compléter l'expression de $P(\omega_S)$ en remarquant que 3 ondes, dans la combinaison linéaire de leur fréquence respective et égale à la fréquence du Stokes, contribuent à générer une susceptibilité $\chi^{(3)}(\omega_S)$. La *Figure 14* montre les principaux autres effets non-linéaires d'ordre 3. En plus de la diffusion Raman stimulée évoquée ci-dessus, on note la diffusion Brillouin stimulée, l'absorption à 2 photons et l'effet Kerr.

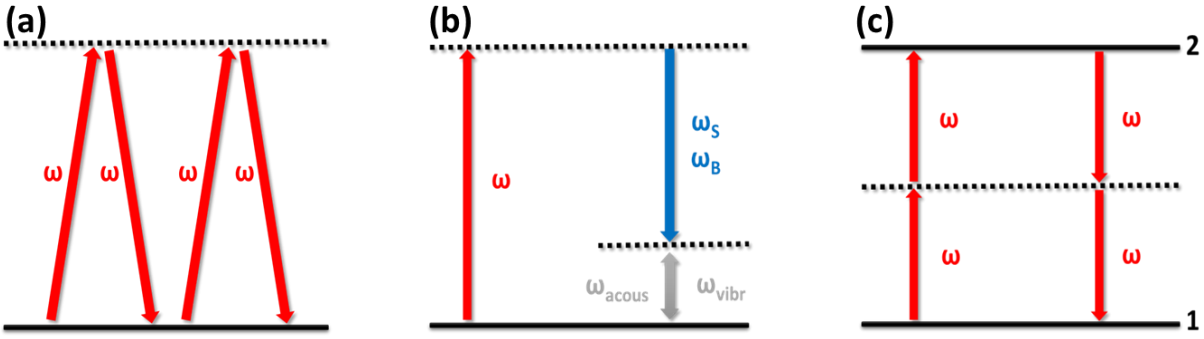


Figure 14 : (a) Diagrammes quantiques de l'effet Kerr optique (b) des diffusions Raman et Brillouin stimulées (c) et de l'absorption à 2 photons. Les niveaux réels sont en trait continu et les niveaux virtuels en pointillés [31].

Dans le cas typique des expériences menées dans les travaux de cette thèse, le champ est principlament composé de composantes spectrales Raman, c'est-à-dire des fréquences $\omega_{\pm m} = \omega_L \pm m\Omega_R$. Dans ce cadre, un effet paramétrique à prendre en compte est celui de l'effet Kerr optique, surtout pour des impulsions de pompe de très courte durée et de haute intensité. L'effet Kerr se manifeste par la dépendence de l'indice d'un matériau avec l'intensité de la lumière en interaction : $n = n_0 + n_2 I$. Ce changement d'indice se décrit par la polarisation non-linéaire :

$$P_K(\omega) = 3\epsilon_0 \chi_K(\omega)|E^2|E \qquad (2.32)$$

Licence CC BY-NC-ND 3.0

avec $\chi_K(\omega) = \chi^{(3)}(\omega{:}\,\omega, -\omega, \omega)$. L'effet Kerr dans un milieu Raman excité par un champ se manifeste à travers la partie non-résonante de la susceptibilité $\chi^{(3)}$. Cette dernière peut donc s'écrire comme la combinaison de l'effet Kerr intrinsèque au milieu avec celui induit par effet Raman. Par conséquent la polarisation non-linéaire à la fréquence du Stokes s'écrit :

$$\begin{aligned} P_{NL}(\omega_S) &= P_{NL}^{(r)} + P_{NL}^{(nr)} \\ &= \varepsilon_0\big[6\epsilon_0\chi_R(\omega_S)|E_L|^2E_Se^{ik_Sz} + 3\epsilon_0\chi_{FWM}(\omega_S)E_L^2E_{AS}^*e^{i(2k_L-k_{AS})z} \\ &+ 3\epsilon_0\chi_K(\omega_S)|E_L^2|E_S\big] \end{aligned} \tag{2.33}$$

Suppression et contrôle du gain de la DRS induit par la relation de phase entre le Stokes et l'Anti-Stokes

Le formalisme par susceptibilité diélectrique a été aussi l'outil permettant de mettre en évidence les facteurs physiques derrière la dynamique de la DRS. Pour rappel, le champ du Stokes dans la DRS est amplifié depuis le bruit quantique, ou la fluctuation du point-zéro du champ du vide. Bloembergen et Shen [32] ont montré en recherchant l'impact du couplage entre le Stokes et l'Anti-Stokes, qu'aux origines de l'amplification dans la DRS, le milieu Raman est composée à la fois d'une « onde de polarisation » et d'une paire d'ondes formée par les champs Stokes et Anti-Stokes. Comme on l'a vu précédemment dans les équations, l'onde Anti-Stokes subit une atténuation, cela implique que la génération d'ondes Anti-Stokes observée expérimentalement est due à un phénomène de mélange à quatre ondes. Cependant, une étude, prenant en compte à la fois le champ de l'Anti-Stokes et l'accord de phase $\Delta\beta = 2\beta_L - \beta_S - \beta_{AS}$ entre le Stokes et l'Anti-Stokes pendant la genèse de la DRS, montre que le gain du Stokes stationnaire g_{ss} prend une autre forme. Ci-dessous, nous reprenons les résultats de [32], et écrivons l'expression suivante dont la partie imaginaire représente le gain de la DRS :

$$g_{\pm} = \Delta\beta \pm \sqrt{\Delta\beta^2 + i4g_{SS}\Delta\beta} \tag{2.34}$$

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Ici, nous avons négligé les pertes linéiques de propagation. Le signe positif correspond au Stokes, et le signe négatif à l'Anti-Stokes. Autrement dit, les champs du Stokes et de l'Anti-Stokes suivent les équations :

$$\frac{\partial}{\partial z} E_S = \frac{g_+}{2} E_S \qquad (2.35\ (a))$$

$$\frac{\partial}{\partial z} E_{AS} = \frac{g_-}{2} E_{AS} \qquad (2.35\ (b))$$

La dispersion de la fibre ($\beta = n_{eff}(2\pi/\lambda)$) donne l'expression de l'indice effectif n_{eff}. Comme le montre cette équation, la valeur de l'indice effectif dépend directement de la structure de la fibre. On peut ainsi avoir un contrôle direct de celui-ci en jouant sur l'épaisseur des ponts de silice. Cet indice effectif est présenté dans la *Figure 15(a)* pour le mode HE_{11} (le détail des modes sera vu en chapitre III).

Cet indice effectif peut être différent pour diverses composantes spectrales, pour une épaisseur de pont donnée. La *Figure 15(b)* montre cet indice en fonction de la pompe (en bleu), du Stokes (en orange) et de l'Anti-Stokes (en vert).

La *Figure 15(c)* montre le désaccord de phase $\Delta\beta$ en fonction du rayon de la fibre et de l'épaisseur des ponts de silice formant sa microstructure. Afin de ne pas risquer une extinction du gain, il faut se placer dans des régions où le désaccord de phase s'éloigne de zéro. Dans le cas des derniers chapitres de cette thèse, la fibre *Kagomé* utilisée (et présentée à la fin du prochain chapitre) a une épaisseur de ponts de 670 nm et un diamètre interne de cœur de 58 µm, nous sommes ainsi effectivement dans une zone où l'accord de phase est négligeable, évitant ainsi une possible extinction du gain.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

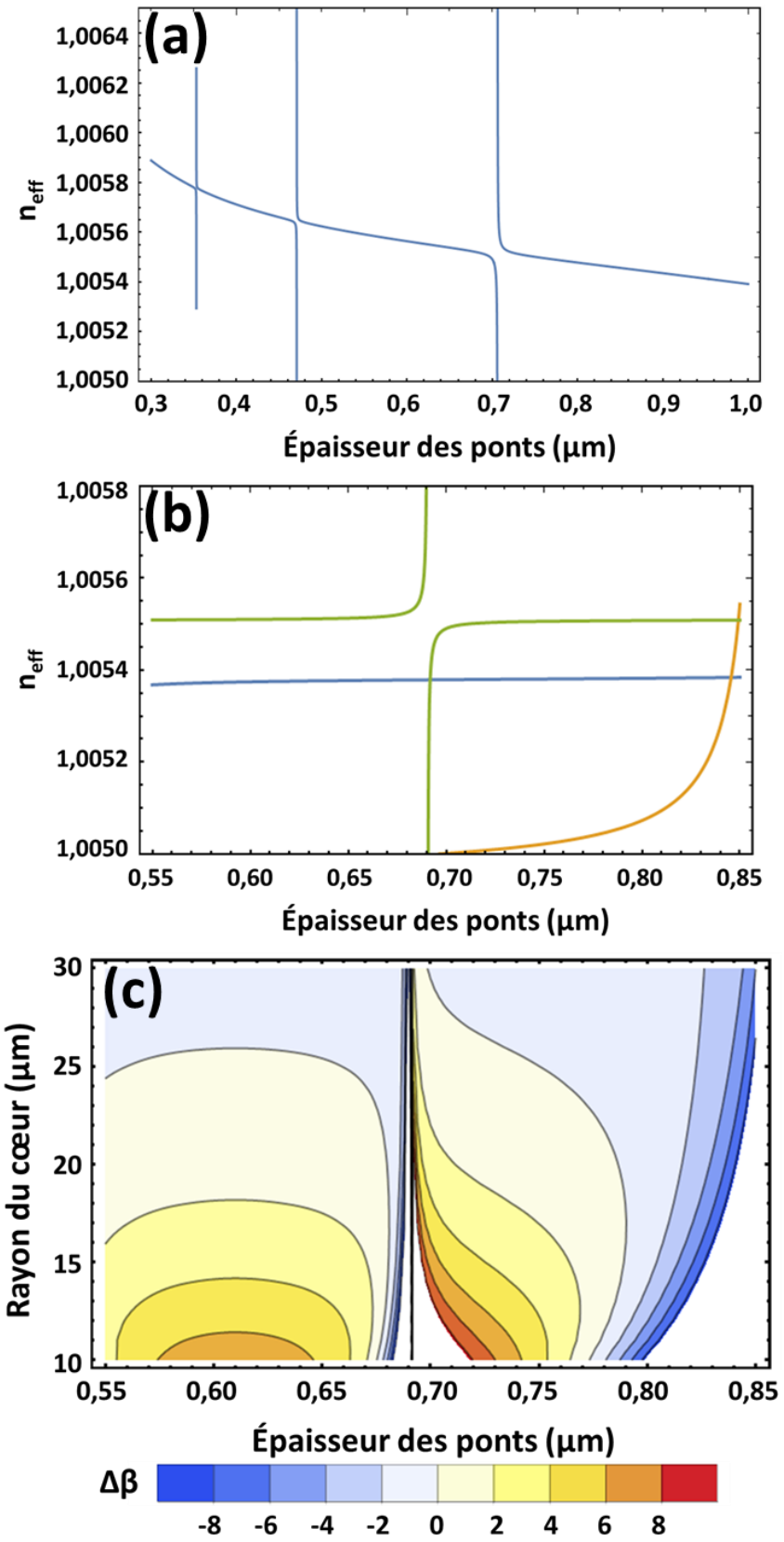


Figure 15 : (a) Indice effectif du mode fondamental guidé HE_{11} en fonction de l'épaisseur t des ponts de silice. (b) indice effectif du milieu en fonction de t. Les différentes couleurs représentent les composantes spectrales (en bleu : la pompe, en orange : le Stokes et en vert : l'Anti-Stokes. (c) désaccord de phase en fonction du rayon interne du cœur de la fibre et de l'épaisseur des ponts t.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

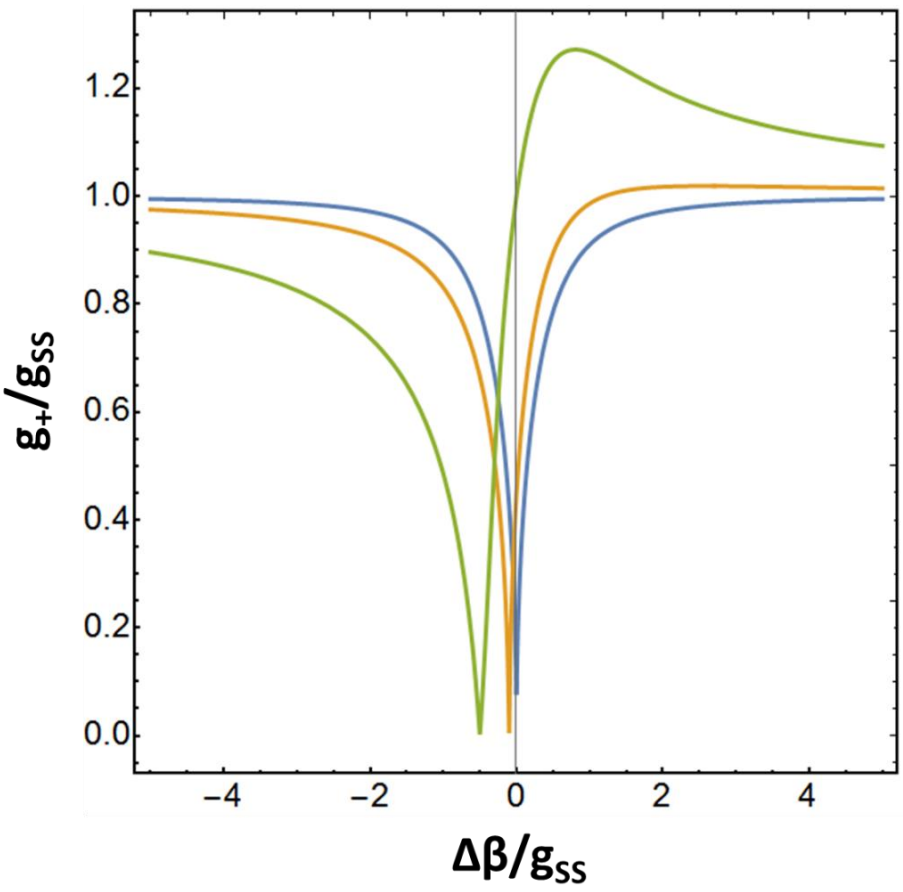


Figure 16 : Gain du Stokes en fonction du désaccord de phase, tous deux normalisés par le coefficient de gain Raman en régime stationnaire. Les différentes couleurs représentent différentes susceptibilités non-résonantes (bleu : 0, orange : 0,2 et vert : 0,5).

La *Figure 16* montre l'évolution de g_+ en fonction du désaccord de phase normalisé, la dispersion à la longueur d'onde 1030 nm (représentant la longueur d'onde du laser de pompe) à 1800 nm (représentant la longueur d'onde du Stokes pour la transition vibrationnelle de l'hydrogène) et 721 nm (représentant la longueur d'onde de l'Anti-Stokes). g_{SS} doit être pris pour des intensités de pompe proches du seuil, c'est-à-dire $G_{th} = 20 = g_{ss}L$. Pour 1 mètre de fibre, $g_{ss} = 0{,}2\ cm^{-1}$ et puisque dans notre cas Δβ est estimé à 1,83 µm^{-1}, alors le rapport des deux nous place très loin d'une possible extinction du gain.

II.2.2. Formalisme semi-classique

Ci-dessus, la DRS a été traitée dans un cadre classique. L'introduction de la susceptibilité électronique a permis de mettre en évidence le rôle ondulatoire du champ et donc l'interférence entre les champs électromagnétiques mis en jeu. Cependant, le milieu a été traité comme un dipôle classique. Ici, bien que l'onde laser

Licence CC BY-NC-ND 3.0

reste considérée d'un point de vue de la physique classique, nous traiterons la matière (les molécules) d'un point de vue de la physique quantique. La *Figure 12(b)* montre que les molécules formant le système peuvent être assimilées à des atomes à 2 niveaux, car la fréquence du laser de pompe ne permet pas d'atteindre les niveaux d'énergies supérieurs ($\Delta \gg \omega_L$), dont la population peut ainsi être négligée [28].

Le formalisme du vecteur d'état est mal adapté dans le cas où l'interaction de l'atome avec son environnement (par exemple par des collisions) ne peut être négligée. Cependant, si on ne s'intéresse pas aux corrélations de l'environnement avec l'atome mais seulement à l'évolution de ce dernier, alors il est possible d'utiliser le formalisme de la matrice densité. Celui-ci suit une procédure mathématique simple et claire permettant de décrire à chaque instant l'état de l'atome dans une situation où il n'existe pas de vecteur d'état pour l'atome seul. C'est une technique basée sur une combinaison de la théorie des perturbations en mécanique quantique et de la mécanique statistique au niveau macroscopique. Les effets de l'environnement sont ici pris en compte par l'introduction de termes de relaxation dans les équations d'évolution. La théorie des perturbations pour l'équation de Schrödinger peut être généralisée à la matrice densité pour obtenir les susceptibilités linéaires. Dans le cas où un système à 2 niveaux est considéré, les équations d'évolution de la matrice densité restent suffisamment simples pour donner des résultats analytiques utilisables. On obtient ainsi un ensemble d'équations appelées équations de Bloch optiques, solubles même quand le rayonnement est très intense, permettant d'obtenir les susceptibilités non-linéaires ou le gain Raman.

Equations de Bloch

Si l'on s'intéresse seulement à l'évolution de l'atome dans son environnement, il faut utiliser la matrice densité ρ au lieu d'utiliser des fonctions d'ondes. Dans le cas où on ne considère qu'un système à 2 niveaux, ρ est une matrice 2 × 2 :

$$\rho = \begin{bmatrix} \rho_{11} & \rho_{12} \\ \rho_{21} & \rho_{22} \end{bmatrix} \tag{2.36}$$

Les termes diagonaux ρ_{11} et ρ_{22} représentent respectivement les probabilités d'occupation des niveaux $|1\rangle$ et $|2\rangle$. Leur somme vaut donc 1. Les termes non-diagonaux ρ_{12} et $\rho_{21} = \rho_{12}^*$ sont reliés à la cohérence entre les niveaux $|1\rangle$ et $|2\rangle$, ils sont

Licence CC BY-NC-ND 3.0

non-nuls si le système se situe dans une superposition d'états. La matrice densité obéit à l'équation de Schrödinger, on obtient ainsi les équations d'évolution suivantes [28] :

$$\frac{d\rho_{11}}{dt} = i(\Omega_{12}\rho_{21} - \Omega_{21}\rho_{12}) + \gamma\rho_{22} \quad (2.37\ (a))$$

$$\frac{d\rho_{22}}{dt} = -i(\Omega_{12}\rho_{21} - \Omega_{21}\rho_{12}) - \gamma\rho_{22} \quad (2.37\ (b))$$

$$\frac{d\rho_{12}}{dt} = i(\Omega_{11} - \Omega_{22} + \delta)\rho_{12} + i\Omega_{12}(\rho_{22} - \rho_{11}) - \Gamma\rho_{12} \quad (2.37\ (c))$$

Le système étant formé des niveaux $|1\rangle$ et $|2\rangle$ et restant fermé malgré la relaxation, on conserve l'égalité $\rho_{11} = 1 - \rho_{22}$. On introduit les termes de detuning δ entre les niveaux *1* et *2*, et de relaxation des populations γ et de relaxation de la cohérence ou du dipôle Γ. Si la forme de l'interaction de l'atome avec l'environnement est connue, la théorie de la relaxation permet de calculer ces coefficients. On peut par ailleurs exprimer ces coefficients sous la forme suivante :

$$\gamma = \frac{1}{T_1} \quad ; \quad \Gamma = \frac{1}{T_2}$$

Avec T_1 la durée de vie de la population et T_2 la durée de vie de la cohérence (autrement dit du dipôle). Dans le cas où le milieu est dense, il faut tenir compte des interactions possibles comme les collisions. La relaxation de la cohérence est alors beaucoup plus rapide que celle de la population, ainsi $\Gamma \gg \gamma$. Il est en effet plus facile de brouiller une phase et donc détruire une cohérence que de modifier une énergie menant à la destruction d'une population. On définit la différence de population $D = \rho_{22} - \rho_{11}$. Les équations de la matrice densité peuvent ainsi être réécrites :

$$\frac{dD}{dt} = -2i(\Omega_{12}\rho_{21} - \Omega_{21}\rho_{12}) - \gamma(D - D^{eq}) \quad (2.38\ (a))$$

$$\frac{d\rho_{12}}{dt} = -[\Gamma - i(\Omega_{11} - \Omega_{22} + \delta)]\rho_{12} + i\Omega_{12}D \quad (2.38\ (b))$$

Avec D^{eq} la différence de population à l'équilibre thermique [28], que nous prenons égale à -1 (toutes les molécules sont dans leur état fondamental). Ces équations sont appelées équations de Bloch optiques (ou équations de Maxwell-Bloch), avec Ω_{11} et Ω_{22} les décalages Stark :

Licence CC BY-NC-ND 3.0

$$\Omega_{11} = \frac{1}{2}(a_L|E_L|^2 + a_S|E_S|^2) \quad (2.39\ (a))$$

$$\Omega_{22} = \frac{1}{2}(b_L|E_L|^2 + b_S|E_S|^2) \quad (2.39\ (b))$$

Et Ω_{12} la fréquence de Rabi :

$$\Omega_{12} = \frac{d_S}{2}E_S(\boldsymbol{r},t)E_L^*(\boldsymbol{r},t) \quad (2.40)$$

Cette dernière contient les champs de la pompe et du Stokes à l'origine de la cohérence ρ_{12}. Les termes $a_{L(S)}$ et $b_{L(S)}$ sont des constantes de dispersion et $d_{L(S)}$ est une constante de couplage [33].

Dans le cas du régime permanent, les dérivées dans les équations de Bloch optiques s'annulent. Leur résolution algébrique donne alors :

$$D = \frac{\gamma D^{eq}(\Gamma^2 + \delta^2)}{\gamma(\Gamma^2 + \delta^2) + 4|\Omega_{12}|^2\Gamma} \quad (2.41\ (a))$$

$$\rho_{12} = \frac{i\Omega_{12}D}{\Gamma - i(\Omega_{11} - \Omega_{22} + \delta)} \quad (2.41\ (b))$$

Polarisation et gain Raman

Si l'on considère maintenant que seul le niveau fondamental est peuplé et que l'on ignore les décalages Stark, la polarisation du champ Stokes et de la pompe ont les formes suivantes :

$$P_S = 2N\hbar a_L E_S + i\frac{N\hbar d_S^2 D}{\Gamma - i\delta}|E_L|^2 E_S \quad (2.42\ (a))$$

$$P_L = 2N\hbar(a_L\rho_{11} + b_L\rho_{22})E_L + i\frac{N\hbar^2 d_L^2 D}{\Gamma - i(\Omega_{11} - \Omega_{22})}|\mathrm{E_S}|^2\mathrm{E_L}, \quad (2.42\ (b))$$

Si l'on compare maintenant avec sa définition « classique » où [34] :

$$P_S = \epsilon_0\chi^{(1)}E_S - \epsilon_0\chi^{(3)}|E_L|^2E_S \quad (2.43)$$

On peut identifier une expression de $\chi^{(3)}$ sous la forme $\chi' - i\chi''$ avec :

$$\chi' = -\frac{N\hbar d_L^2 D\delta}{\epsilon_0(\Gamma^2 + \delta^2)} \quad (2.44)$$

Licence CC BY-NC-ND 3.0

La partie réelle représente la dispersion induite par effet Raman au milieu et la partie imaginaire :

$$\chi'' = -\frac{N\hbar d_L^2 D\Gamma}{\epsilon_0(\Gamma^2+\delta^2)} \tag{2.45}$$

se retrouve dans l'expression du coefficient de gain Raman g_{SS} [35], [36]:

$$g_{SS} = \frac{2\omega_S \chi_R''}{n_S n_L c^2 \epsilon_0} = -\frac{2\omega_S N\hbar d_L^2 D\Gamma}{n_S n_L c^2 \epsilon_0^2(\Gamma^2+\delta^2)} \tag{2.46}$$

Enfin, il est possible de remplacer D par son expression pour obtenir l'expression du gain sous une autre forme :

$$g_{SS}(\delta) = \left(\frac{2\omega_S N\hbar d_L^2(-D^{eq})}{n_S n_L c^2 \epsilon_0^2 \Gamma}\right)\left(1+\frac{4|\Omega_{12}|^2}{\Gamma\gamma}\right)^{-1}\left(1+\frac{\delta^2}{\Gamma^2}\frac{1}{1+4|\Omega_{12}|^2/\Gamma\gamma}\right)^{-1} \tag{2.47}$$

Dans cette dernière expression, le premier terme représente la valeur centrale du coefficient de gain Raman en onde plane. Le dernier terme entre parenthèses nous renseigne par ailleurs sur sa forme Lorentzienne. Lorsque $|\Omega_{12}|^2 \gg \Gamma\gamma$, les deux termes de droite entre parenthèses valent 1 et le gain sature [28]. Cela veut dire qu'à partir d'une certaine intensité I_{sat}, et donc dans notre cas d'une certaine valeur de puissance crête car l'aire effective de la fibre est constante, la saturation devient un paramètre atténuant. Cependant, expérimentalement, nous sommes loin de la saturation, en particulier car nous nous plaçons en régime impulsionnel. A titre d'exemple, si nous considérons les impulsions les plus longues que nous utiliserons dans les derniers chapitres de cette thèse (10 ps), l'intensité de saturation est alors de 1000 TW/cm² alors que notre intensité effective est de 10 TW/cm² pour une valeur typique de puissance utilisée (10 W moyens à une cadence de 250 kHz). La valeur d'intensité de saturation augmentant avec la diminution de la durée des impulsions, nous sommes effectivement loin de saturer notre milieu.

II.3. Equations de mouvement

Dans cette section, nous exploitons les expressions de la polarisation du milieu déduite plus haut, et le couplage entre les différentes quantités physiques pour résoudre l'équation (2.1) de façon plus simple. En limitant le champ électromagnétique à ses composantes spectrales de pompe et du Stokes, et procédant aux approximations

Licence CC BY-NC-ND 3.0

classiques telles que l'enveloppe lentement variable, l'équation (2.1) se réduit à un système d'équations différentielles ordinaires de premier ordre. Celles-ci comprennent l'évolution à la fois de la polarisation moléculaire, de la population du milieu et des champs de la pompe et du Stokes. Ces équations sont écrites en fonction de la polarisabilité et dans le référentiel de l'impulsion de pompe ($\tau = t - z/v$), comme suit [37]:

$$\frac{\partial Q^*}{\partial \tau} + \Gamma Q^* = -i\kappa_1 E_L^* E_S \qquad (2.48\ (a))$$

$$\frac{\partial \Delta N}{\partial \tau} + \gamma \Delta N = i\frac{1}{8\hbar}\left(\frac{\partial \alpha}{\partial q}\right)(E_L E_S^* Q^* - E_L^* E_S Q) \qquad (2.48\ (b))$$

$$\frac{\partial E_S}{\partial z} = -i\frac{\omega_S}{n_S}\kappa_2 E_L Q^* \qquad (2.48\ (c))$$

$$\frac{\partial E_L}{\partial z} = -i\frac{\omega_L}{n_L}\kappa_2 E_S Q \qquad (2.48\ (d))$$

$$\kappa_1 = \frac{1}{4m\Omega_R}\left(\frac{\partial \alpha}{\partial q}\right) \qquad \kappa_2 = \frac{\pi}{c}N\left(\frac{\partial \alpha}{\partial q}\right)$$

Ici, κ_1 et κ_2 représentent des constantes de couplage reliées à la polarisabilité du milieu. Elles montrent que cette dernière est liée à la fois au champ électrique et au mouvement des molécules. La validité de ces équations est limitée au cas où la fraction de population à l'état Raman par effet thermique est négligeable. Ce qui concerne tous les cas traités pendant ces travaux de thèse, car la plus petite fréquence Raman est supérieure à 10 THz (17,6 THz pour la transition rotationnelle, se référer à la section II.6 de ce chapitre traitant de la molécule d'hydrogène).

Comme pour l'expression de la polarisation, les équations de mouvement de la DRS peuvent s'écrire en fonction de la susceptibilité. Nous reproduisons ces équations ci-dessous en rajoutant la composante Anti-Stokes au champ en interaction :

$$\frac{\partial Q^*}{\partial \tau} + \Gamma Q^* = -i\kappa_1\left(E_L^* E_S + E_{AS} E_L^* e^{i\Delta\beta z}\right) \qquad (2.49\ (a))$$

Licence CC BY-NC-ND 3.0

$$\frac{\partial \Delta N}{\partial \tau} + \gamma \Delta N = i\frac{1}{8\hbar}\left(\frac{\partial \alpha}{\partial q}\right)\left(E_L E_S^* Q^* - E_L^* E_S Q + E_L^* E_{AS} Q^* e^{i\Delta\beta z} - E_L E_{AS}^* Q e^{-i\Delta\beta z}\right) \quad (2.49\ (b))$$

$$\frac{\partial E_S}{\partial z} + \frac{\alpha_S}{2}E_S = -i\frac{\omega_S}{n_S}\left[\kappa_2 E_L Q^* + \chi_{NR}^{(3)}(-\omega_S;\omega_L,-\omega_L,\omega_S)|E_L|^2 E_S + \chi_{NR}^{(3)}(-\omega_S;\omega_L,\omega_L,-\omega_{AS})E_L^2 E_{AS}^* e^{i\Delta\beta z}\right] \quad (2.49\ (c))$$

$$\frac{\partial E_{AS}}{\partial z} + \frac{\alpha_{AS}}{2}E_{AS} = -i\frac{\omega_{AS}}{n_{AS}}\left[\kappa_2 E_L Q E^{-i\Delta\beta z} + \chi_{NR}^{(3)}(-\omega_{AS};\omega_L,-\omega_L,\omega_{AS})|E_L|^2 E_{AS} + \chi_{NR}^{(3)}(-\omega_{AS};\omega_L,\omega_L,-\omega_S)E_L^2 E_S^* e^{-i\Delta\beta z}\right] \quad (2.49\ (d))$$

$$\frac{\partial E_L}{\partial z} + \frac{\alpha_L}{2}E_L = -i\frac{\omega_L}{n_L}\left[\kappa_2\left(E_S Q + E_{AS} Q^* e^{i\Delta\beta z}\right) + \chi_{NR}^{(3)}(-\omega_L;\omega_S,-\omega_S,\omega_L)|E_S|^2 E_L + \chi_{NR}^{(3)}(-\omega_L;\omega_{AS},-\omega_{AS},\omega_L)|E_{AS}|^2 E_L + \chi_{NR}^{(3)}(-\omega_L;\omega_S,\omega_{AS},-\omega_L)E_S E_{AS} E_L^* e^{i\Delta\beta z}\right] \quad (2.49\ (e))$$

Comparées aux équations d'avant, la susceptibilité nous permet à la fois une formulation plus compacte et de mettre en évidence les composants du champ générés par mélange d'ondes. Dans ce cadre, les équations illustrent clairement que le mélange d'ondes impacte aussi bien la cohérence Raman et la population des molécules excitées que tous les composants spectraux du champ en interaction. Aussi, les équations mettent en évidence l'effet Kerr sur ces composantes du champ.

Enfin, nous pouvons utiliser l'approche semi-classique pour écrire les équations de mouvement de la DRS. Dans ce cadre, nous écrivons chaque composante du champ comme suit :

$$E(x,y,z,t) = \frac{1}{2}A\left(z, t - \frac{z}{v_g}\right)F(x,y)e^{-i\omega_0 t}e^{i\beta(\omega_0)z} + c.c. \quad (2.50)$$

où ω_0 est la fréquence centrale, $\beta(\omega)$ est le nombre d'onde (dépendant de la fréquence) du mode propre $F(x,y)$. $v_g = [\partial\beta(\omega)/\partial\beta(\omega_0)]^{-1}$, et $A(z, t - z/v_g)$ représente

Licence CC BY-NC-ND 3.0

l'enveloppe complexe qui caractérise l'impulsion. Remarquons que toutes les lignes discrètes Raman sont recouvertes par une même enveloppe. Ceci permet une approche plus systématique et compacte que si chaque ligne spectrale possédait sa propre enveloppe. Cependant, il est nécessaire que les pas de temps dans les calculs numériques soient de durée inférieure à la période Raman, ce qui augmente la durée de calcul nécessaire. Nous faisons également l'approximation que sur toute la largeur du spectre nous restons en-dessous du niveau de la longueur d'onde centrale à cause de la bande de transmission limitée de la fibre.

L'équation de propagation de la transformée de Fourier de l'enveloppe $A(z,\omega)$ est de la forme :

$$\frac{\partial A}{\partial z} = -[\alpha(\omega+\omega_0) - i\beta(\omega+\omega_0) + i\beta(\omega_0) + \partial\beta/\partial\omega(\omega_0)(\omega-\omega_0)]A + \frac{i\omega_0}{2c\epsilon_0}P_{NL}(z,\omega) \quad (2.51)$$

avec $\alpha(\omega)$ les pertes linéiques et $P_{NL}(z,\omega)$ la transformée de Fourier de la polarisation non-linéaire Raman. Cette dernière s'exprime en fonction du temps sous la forme $P_{NL}(z,t) = Ntr(\rho(z,t)\mu)A(z,t)$ avec ρ la matrice densité du système, sans unité. μ est la matrice du moment dipolaire et N la densité de particules. Les propriétés non-linéaires du système sont déterminées par l'évolution temporelle des composantes de la matrice ρ : $\rho_{12} = \rho_{21}^*$ et $\rho_{22} = 1 - \rho_{11}$, donnée par les équations :

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} + \frac{1}{T_2} - i\Omega\right)\rho_{12} = \frac{1}{2\hbar}[(\alpha_{11}-\alpha_{22})\rho_{12} + \alpha_{12}\omega]|A|^2 \quad (2.52\text{ (a)})$$

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} + \frac{1}{T_1}\right)\rho_{11} = \frac{1}{T_1} - \frac{i\alpha_{12}}{4\hbar}(\rho_{12} - \rho_{12}^*)|A|^2 \quad (2.52\text{ (b)})$$

où Ω représente le décalage Raman, T_1 et T_2 respectivement les temps de relaxation de la différence de population et moléculaire, et les coefficients α les polarisabilités Raman. Pour plus de détails et pour connaître les valeurs de ces coefficients, se référer à [33]. Ces équations seront utilisées pour les calculs menés dans le chapitre IV.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

II.4. Régime temporel d'amplification du Stokes

La section précédente montre que l'équation de propagation d'un champ électromagnétique dans un milieu Raman peut se réduire à un système couplé d'équations différentielles de premier ordre. Celles-ci mettent en jeu le champ de la pompe, du Stokes, de l'Anti-Stokes, la réponse du milieu à travers les coordonnées normalisées du dipôle induit et le nombre de molécules excitées (ou bien de façon équivalente la cohérence et la différence de population). La résolution de ces équations nécessite un calcul numérique, en particulier lorsque le profil temporel du champ de la pompe est impulsionnel. Cependant, une résolution semi-analytique a été réalisée dans certains cas spécifiques tels qu'un profil carré [38]–[40].

L'intérêt de ces expressions semi-analytiques est la mise en évidence de phénomènes physiques tels que le couplage de la réponse temporelle du milieu et la structure temporelle du champ de pompe et son effet sur toute la dynamique de la DRS (seuil de la DRS, nature du champ amplifié depuis le bruit, temps de génération de l'impulsion Stokes et structure spectro-temporelle). Ici, nous reproduisons l'expression de l'intensité du champ Stokes reportée par Raymer et Mostowski [40] où une impulsion Stokes de forme carrée et de durée τ se propage sur une distance z en démarrant du bruit quantique $I_S(0) = \Gamma h \nu_S/2$. Nous négligeons la génération des Anti-Stokes et des ordres supérieurs de Stokes. L'intensité d'une impulsion Stokes générée par effet Raman stimulé est déterminée par la formule générale suivante :

$$I_S(z,\tau) = \frac{h\nu_S \Gamma g z}{2}\left(e^{-2\Gamma\tau}\left[I_0^2\left(\sqrt{2gz\Gamma\tau}\right) - I_1^2\left(\sqrt{2gz\Gamma\tau}\right)\right]\right) + h\nu_S\Gamma^2 gz\left(\int_0^\tau e^{-2\Gamma\tau'}d\tau'\left[I_0^2\left(\sqrt{2gz\Gamma\tau'}\right) - I_1^2\left(\sqrt{2gz\Gamma\tau'}\right)\right]\right) \quad (2.53)$$

I_0 et I_1 étant les fonctions de Bessel modifiées. Cette intensité est représentée en fonction de la durée d'impulsion de pompe τ normalisée par le déphasage Γ (*Figure 17*), on peut distinguer trois tendances. Si $\Gamma\tau < \tau_1$ ou $\Gamma\tau > \tau_2$ (avec $\tau_1 = T_2/G$ et $\tau_2 = T_2 G$), l'intensité du Stokes est indépendante de la durée d'impulsion. Seul un changement de gain permet de la modifier, faiblement dans le cas spontané et plus fortement dans le cas d'un régime stationnaire. Entre ces 2 cas (lorsque $\tau_1 < \tau < \tau_2$), l'intensité du

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Stokes évolue très rapidement avec la durée d'impulsion. C'est le régime dit « transitoire ».

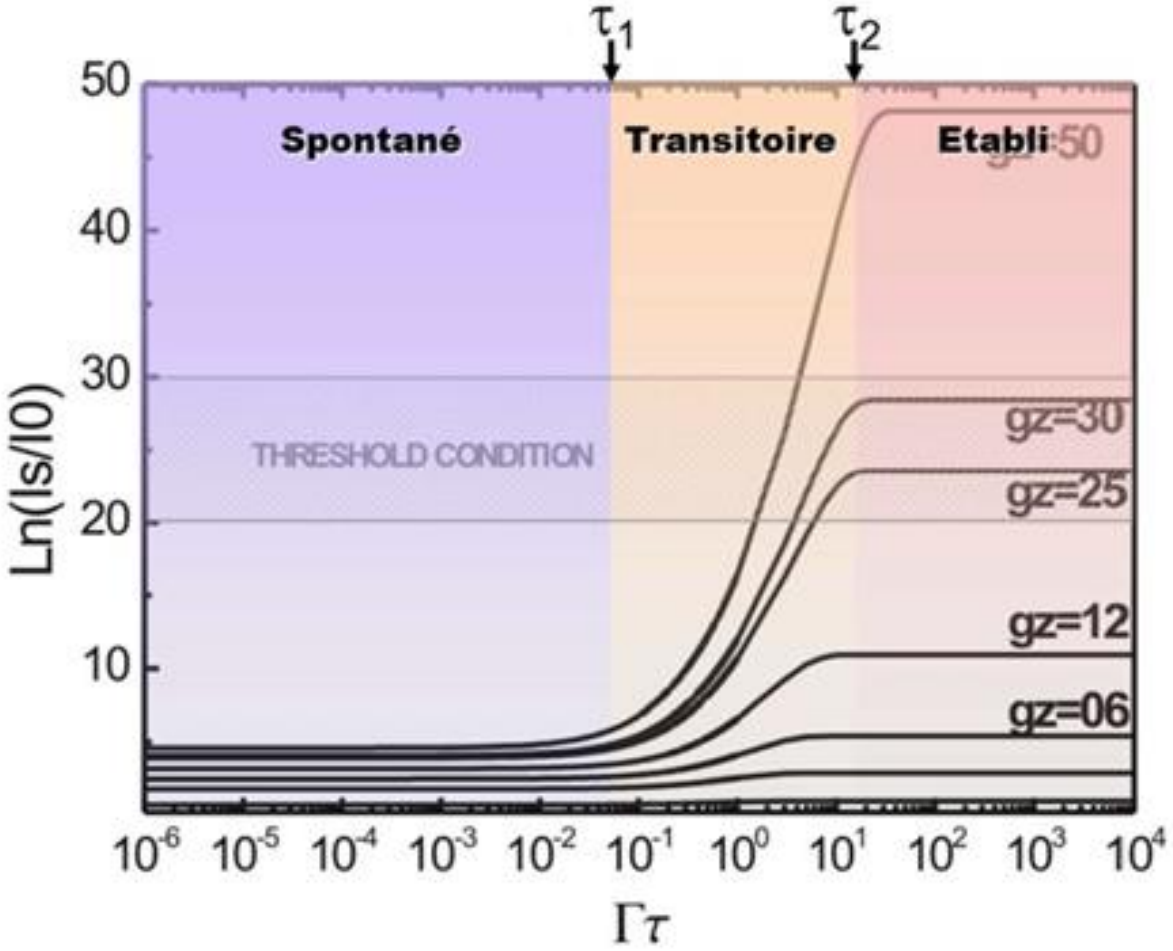


Figure 17 : Intensité du Stokes normalisée en fonction de la durée d'impulsion de pompe τ elle-même normalisée par le déphasage Γ lié essentiellement à la pression du gaz, les différentes courbes représentent des situations relatives à différentes valeurs de gain net Raman G. On peut distinguer les trois régimes de la diffusion Raman (spontané, transitoire et permanent), dont les frontières sont définies par des durées d'impulsions « limites » τ_1 et τ_2 [26].

La *Figure 18* cartographie ces différents régimes d'amplification Raman en fonction de la durée des impulsions et du gain net Raman en régime stationnaire. Elle permet d'illustrer le fait que plus le gain net augmente, plus le régime transitoire est étendu, en termes de durée d'impulsions accessibles. Cela rend ainsi possible l'amplification Raman stimulée d'impulsions courtes, voire ultra-courtes. Par exemple d'après cette figure, un gain net Raman de 10 000 rend possible la DRS avec des impulsions d'une centaine de femtosecondes (dans des conditions expérimentales où Γ = 1 GHz). Un gain net de seulement 100, place de telles durées d'impulsions dans le régime

Licence CC BY-NC-ND 3.0

spontané. Le gain net au seuil G_{th} est également illustré par la bande de gain net comprise entre 20 et 30, comme évoqué précédemment. En espace libre, il est extrêmement difficile d'atteindre des gains très élevés, ainsi la durée d'impulsion minimale autour de laquelle il est possible de réaliser une conversion de fréquences par effet Raman est de 10 ps. A l'aide de fibres creuses remplies de gaz, il est donc en théorie possible de dépasser cette limite et d'utiliser des impulsions sub-ps.

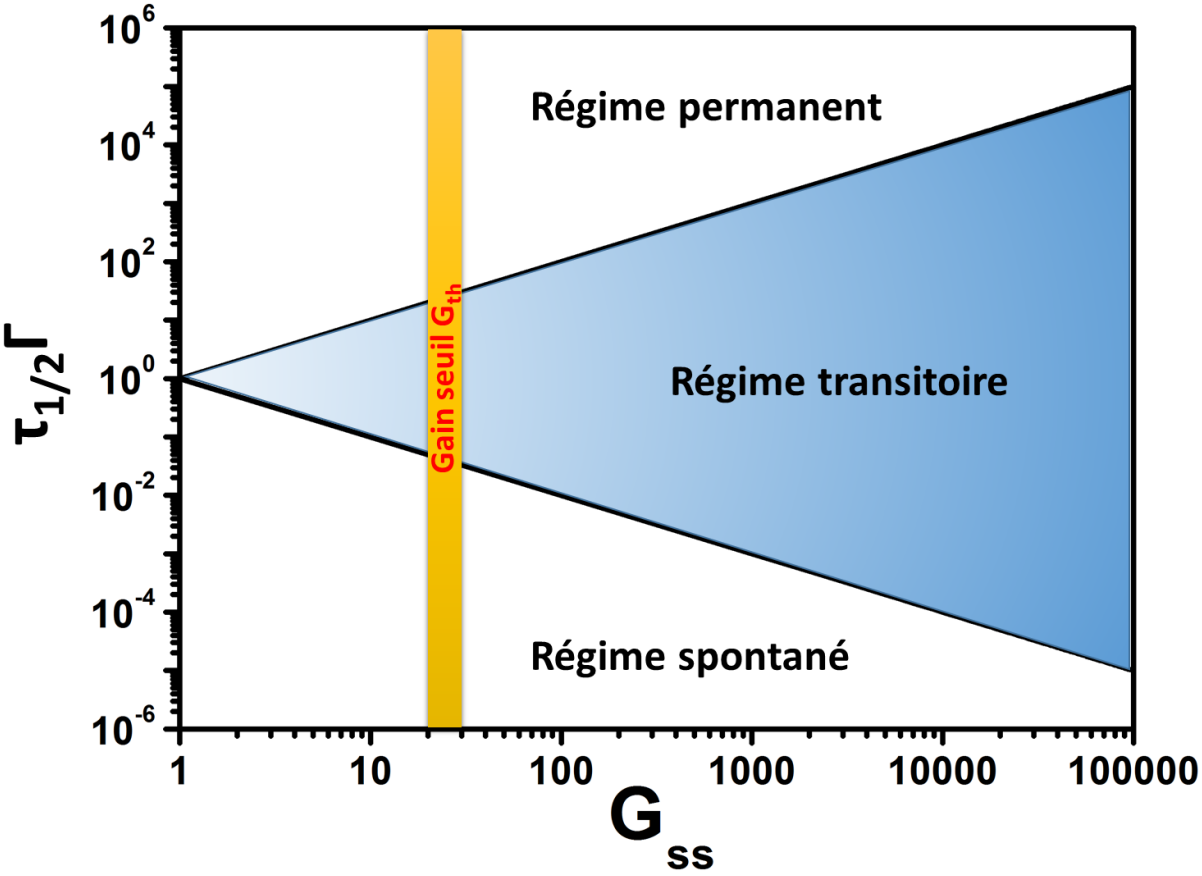


Figure 18 : Cartographie des différents régimes d'amplification Raman, en fonction de la durée de l'impulsion de pompe τ normalisée par le déphasage Γ, et du gain net Raman en régime stationnaire. Plus ce gain est fort, plus le régime transitoire est étendu à une plage large de durées d'impulsion possibles. En particulier ici pour Γ = 1 GHz, le régime transitoire est cantonné à des impulsions nanosecondes pour des gains faibles mais s'étend à des impulsions de durée inférieure à la picoseconde à partir d'un gain de 10 000. La bande jaune, représentant ici des gains nets allant de 20 à 30, représente le gain net au seuil de l'effet Raman, lorsque le Stokes sort du bruit.

Un fort gain est donc d'importance primordiale pour mes travaux de thèse en vue des objectifs visés, à savoir la conversion d'impulsions ultra-courtes vers l'infrarouge par DRS, et la synthèse d'ondes optiques impliquant la génération de larges peignes de fréquences. Mon but principal est de démontrer que leur réalisation expérimentale est possible.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Le régime spontané

Lorsque la durée de l'impulsion de pompe $\tau < \tau_1$, le régime est spontané, les modes amplifiés sont aléatoires et non-stimulés. Il est donc, par définition, impossible de générer des impulsions Stokes intenses. Dans ce cas, l'équation se simplifie de la manière suivante :

$$I_S^{SP}(z) = \frac{h\nu_S \Gamma g z}{2} \tag{2.54}$$

Le régime permanent

A l'opposé, lorsque $\tau > \tau_2$ le régime est permanent. Ici, bien que le régime soit stimulé et permette la génération d'impulsions Stokes ayant une énergie conséquente, le mouvement d'ensemble des molécules a le temps de se déphaser lors de l'amplification. L'impulsion Stokes est donc formée par des champs sans accord de phase et n'est pas cohérente. L'expression de l'intensité devient :

$$I_S^{SS}(z) \approx \frac{h\nu_S \Gamma e^{gz}}{2\sqrt{\pi g z}} \tag{2.55}$$

Le régime transitoire

Lorsque $\tau_1 < \tau < \tau_2$, le régime est dit transitoire. Ce dernier est également stimulé, or la génération du Stokes se faisant pendant une durée inférieure à T_2, les molécules n'ont pas le temps de se déphaser. Ceci conduit à la génération d'une impulsion Stokes de durée :

$$\tau_S = \frac{\tau}{\sqrt{16\Gamma G}} \tag{2.56}$$

Celle-ci peut être à durée limitée par transformée de Fourier. Dans le régime transitoire, plus la durée τ est courte, plus on tend vers l'amplification d'un seul mode temporel. De même, les fibres à guidage monomode permettent la génération et l'amplification d'ondes Stokes suivant un mode spatial privilégié, permettant *in fine* l'amplification d'un unique mode spatio-temporel (TSM : Temporal and Spatial Mode) avec une phase bien déterminée. Enfin, on remarque l'avantage technologique apporté par les fibres creuses. Celles-ci permettent en effet, grâce à un fort gain net G, de nous

Licence CC BY-NC-ND 3.0

placer en régime transitoire même avec des durées d'impulsions plus courtes qu'ordinaire car la valeur T_2/G repousse le régime spontané aux très courtes durées d'impulsions de pompe. Ceci a pour conséquences un meilleur filtrage temporel des modes d'une part, et la génération d'impulsions Stokes de durée plus courte d'autre part. Une particularité du régime transitoire est que c'est justement le seul des trois régimes possibles d'amplification du Stokes pour lequel l'intensité de ce dernier dépend de la durée de l'impulsion de pompe :

$$I_S^{TR}(z,\tau) = h\nu_S \frac{e^{\sqrt{8gz\Gamma\tau}-2\Gamma\tau}}{8\pi\tau} \tag{2.57}$$

Il faut donc garder en mémoire que, pour générer des impulsions Stokes plus puissantes, il faut venir pomper le milieu Raman avec une impulsion de pompe de plus longue durée. Or, le fort gain net G des fibres creuses permet d'éloigner le régime permanent aux très longues durées d'impulsions de pompe. Ainsi il est possible de rester en régime transitoire même en utilisant des lasers de pompe nanoseconde, afin de générer des ondes Stokes plus puissantes. En résumé, il y a un compromis à trouver entre le filtrage temporel et la possibilité des générer des impulsions Stokes cohérentes à durée limitée par transformée de Fourier d'une part, et des impulsions Stokes puissantes d'autre part.

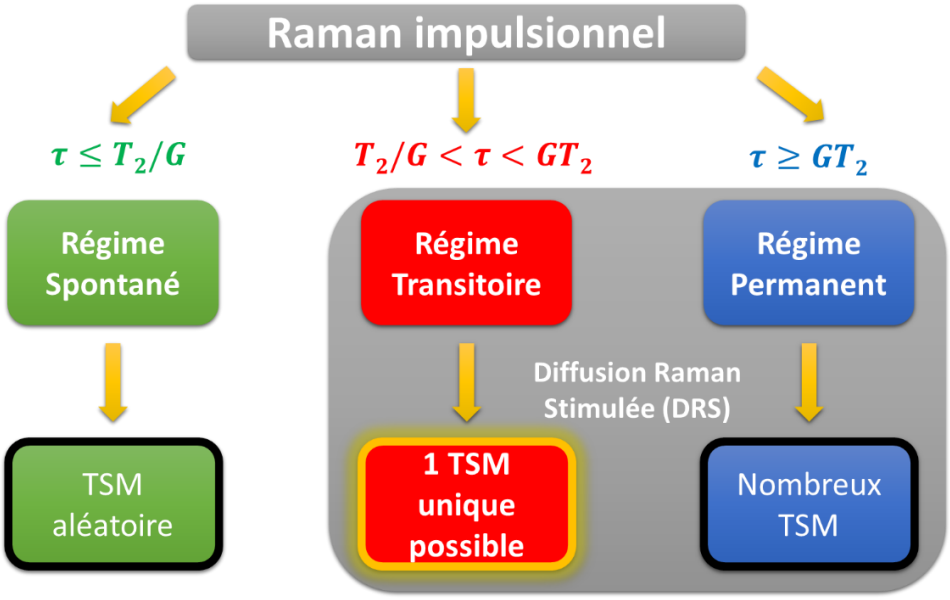


Figure 19 : Présentation des différents régimes Raman impulsionnels, des conditions pour lesquelles ils sont valides, et de leur conséquence sur la génération et la cohérence de l'onde Stokes résultante.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Il est pratique de garder la forme d'expression donnée pour le régime stationnaire et écrire $I_S^{(tr)}(\tau, z) = I_0 e^{G_{tr}}$. Ici G_{tr} est le gain net du Stokes en régime transitoire. Il est relié au G_{SS} par :

$$G_{tr} = \sqrt{8G_{SS}\Gamma\tau} - 2\Gamma\tau + \ln\left(\frac{h\nu_S}{8\pi\tau}\right) \tag{2.58}$$

Seuil d'énergie pour les régimes permanent et transitoire

Afin d'identifier expérimentalement les régimes d'amplification Raman, il est possible de mesurer l'évolution de l'intensité du Stokes en fonction de la durée d'impulsion. Cependant, ceci est rendu difficile par les faibles niveaux d'amplification atteints dans le régime transitoire et par la nécessité d'avoir un laser de pompe dont la durée d'impulsion est accordable tout en conservant une puissance crête stable. Il est plus facile d'étudier l'évolution du seuil d'énergie nécessaire à une conversion efficace vers une onde Stokes, ceci en fonction de la durée des impulsions de pompe, pour déterminer dans quel régime le système se situe, une telle étude étant moins exigeante sur la stabilité du laser.

De manière à être détectable expérimentalement, l'intensité du Stokes doit croître jusqu'à atteindre un niveau tel que $\ln(I_S/I_S^{noise}) = G_{th}$, où le gain net Raman au seuil G_{th} est une constante dont la valeur se situe entre 15 et 30. Cela correspond à une augmentation de l'intensité du Stokes I_S d'un facteur 10^{12} par rapport à I_S^{noise}. En utilisant les approximations analytiques de l'évolution du Stokes dans le régime permanent, cette condition au seuil devient :

$$\frac{g_{SS}z}{A_{eff}} P_{L,SS}^{threshold} - \frac{\ln\left(\pi \frac{g_{SS}z}{A_{eff}} P_{L,SS}^{threshold}\right)}{2} = G_{th} \tag{2.59}$$

Pour un fort gain, le terme logarithmique dans le terme de gauche de l'équation devient petit. Ainsi, l'expression du seuil de l'énergie de pompe nécessaire[1] $E_{L,SS}^{threshold}(\tau) = P_{L,SS}^{threshold}\tau$ peut se simplifier :

[1] Dans le cas d'une impulsion de durée τ

Licence CC BY-NC-ND 3.0

$$E_{L,SS}^{threshold}(\tau) \approx \frac{G_{th}A_{eff}}{g_{SS}L_{int}}\tau \tag{2.60}$$

où L_{int} est la longueur effective d'interaction. De manière similaire, le seuil d'énergie dans le régime transitoire est :

$$E_{L,SS}^{threshold}(\tau) \approx \frac{A_{eff}}{8\Gamma g_{SS}L_{int}}(G_{th} - \ln[4\pi\Gamma\tau] + 2\Gamma\tau)^2 \tag{2.61}$$

Enfin, dans le régime spontané on a :

$$E_{L,SS}^{threshold}(\tau) \approx \frac{e^{G_{th}}A_{eff}}{g_{SS}L_{int}}\tau \tag{2.62}$$

L'évolution numérique et les approximations analytiques calculées ici sont tracées dans la *Figure 20* pour un gain net Raman au seuil G_{th} = 17. Comme cela sera illustré plus tard dans le chapitre 5, des distinctions claires peuvent être faites dans l'évolution de $E^{threshold}(\tau)$ dans ces 3 régimes d'amplification. Ces dernières peuvent être utilisées pour déterminer dans quel cas se situe le système en fonction de la durée des impulsions de pompe. En particulier, nous sommes intéressées de savoir quelle est l'énergie minimale nécessaire pour être en régime stimulé.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

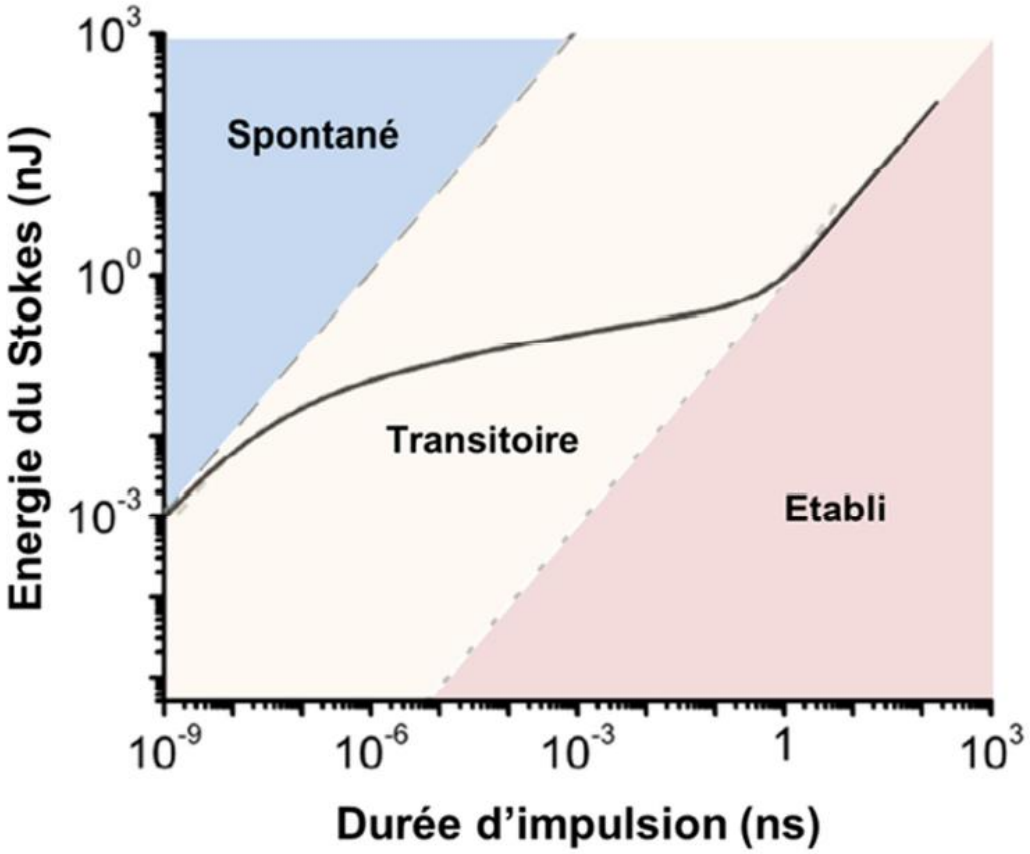


Figure 20 : Evolution de l'énergie du Stokes et des trois différents régimes de diffusion Raman stimulée : le régime transitoire, le régime stationnaire et le régime spontané en fonction de la durée d'impulsion du laser de pompe. Evolution calculée pour une fibre creuse de 15 m, de 10 µm de diamètre de cœur, avec des pertes de 60 dB/km, remplie de 12 bars de H_2 et pompée à 1064 nm [27].

II.5. Description modale du champ Stokes

Dans le traitement de la DRS donné ci-dessus la nature du champ Stokes induit par les fluctuations du vide n'a pas été développée au-delà de l'identification de sa source quantique. Comme c'est ce champ qui est amplifié dans le processus de la DRS, connaitre sa structure spectro-temporelle et son effet sur la dynamique de celle-ci est capital. Raymer et ses collaborateurs [41] ont proposé une description modale. Cette dernière a été exploitée dans la génération de peignes Raman cohérents [18], [25]. Dans ce cadre, le contenu modal et la structure temporelle du champ Stokes généré par les fluctuations quantiques est une somme de modes spatio-temporels cohérents et indépendants, et décomposés en série de Karhunen-Loève [17], [42] :

$$E_S(\rho, L, \tau) = \sqrt{2\pi\hbar\omega_S n_S / c}\left(\sum\nolimits_n \left(\sum\nolimits_k b_k^{(n)}\,\psi_k\right)\sqrt{\beta_n}\,\phi_n(\rho)\right) \qquad (2.63)$$

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Les fonctions des modes sont orthonormées :

$$\int \psi_k(\tau)\, \psi_l^*(\tau)\, d\tau = \delta_{kl}$$

$$\int \Phi_k(\rho)\, \Phi_l^*(\rho)\, d\rho = \delta_{kl}$$

Les opérateurs b_k ne sont pas corrélés, $\langle b_k^*\, b_l \rangle = \lambda_k \delta_{kl}$ où λ_k est le nombre moyen de photons émis dans le mode temporel $\psi_k(\tau)$. β_n est la fraction de photons émis dans le mode spatial $\phi_n(\rho)$, sa somme doit donc être égale à 1 : $\sum_n \beta_n = 1$.

Dans une configuration où la propagation se déroule dans un guide d'onde tel qu'une fibre optique, les modes spatiaux $\phi_n(\rho)$ se réduisent à ceux du guide ($\phi_n|\rho\rangle = HE_{11}$) (se référer au chapitre III), et le mode spatial dominant dans la dynamique de l'amplification du Stokes est celui associé au gain Raman le plus fort. En pratique, ce dernier correspond au monde fondamental du guide.

Concernant les modes temporels cohérents, on détermine les plus dominants dans la DRS en suivant l'approche rapportée par Raymer *et al.* [43]. Celle-ci réduit la détermination de ces modes à l'équation aux valeurs propres suivante :

$$\frac{A_{eff}}{2\pi\hbar\omega_S} \int_{-\infty}^{+\infty} E_S(L,\tau) E_S^*(L,\tau') \Psi_k(\tau') d\tau' = \lambda_k \Psi_k(\tau) \qquad (2.64)$$

Ici λ_k est la valeur propre du mode temporel $\Psi_k(\tau)$. L'amplitude de cette valeur propre est directement liée à l'énergie portée par le champ du Stokes lors du passage de l'impulsion de pompe. Aussi, les résultats numériques [44] ont montré que ces valeurs propres des modes temporels dépendent du gain net Raman en régime permanent gz, et de la durée d'impulsion normalisée $\Gamma\tau$. En particulier, plus $\Gamma\tau/gz$ décroit plus un seul mode propre ($\Psi_1(\tau)$) domine sur le reste des modes, et plus $\Gamma\tau/gz$ croit plus un grand nombre de modes temporels participe à la génération du Stokes par DRS. Par conséquent, une impulsion Stokes avec un large $\Gamma\tau/gz$ correspond à une impulsion avec une faible cohérence de phase. Au contraire lorsque $\Gamma\tau/gz$ est petit, c'est-à-dire pour le cas d'une impulsion de pompe courte ($\tau \ll T_2$) et pour un large gain net Raman, le Stokes est amplifié à partir d'un seul paquet d'onde (état quantique pur) pour donner une impulsion à durée limitée par transformée de Fourier. C'est cette

Licence CC BY-NC-ND 3.0

propriété que Benabid et ses collaborateurs ont exploité pour la première fois pour générer un large peigne Raman cohérent à partir d'une impulsion de pompe donnée [18], [25]. Afin de donner une idée sur la manière dont les valeurs propres des modes temporels évoluent avec gz et $\Gamma\tau$, nous prenons une approximation de l'équation (2.64) qui nécessite une résolution numérique. Cette approximation se réduit à déterminer les valeurs propres de la matrice carrée suivante :

$$A_{ij} = \begin{cases} \frac{2gz\,\Gamma\tau}{M}\left(I_0\left(\sqrt{2gz\,\Gamma\tau\left(1-\frac{i}{M}\right)}\right)^2 - I_1\left(\sqrt{2gz\,\Gamma\tau\left(1-\frac{i}{M}\right)}\right)^2\right) & if\ i=j \\ \frac{\sqrt{2gz\,\Gamma\tau}}{j-i}\left(\sqrt{1-\frac{i}{M}}I_0\left(\sqrt{2gz\,\Gamma\tau\left(1-\frac{i}{M}\right)}\right)I_1\left(\sqrt{2gz\,\Gamma\tau\left(1-\frac{i}{M}\right)}\right) - \sqrt{1-\frac{j}{M}}I_0\left(\sqrt{2gz\,\Gamma\tau\left(1-\frac{j}{M}\right)}\right)I_1\left(\sqrt{2gz\,\Gamma\tau\left(1-\frac{i}{M}\right)}\right)\right) & i\neq j \end{cases}$$

Ici *M* représente la dimension de la matrice, et les valeurs propres sont les coefficients λ_i évoqués précédemment. La *Figure 21(a)* décrit l'amplitude du mode λ_1 en fonction du gain net (multiplié par la durée d'impulsion normalisée $\Gamma\tau$), très rapidement et avec un gain net de « seulement » 100, cette amplitude prend des valeurs considérables. Cette même figure montre les ratios des différentes valeurs propres λ_2, λ_3, etc…. avec λ_1. Pour un gain net Raman de 0, toutes les valeurs propres sont égales, et donc tous les modes peuvent être amplifiés avec la même probabilité. Un gain net de 10 permet déjà de voir un mode (λ_1) commencer à se détacher par rapport aux autres, bien que sa domination soit encore toute relative ($\lambda_2/\lambda_1 \sim 0{,}9$). Si on augmente encore le gain, on constate que ce ratio (ainsi que celui des autres modes λ_3/λ_1 , λ_4/λ_1 et ainsi de suite) ne fait que diminuer, montrant qu'une valeur propre et donc un mode se détache clairement des autres en termes de probabilité d'amplification. De la même manière que lorsque l'on cherche à ce qu'un laser voit son émission dépasser le niveau de bruit de 30 dB afin de le définir comme tel, nous cherchons ici à obtenir un ratio de 30 dB entre le premier mode et le second afin de justifier l'amplification d'un unique mode. C'est ce que montre la *Figure 21(b)*, pour laquelle l'écart entre l'amplitude de λ_1 et celle de λ_2 a été tracé en fonction du gain net. On remarque que plus ce dernier est élevé, plus l'écart est important. Les 30 dB sont atteints pour un gain net Raman d'environ 3 000 dans cet exemple. Une telle valeur de gain net est possible avec l'utilisation de fibres creuses remplies de gaz comme milieu actif Raman.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

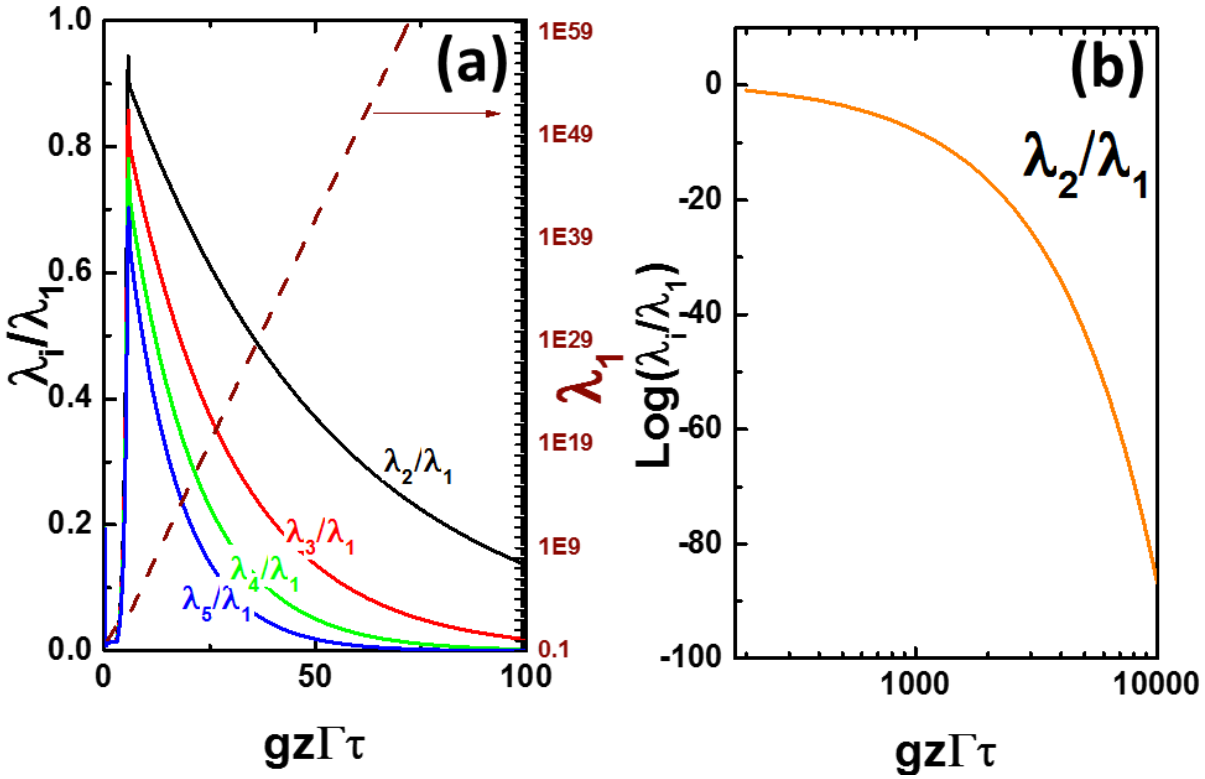


Figure 21 : (a) Ratios des différentes valeurs propres λ_i par rapport à λ_1 en fonction du produit du gain net Raman avec la durée d'impulsions normalisée. Ces ratios chutent rapidement avec le gain, montrant ainsi la favorisation de l'amplification d'un mode par rapport aux autres. (b) écart entre les valeurs propres λ_1 et λ_2 en fonction, là aussi, du même produit. Comme cité dans le texte, un écart de 30 dB est obtenu pour un gain d'environ 3 000.

Pour résumer, on peut dire qu'afin de bénéficier d'un rayonnement cohérent par effet Raman, que cela soit dans le but de réaliser une synthèse d'ondes optiques ou une conversion de fréquences pour des impulsions courtes, les meilleures conditions sont les suivantes : premièrement avoir un gain net Raman le plus élevé possible, puis utiliser des impulsions de pompe ayant la plus courte durée possible. La première condition rend la seconde possible en étendant le régime transitoire à des durées d'impulsions de plus en plus courtes. Elle permet aussi comme nous venons de le voir de favoriser l'amplification d'un unique mode spatio-temporel par rapport aux autres. Une onde Stokes peut ainsi être amplifiée avec une phase bien déterminée et donc être cohérente, ce qui est utile en vue de réaliser la synthèse d'un train d'impulsions ultra-courtes par effet Raman. Enfin, utiliser des impulsions de pompe ultra-courtes dans le cas d'un fort gain net permettra la génération d'impulsions Stokes également ultra-courtes en vue de réaliser de nouvelles sources laser par effet Raman, par exemple dans l'infrarouge.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

II.6. Diffusion Raman dans l'hydrogène

II.6.1. Transitions mises en jeu

Lorsqu'une molécule d'hydrogène (H_2) est excitée par un photon de pompe, elle peut-être excitée de diverses manières. Elle peut entrer en vibration, en rotation, ou les deux à la fois (on parle alors de ro-vibration). A ces différents types d'excitation correspondent des niveaux d'énergie accessibles pour la molécule. Les transitions vibrationnelles sont définies par le nombre quantique v et la règle de sélection $\Delta v = 0, \pm 1, \pm 2, \ldots$ Chaque niveau d'énergie vibrationnel possède une sous-structure de niveaux d'énergie rotationnels. Ceux-ci sont définis par le nombre quantique J et la règle de sélection $\Delta J = 0, \pm 2, \ldots$ A température ambiante, 75% des molécules d'hydrogène ont leur 2 spins parallèles (ortho-hydrogène, $J = 1$) et seulement 25% les ont antiparallèles (para-hydrogène, $J = 0$) [45]. Dans le cadre de ces travaux, nous serons principalement concernés par la transition vibrationnelle pure ($Q_{01}(1)$) à 125 THz, et la transition rotationnelle ($S_{00}(1)$) à 17,6 THz (*Figure 22*).

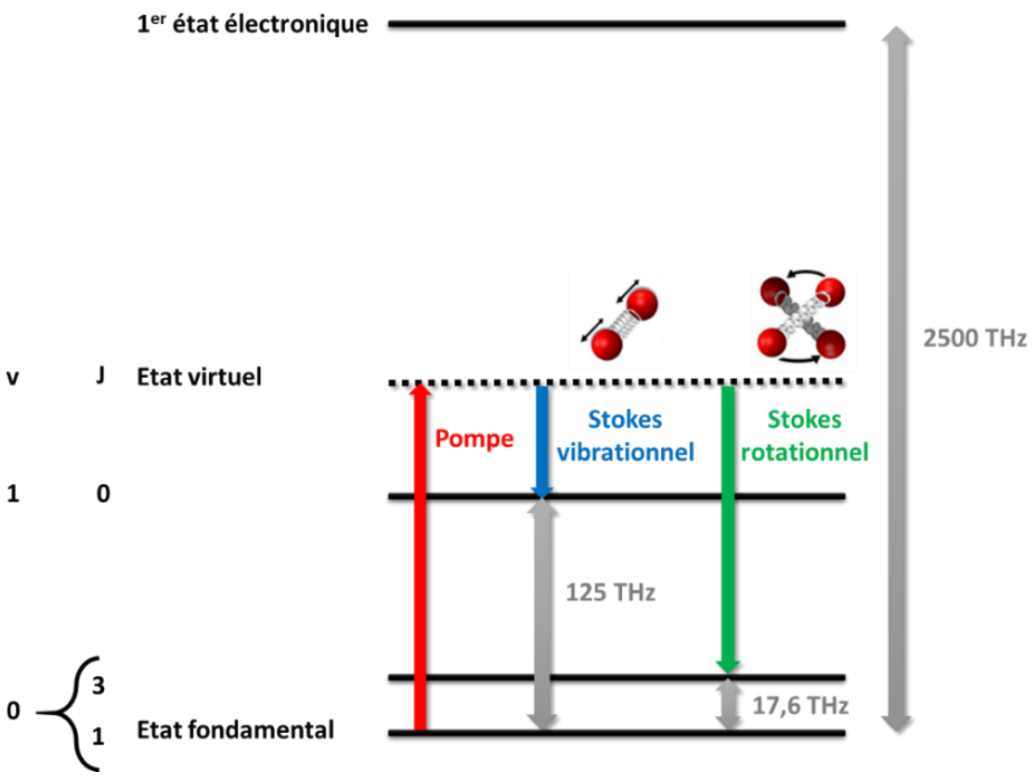


Figure 22 : Représentation schématique des niveaux d'énergie accessibles par effet Raman lors de l'excitation d'une molécule d'hydrogène. Les 2 principales résonances, une vibrationnelle avec un décalage de 125 THz et l'autre rotationnelle avec un décalage de 17,6 THz, sont très éloignées des transitions électroniques.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

II.6.2. Déphasage Raman

Le déphasage est une donnée à prendre en considération, car il est un facteur limitant dans deux cas de figure. Tout d'abord, il a une influence directe sur le coefficient de gain Raman g_{SS} [40]. En effet, plus le déphasage est important plus le gain est réduit, ce qui a pour conséquence de réduire la cohérence du signal Stokes. Le déphasage total dépend généralement du déphasage inhérent au laser de pompe, de celui des collisions des molécules avec les parois et enfin à la transition Raman elle-même. Dans le cas présent, nous négligeons le premier. De plus, nous négligeons également le déphasage apporté par les collisions des molécules avec les parois internes du cœur de la fibre creuse car nous utilisons une forte pression (20 bars) pour le gaz d'hydrogène au sein de celle-ci. Or, il a précédemment été montré que le déphasage collisionnel avec les parois était négligeable au-delà de 10 bars environ. Le libre parcours moyen des molécules devenant petit devant le diamètre du cœur de la fibre.

Le déphasage Raman dépend du type de transition (vibrationnelle ou rotationnelle) considéré. En 1986, Bischel, Dyer et Herring ont déterminé empiriquement des équations permettant de déterminer le déphasage intrinsèque (en MHz) à ces deux types de transitions dans l'hydrogène, dans une configuration en espace libre [46], [47]. Concernant tout d'abord la transition vibrationnelle, la formule est la suivante :

$$\Gamma_{vib} = \frac{309}{(\rho + p)}\left(\frac{T}{298}\right)^{0,92} + [51{,}8 + 0{,}152\,(T - 298) + 4{,}85 \times 10^{-4}\,(T - 298)^2]\rho \tag{2.66}$$

Avec T la température en Kelvin, ρ la densité moléculaire du gaz exprimée en amagat (amg). Celle-ci dépend de la pression et de la température comme suit :

$$\rho = \frac{T_0}{T}\frac{P}{P_0} \tag{2.67}$$

où P est la pression du gaz en atmosphères (atm), et P_0 et T_0 sont les conditions standards de pression (1 atm) et de température (273,15 K). Le paramètre p est un facteur correctif (p = 0.286 amg à 298 K), absent des travaux cités en [46], [47]. En ce qui concerne la transition rotationnelle, il n'existe pas d'équation directe permettant de calculer le déphasage. On utilise une formule générale de la forme :

Licence CC BY-NC-ND 3.0

$$\Gamma_{rot} = \frac{A}{p + \rho} + B\rho \tag{2.68}$$

B est un coefficient d'élargissement dû à la pression du gaz dont la valeur est de 108 MHz/amg à 298 K. Le paramètre correctif p vaut ici 3,8.10^{-2} amg, à 298 K également. Enfin, le coefficient A est proportionnel au coefficient de diffusion D_0 de par la formule :

$$A = 4\pi k_R^2 D_0(\rho) \tag{2.69}$$

avec k_R^2 le nombre d'onde de la transition Raman (ici 586,9 cm^{-1}). $D_0(\rho)$ quant à lui, s'obtient grâce à l'équation suivante :

$$D_0 = \frac{186.10^{-5} T^{3/2}}{1{,}273 P \sigma_{\text{Å}}^2} \sqrt{\frac{2}{MW}} \tag{2.70}$$

où $\sigma_{\text{Å}}$ est la section efficace de la molécule d'hydrogène exprimée en Angstroms et valant 2,827 Å. MW est sa masse moléculaire valant 2,02 uma. Dans nos conditions expérimentales $D_0(\rho)$ vaut ainsi 1,42 cm^2.amg.s^{-1}.

II.6.3. Coefficients de gain Raman correspondants

L'efficacité de la DRS dépend, en partie, du coefficient de gain Raman en régime stationnaire g_{SS}. Il est possible d'optimiser la génération des ondes Stokes (et par conséquent des peignes de fréquences) en jouant sur différents paramètres dont dépend ce coefficient. Dans nos montages expérimentaux, la longueur d'interaction est en première approximation égale à celle de la fibre et peut donc atteindre plusieurs mètres, nous faisons ainsi l'hypothèse que le coefficient de gain Raman est égal au gain Raman en onde plane α. Les expressions de ce dernier pour les transitions vibrationnelle et rotationnelle sont données par les formules de Bischel et Dyer [48] :

$$\alpha_{vib} = 9{,}37.10^6 \frac{52\rho}{\Gamma} \frac{k_B}{0{,}658} (\nu_L - 4155)(7{,}19.10^9 \nu_L^2)^{-2} \tag{2.71 (a)}$$

$$\alpha_{rot} = 2{,}427.10^8 \frac{\rho}{\Gamma} (\nu_L - 586{,}9)(7{,}19.10^9 - \nu_L^2)^{-2} \tag{2.71 (b)}$$

Licence CC BY-NC-ND 3.0

k_B représente le facteur de population de Boltzmann (égal à 0,658 à 295 K) et ν_L est la fréquence du laser de pompe exprimée en nombre d'onde (cm^{-1}).

Les valeurs de gain sont représentées en fonction de la pression du gaz (*Figure 23*) on constate qu'un choix judicieux de la pression permet de favoriser la génération soit des lignes vibrationnelles (P > 2 bars) soit des lignes rotationnelles (P < 2 bars). Le choix de la longueur d'onde de pompe est également crucial comme le montre la *Figure 23*, le gain augmentant fortement lorsque l'on diminue la longueur d'onde.

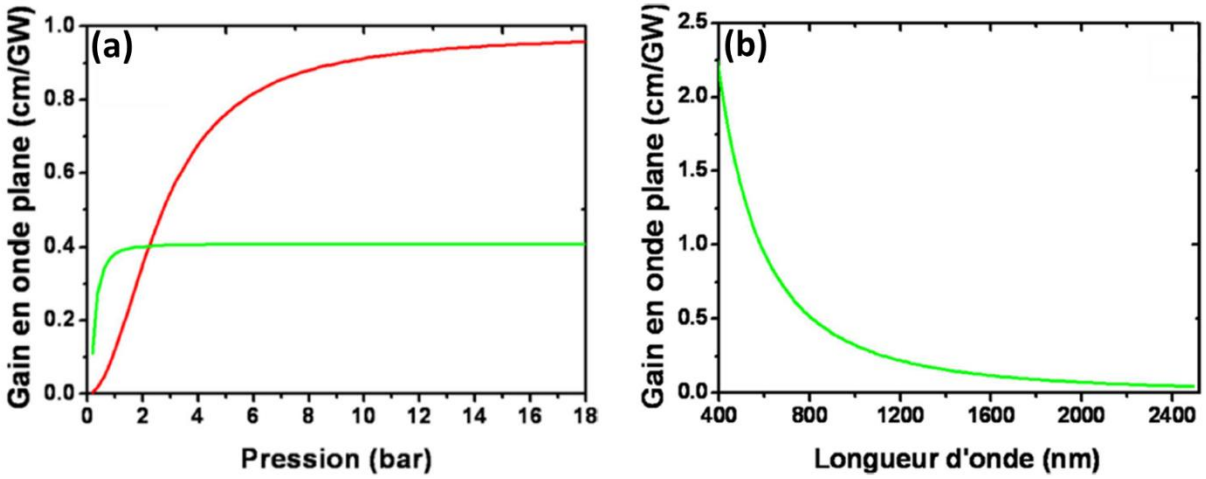


Figure 23 : (a) Gain Raman en fonction de la pression de gaz dans la fibre pour les transitions vibrationnelle (rouge) et rotationnelle (vert), (b) gain Raman pour la transition rotationnelle en fonction de la longueur d'onde de pompe [26].

II.6.4. Effet de la polarisation

La polarisation joue elle aussi un rôle. Bien que la génération des ondes Stokes vibrationnelles soit indépendante de la polarisation, ce n'est pas le cas de la génération des ondes Stokes rotationnelles [49]. Cette dernière est en effet facilitée par une polarisation circulaire de l'onde de pompe. A titre d'illustration, le tableau suivant donne les valeurs de gain Raman rotationnel relatives en fonction de la polarisation des ondes de pompe et Stokes.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Polarisation	Pompe	Stokes	Gain Raman
Circulaire			α_{rot}
			$\alpha_{rot}/6$
Linéaire			$2.\alpha_{rot}/3$
			$\alpha_{rot}/2$

Tableau 2 : Dépendance du gain Raman en fonction de la polarisation de l'onde de pompe et celle de l'onde Stokes.

II.7. Résumé

Pour conclure, ce chapitre aura permis de passer en revue deux formalismes (classique et semi-classique, chacun ayant ses forces et ses faiblesses pour modéliser le phénomène physique de la DRS) permettant dans chaque cas de déterminer le gain Raman en régime stationnaire qui est un paramètre primordial pour les travaux présentés tout au long de ce mémoire. Nous avons traité en particulier une variable fondamentale qui est la polarisation, elle-même liée à la susceptibilité, et passé en revue ses différentes contributions (Raman, Kerr, mélange à 4 ondes).

Les équations du mouvement ont ensuite permis de caractériser, dans le temps et l'espace, les grandeurs caractéristiques du phénomène de DRS dans une fibre creuse : le champ de la pompe et celui du Stokes du point de vue de la lumière, mais aussi la différence de population et la cohérence liée aux dipôles induits d'un point de vue de la matière.

Les différents régimes d'amplification du Stokes ont été décrits, et cela aura permis de comprendre en quoi le régime transitoire est le régime d'intérêt concernant les objectifs de ces travaux de thèse et leur réalisation expérimentale. Dans le détail : regarder quelles sont les perspectives vis-à-vis d'un nouveau type de laser à blocages de modes Raman (Chapitre IV), d'étendre le régime transitoire par un fort gain et ainsi « repousser » la durée limite τ_1 aux durées d'impulsions ultra-courtes (Chapitre V), réaliser une source IR ultra-courte basée sur la conversion de fréquences par effet Raman (Chapitre VI), de structurer un peigne en supercontinuum en jouant sur les

Licence CC BY-NC-ND 3.0

effets Kerr et Raman (Chapitre VII) et enfin de réaliser la synthèse d'un train d'impulsions ultra-courtes (Chapitre VIII).

Tout ceci est enfin mis en perspective par la présentation des propriétés de la molécule d'hydrogène qui sera le gaz utilisé tout au long des travaux présentés dans les chapitres suivants.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

CHAPITRE III
Fibres creuses à gaine micro-structurée

Les fibres creuses, après avoir été fonctionnalisées par un remplissage de gaz à haute pression, forment un milieu actif Raman. C'est ce type de milieu qui sera utilisé tout au long de ces travaux de thèse. Après un chapitre sur la théorie de l'effet Raman stimulé il convient donc maintenant de présenter les fibres creuses elles-mêmes. Les différents types de fibres et leurs mécanismes de guidage respectifs sont donc ici décrits. Finalement, l'accent sera porté sur les fibres qui seront par la suite utilisées. Leurs caractéristiques seront présentées et leur choix justifié.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

III.1. Introduction aux différents mécanismes de guidage

Dans le domaine des fibres optiques, il existe trois mécanismes de guidage distincts : la Réflexion Totale Interne (RTI), le principe de Bande Interdite Photonique (BIP, ou PBG en anglais) et le Couplage Inhibé (IC). La *Figure 24* résume de manière schématique le contenu modal du cœur et de la gaine de ces différentes architectures, pour une fréquence donnée. Nous considérons une gaine de dimension infinie, et un cœur à l'échelle micrométrique. Les modes de gaine sont représentés en orange, à gauche de l'axe des indices effectifs, et les modes guidés dans le cœur sont représentés par leurs profils d'intensité à droite de cet axe.

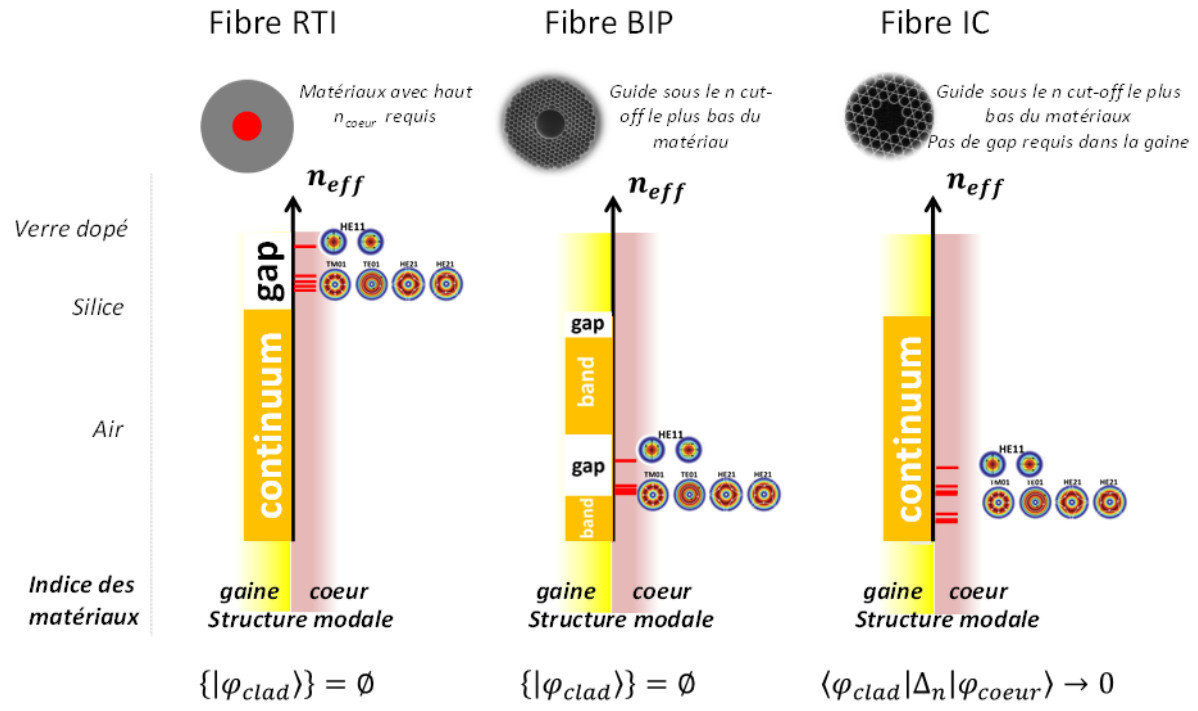


Figure 24 : Contenu modal des différents types de fibres optiques classées par mécanisme de guidage. RTI : Réflexion Totale Interne, BIP : Bande Interdite Photonique, IC : Couplage Inhibé [11].

Dans le premier cas du RTI, la gaine est d'indice de réfraction uniforme n_g et le contenu modal est un continuum où les modes ont un indice n_{eff} forcément inférieur à l'indice de la gaine. Il n'existe donc aucun mode de gaine d'indice supérieur à n_g (zone appelée « gap », en blanc). Le cœur a quant à lui un indice n_c supérieur à celui de la gaine. Il peut donc guider des modes dont l'indice est inférieur au sien tout en étant supérieur à celui de la gaine ($n_g < n_{eff} < n_c$). Pour la fibre à BIP, le contenu modal de la gaine apparait plus structuré. Il peut y avoir plusieurs bandes autorisées (en orange) ou

Licence CC BY-NC-ND 3.0

interdites (en blanc) pour les modes. Ici, il existe des bandes interdites pour la gaine même en-dessous de l'indice de l'air ($n_{air} = 1$). Il est donc possible de guider des modes dans un cœur creux, éventuellement rempli d'air ou de gaz. Enfin, le dernier cas des fibres guidant par IC est un peu particulier et diffère des deux cas précédents du fait de l'absence de gap ce qui veut dire que les modes de gaines et de cœur coexistent avec un même indice effectif. Pour expliquer le guidage de la lumière uniquement dans le cœur d'air, l'astuce ici réside dans le contrôle de l'interaction du champ du mode de cœur $|\varphi_{core}\rangle$ et du mode de gaine $|\varphi_{clad}\rangle$ qui peut être très fortement réduite pour tendre vers zéro ($\langle\varphi_{clad}|\Delta n^2|\varphi_{core}\rangle \to 0$, avec Δn une fonction du profil d'indice transverse). Ceci est possible si leur recouvrement spatial est faible ou s'il y a un fort désaccord entre leurs phases spatiales transverses respectives. Ce point sera développé par la suite.

III.2. Les fibres à bande interdite photonique (BIP)

Le concept de bande interdite photonique fut évoqué pour la première fois en 1987 par Yablonovitch [50] et John [51]. De telles bandes interdites apparaissent dans des structures périodiques nommées "cristaux photoniques". Au départ, ce modèle était restreint aux configurations dites "in-plane", et ce n'est qu'en 1991 que Russel proposa une configuration "out-of-plane" [52] permettant de guider de la lumière dans des fibres à cœur creux avec une gaine micro-structurée en cristal photonique. La première démonstration théorique fut alors faite en 1995 par Birks *et al.* [53], suivie par la première démonstration de principe réalisée en 1999, par Cregan et ses collaborateurs [54]. Quelques années plus tard, en 2002, Corning fabrique une fibre BIP avec des pertes par transmissions établies à 13 dB/km à 1,5 µm [55]. Cette performance fut alors l'illustration très claire du concept proposé par Russel quelques années plus tôt. A titre de comparaison, le record du plus faible niveau de pertes par transmission des fibres à cœur creux toutes conceptions confondues est de 1,2 dB/km à 1,62 µm, détenu depuis 2005 par Roberts *et al.* [56].

Afin d'expliquer comment ce type de fibre guide la lumière, il a fallu appliquer à la photonique des principes bien connus d'autres domaines de la physique, en particulier de la matière condensée. Il existe en effet des similarités entre le modèle de liaison

Licence CC BY-NC-ND 3.0

étroite (TBM : Tight-Binding Model) qui explique l'apparition de bandes interdites électroniques en physique du solide et le modèle des résonateurs couplés expliquant les bandes interdites photoniques (P-TBM : Photonic Tight-Binding Model) proposé en 2007 [57]. Dans le premier cas, lorsque des atomes isolés sont rapprochés petit à petit, leurs orbitales se superposent et leurs niveaux d'énergie discrets forment alors des bandes d'énergies accessibles, séparées de bandes d'énergies interdites (*Figure 25*, à gauche). Dans le second cas, les atomes sont remplacés par des guides d'ondes de haut indice et les niveaux d'énergie par leur dispersion. Si les guides d'ondes sont suffisamment proches, des continuums de modes accessibles apparaissent, séparés ici aussi par des bandes interdites où aucun mode ne peut se propager dans la structure (*Figure 25*, à droite).

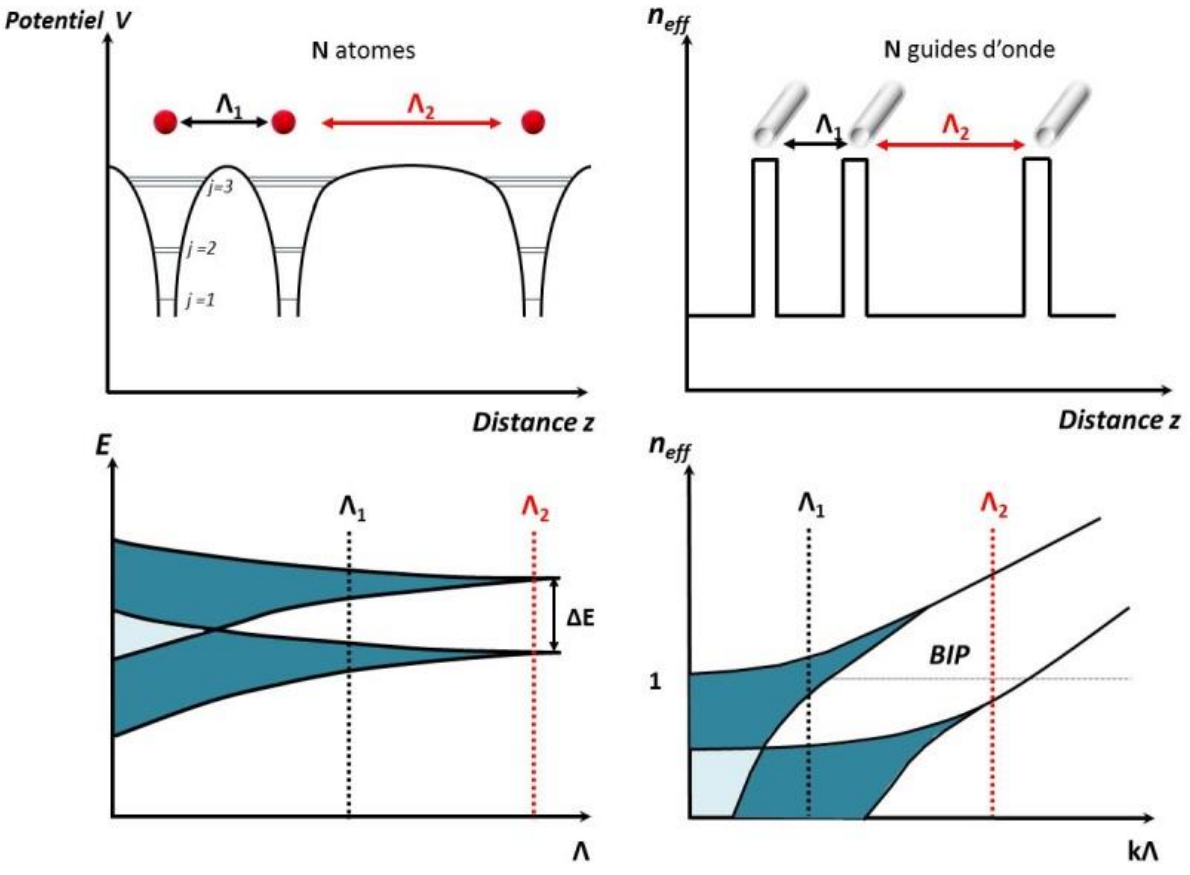


Figure 25 : Analogie entre le modèle des états liés en physique du solide et sa structure de bandes électroniques (à gauche) et le modèle des états liés en photonique et sa structure de modes autorisés et interdits (à droite).

Afin d'identifier ces bandes, il faut résoudre l'équation de Maxwell-Helmholtz :

Licence CC BY-NC-ND 3.0

$$(\nabla^2 + k^2 n^2)h + \nabla(\ln n^2) \times (\nabla \times h) = \beta^2 h \qquad (3.1)$$

Où h est la composante transverse du champ magnétique, k est la constante de propagation en espace libre et n est la fonction diélectrique de la structure de la gaine dans le plan transverse. Les solutions peuvent être présentées sous forme de diagrammes de densité d'états photoniques (DOPS : Density Of Photonic States) représentant le spectre modal de la structure considérée. Il s'agit de la densité des modes se propageant suivant l'axe z dans l'espace (ω, n_{eff}) (ou (ω, β)), où $\beta = n_{eff}.k$, avec k la constante de propagation dans le vide et n_{eff} l'indice effectif du mode propagé. La *Figure 26* présente un exemple d'un tel diagramme DOPS. La maille est triangulaire et constituée de trous en forme d'hexagone composés d'air à 93% [58]. La région où aucun mode ne se propage dans la gaine est représentée en blanc (DOPS = 0). Dans cet exemple, la bande interdite s'étend pour des valeurs de vecteur d'onde normalisé allant de 14,5 à 18, résultant en une bande de transmission centrée autour de 1,55 µm et large d'environ 330 nm.

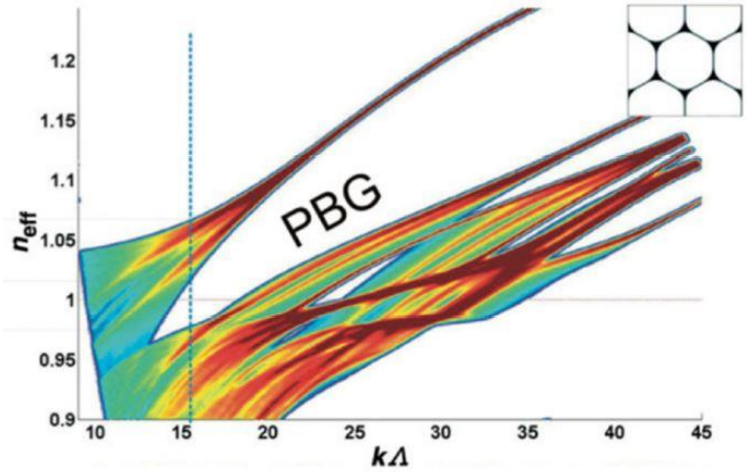


Figure 26 : Densité d'états photoniques représentative d'une fibre à bande interdite photonique. En haut à droite : maille formant le réseau de la gaine cristalline.

III.3. Les fibres à couplage inhibé (IC)

Bien que les fibres à BIP soient capables de guider la lumière de manière très efficace, elles font face elles aussi à certaines limitations. En effet, leur bande de transmission est relativement étroite ce qui pose problème lorsqu'il s'agit dans notre contexte de thèse de générer et propager un peigne de fréquence sur un large spectre. La

Licence CC BY-NC-ND 3.0

transmission de la lumière par ce type de fibre est également limitée par le recouvrement entre les modes guidés dans le cœur et la gaine de silice, sans oublier la présence de modes de surface.

C'est en 2002 qu'une alternative à ces fibres BIP fut découverte par Benabid *et al.* [14]. Il s'agit de fibres creuses avec une structure différente reposant sur une maille dite *Kagomé*. Dans ce cas et pour la première fois, des fibres creuses étaient capables de guider la lumière sur un large spectre. Les pertes étaient alors d'environ 1 dB/m. Cependant, il aura fallu attendre quelques années et une optimisation du contour du cœur d'air par une forme hypocycloïdale [59] pour démontrer que ces nouvelles fibres pouvaient descendre à des valeurs avoisinant aujourd'hui le dB/km [60]. Ces atténuations records ont ainsi permis de générer de larges peignes de fréquences par diffusion Raman stimulée [22].

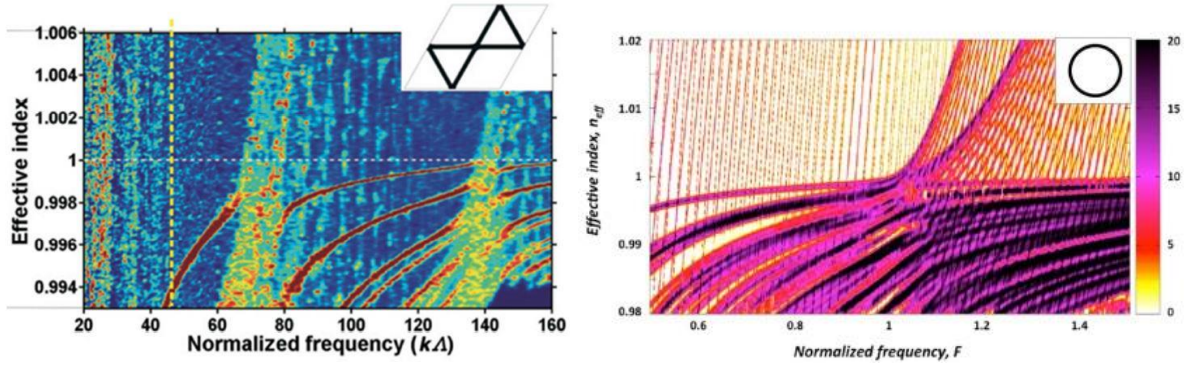


Figure 27 : Densité d'états photoniques représentatives d'une fibre à maille Kagomé (à gauche) et d'une fibre à maille tubulaire (à droite). En haut à droite de chaque diagramme est présenté la maille élémentaire de la structure de la gaine.

Pour expliquer ces performances, il faut tout d'abord comprendre que ces fibres *Kagomé* guident la lumière d'une toute autre manière que les fibres BIP, principalement du fait qu'elles ne présentent pas de bande interdite comme il a été indiqué précédemment. Le modèle expliquant de quelle manière la lumière est confinée et propagée grâce à cette nouvelle structure a été proposé en 2007 [18]. On parle ici de "couplage inhibé". En effet, les modes de cœur et de gaine coexistent au sein de la fibre, mais la structure de celle-ci diminue fortement l'intégrale de recouvrement entre ces deux types de modes. Les modes guidés dans le cœur ne sont donc pas amenés à fuir par la gaine en se couplant avec le continuum de modes de celle-ci. La *Figure 27*

Licence CC BY-NC-ND 3.0

présente les diagrammes DOPS et les mailles élémentaires des structures de gaine des fibres *Kagomé* et tubulaires (que nous évoquerons également un peu plus loin). La gaine d'une fibre *Kagomé* est composée d'un arrangement d'étoiles de David tandis que celle d'une fibre à maille tubulaire est composée, comme son nom l'indique, de tubes en silice isolés. Ici, en comparaison avec un diagramme DOPS d'une fibre BIP, on constate qu'il n'y a pas de zone blanche, donc pas de bande interdite. De plus, la gamme de fréquences normalisées (en abscisse) s'étend de manière beaucoup plus large. On est dans le cas de ce que l'on appelle parfois le régime « large pitch » [61]. Puisque le pitch n'a plus la même importance dans ce régime, on utilise une nouvelle quantité $F = (2t/\lambda)\sqrt{n_g^2 - 1}$ plutôt que kΔ. C'est le cas pour les abscisses du diagramme DOPS de la fibre à maille tubulaire (*Figure 27*). Enfin, on constate une forte densité d'états dans certaines régions du diagramme pour les fibres *Kagomé*. Ces dernières correspondent aux résonances avec le matériau de la gaine et augmentent les pertes par transmission. Il est possible de déterminer les bandes de coupure (et donc indirectement les bandes de transmission) de ce type de fibre à l'aide de la formule donnant la position spectrale de leur centre :

$$\lambda_j = \frac{2t}{j}\sqrt{n_g^2 - n_{air}^2} \tag{3.2}$$

Avec j l'ordre du mode, t l'épaisseur des ponts de silice, n_g est l'indice de réfraction de la silice et n_{air} celui de l'air.

Pour expliquer le guidage par IC, une analogie est faite avec le modèle théorique de Von Neumann et Wigner proposé en 1929 [62] dans le domaine de la physique quantique sur les états liés (ou quasi-liés) dans un continuum (BIC : Bound-states In Continuum, ou QBIC : Quasi-BIC). Ceci a été observé expérimentalement pour la première fois par Capasso *et al.* [63] dans un semi-conducteur, mais se retrouve dans de nombreux domaines : électromagnétique, acoustique et même aquatique [64]. Un état lié est d'habitude représenté par un atome confiné dans un puits de potentiel, et restant sous la barrière de potentiel (*Figure 28*). Ce qu'ont montré Von Neumann et Wigner, bien que contre-intuitif, est que des états liés peuvent dans certaines conditions exister même au-delà de la barrière de potentiel. De la même manière, des

Licence CC BY-NC-ND 3.0

modes de cœur et de gaine peuvent coexister et se propager au sein de la structure du guide d'onde. Cependant, puisqu'ils ne « communiquent » pas entre eux, les modes de cœur ne fuiteront par couplage avec des modes de gaine qui sont eux plus susceptibles à ce phénomène.

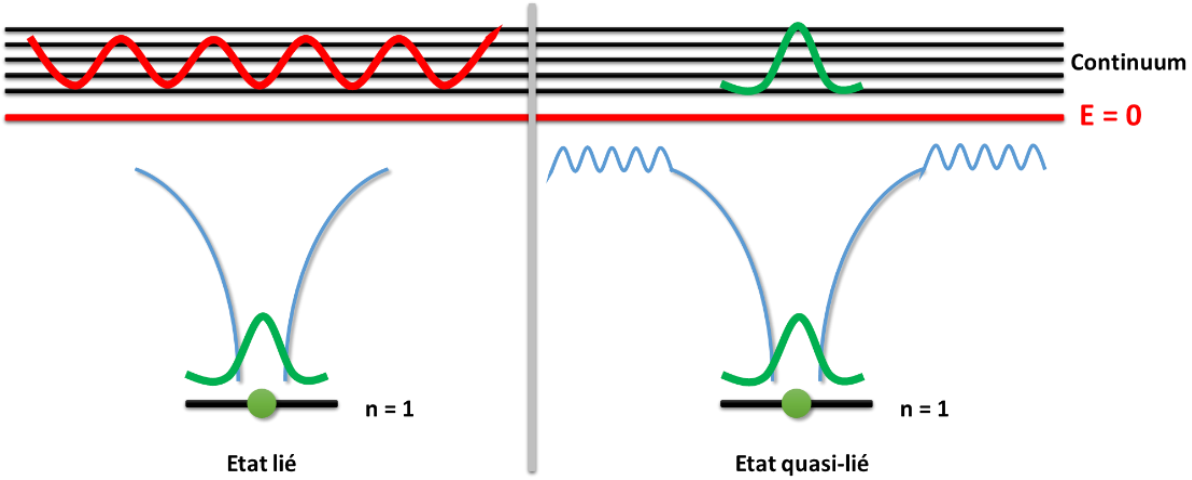


Figure 28 : Représentation schématique d'un état lié dans un continuum.

Les modes de cœur et de gaine présentent un fort désaccord de phase transverse, les oscillations de cette dernière sont en effet beaucoup plus rapides pour les modes de gaine que pour les modes de cœur (*Figure 29*). On définit les oscillations de la phase transverse par le nombre azimutal *m*. Plus celui-ci est élevé plus les oscillations sont rapides.

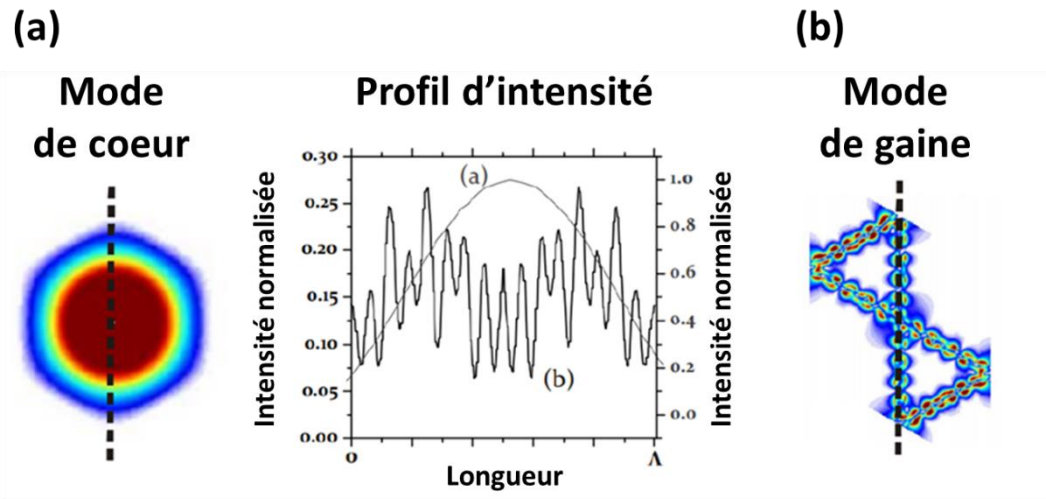


Figure 29 : (a) Mode de cœur, (b) modes de gaine, et leur désaccord de phase transverse (au centre) pour une fibre guidant par mécanisme de couplage inhibé.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

C'est en partie pour cette raison qu'une optimisation de la structure du cœur des fibres à maille *Kagomé* a été entreprise. En effet, il a été démontré qu'un contour de cœur hypocycloïdal permettait d'optimiser leurs performances (*Figure 30 (c)*). La première raison était justement d'augmenter ce désaccord de phase entre les modes de cœur et de gaine en augmentant le nombre azimutal *m* pour ces derniers. Cela a pu être réalisé en allongeant la longueur des arches du contour du cœur de la fibre. Les autres raisons étaient d'une part un meilleur confinement du mode de cœur l'éloignant ainsi des nœuds de silice de la gaine qui restent de potentiels facteurs de fuite (dû à un nombre azimutal se rapprochant de celui des modes de cœur), et d'autre part une superposition plus faible des modes de cœur avec la silice du contour elle-même. En effet, dans une configuration hypocycloïdale les modes de cœur ne sont en contact qu'avec les sommets des grandes arches du contour, alors que dans une configuration circulaire ils sont en contact avec l'ensemble du contour (*Figure 30 (a) et (b)*).

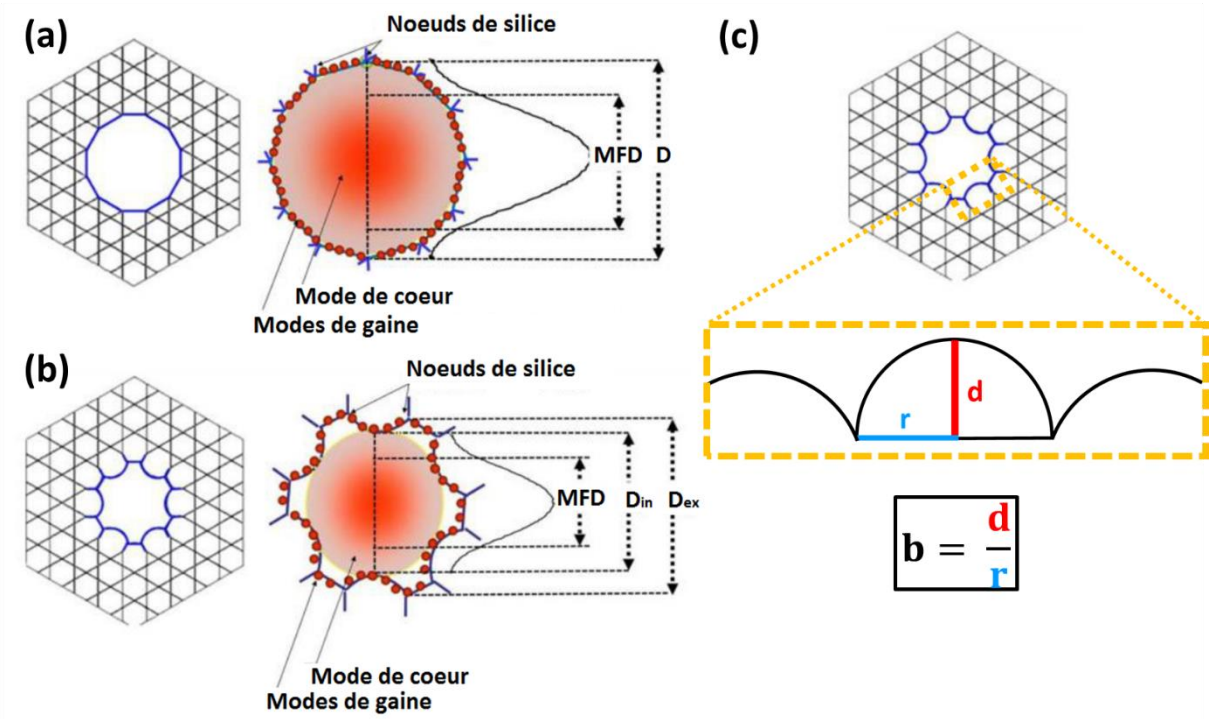


Figure 30 : Démonstration de l'amélioration du guidage dans une fibre Kagomé grâce à une structure hypocycloïdale. (a) Fibre Kagomé originelle avec le contour du mode qui épouse le contour du cœur et donc la totalité de la structure de silice, incluant de nombreux nœuds. (b) Fibre Kagomé à cœur hypocycloïdal dont le mode est mieux confiné. (c) Définition du paramètre b caractérisant la courbure des grandes arches de la structure hypocycloïdale.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

La courbure des arches formant le diamètre interne du cœur d'une fibre à structure hypocycloïdale est caractérisé par le paramètre noté b (*Figure 30 (c)*). Celui-ci dépend de d, la distance entre le sommet d'une arche et la corde reliant les nœuds que l'arche possède en commun avec ses deux voisines, et de r le rayon de la corde. Lorsque b se rapproche de 0 la forme du cœur de la fibre se rapproche de celle d'un cercle, il n'y a donc pas d'arches. A titre d'illustration, les pertes de ce type de fibre sont passées de 1000 dB/km en 2002 (sans contour hypocycloïdal) à 180 dB/km en 2010-2011 lorsque la fabrication de cette structure a commencé [59] puis à 17 dB/km en 2013, à 1030 nm [65] pour finir en-dessous de la barrière des 10 dB/km en 2018 [60]. La *Figure 31* présente la diminution des pertes par confinement due à ce concept. Plus le paramètre b est grand, et donc les arches marquées, moins les pertes par confinement se font sentir grâce au meilleur maintien du mode de propagation dans le cœur de la fibre. Cette diminution atteint un facteur 1000 pour la bande fondamentale de transmission dans l'exemple proposé en *Figure 31(c).* D'une manière générale, les fibres guidant par IC surpassent les performances des fibres BIP en termes de pertes par transmission, en particulier pour les longueurs d'ondes inférieures à 1500 nm.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

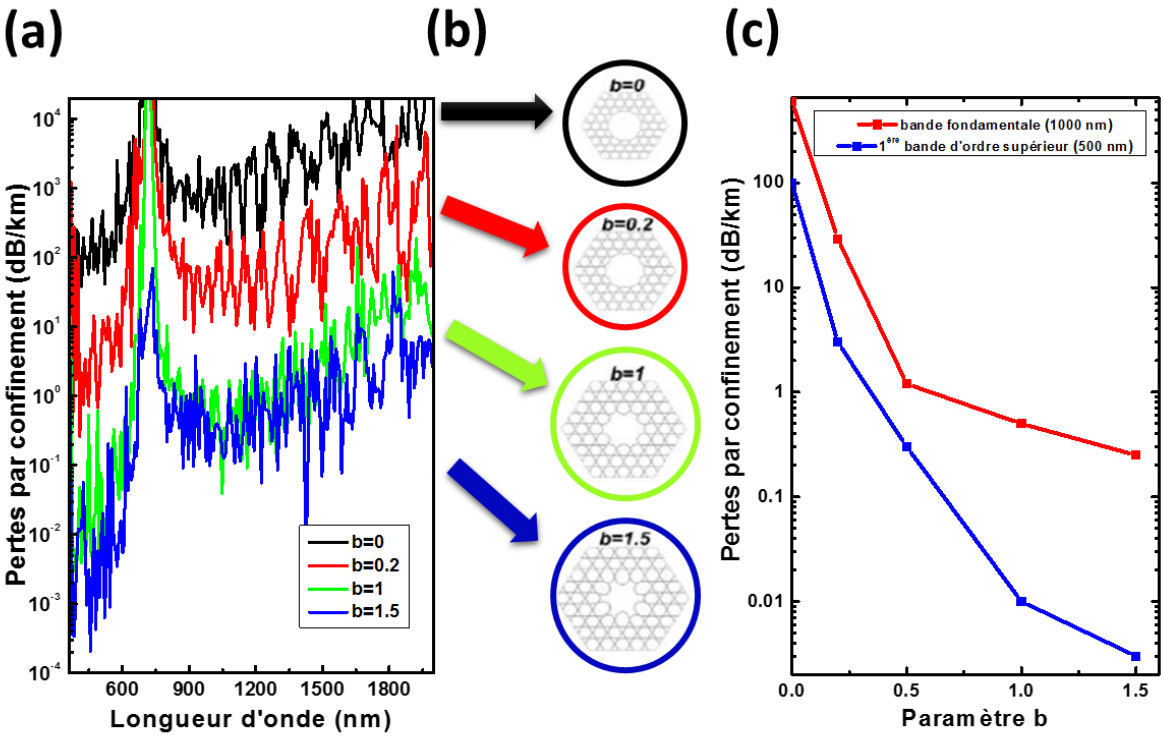


Figure 31 : (a) Evolution des pertes par confinement en fonction du paramètre b. (b) Evolution de la structure de la fibre en fonction de ce même paramètre b. (c) Evolution des pertes par transmission à 1 µm (en rouge) et à 500 nm (en bleu). La bande de fortes pertes en (a) due aux résonances avec le milieu apparait à 700 nm [11].

Enfin, si augmenter le paramètre b permet de diminuer les pertes des fibres *Kagomé*, contrôler l'épaisseur des ponts t permet de décaler les bandes de transmission de la fibre vers la longueur d'onde désirée. Il est ainsi possible de fabriquer une fibre de manière à guider avec le moins de pertes possible à une longueur d'onde préalablement choisie. Cette propriété est illustrée par la *Figure 32*.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

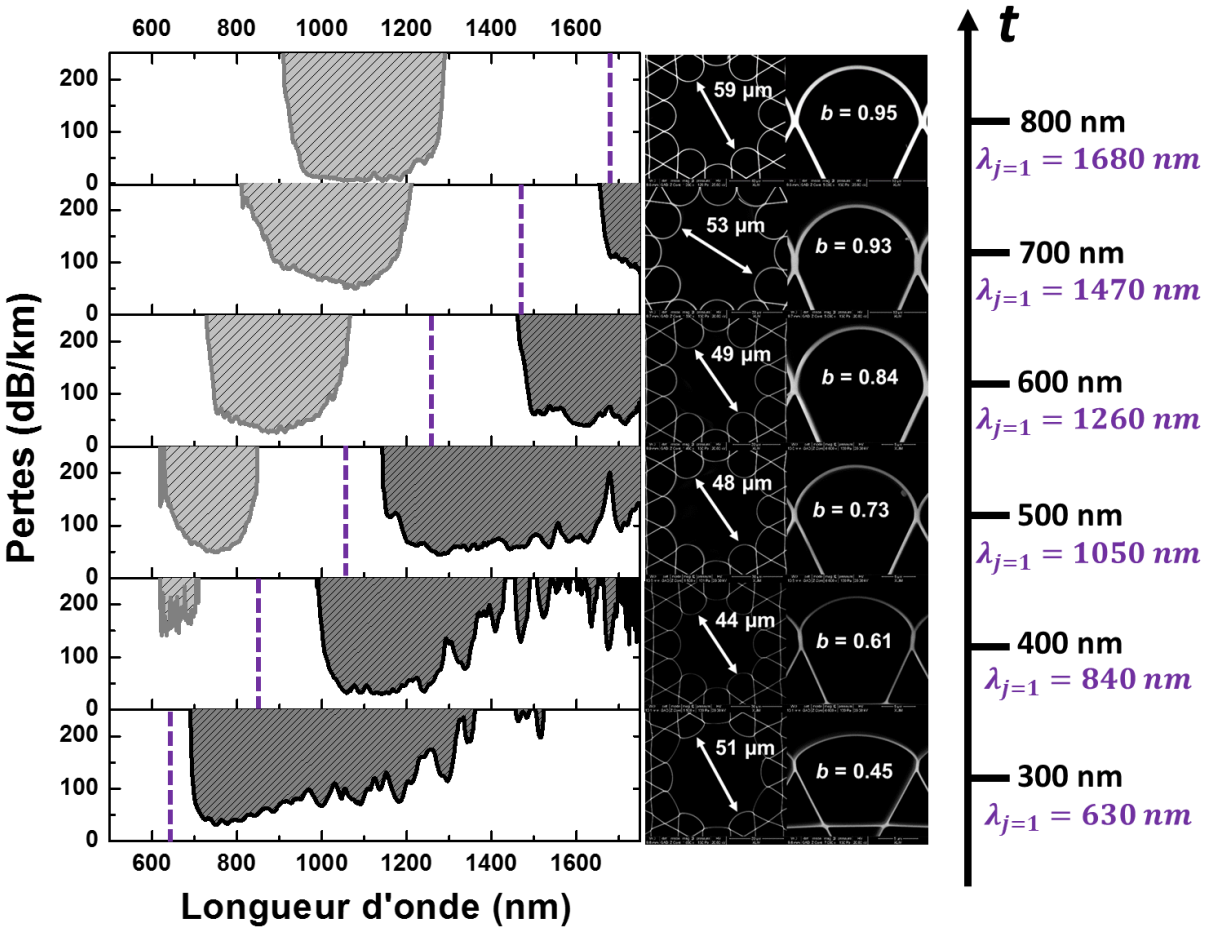


Figure 32 : Evolution des pertes en fonction de la longueur d'onde, pour différentes structures hypocycloïdales (différents paramètres b et épaisseurs des ponts t). Les pertes diminuent avec l'augmentation du paramètre b, et les bandes se décalent vers l'infrarouge avec une épaisseur de pont croissante [60].

Dans la famille des fibres guidant la lumière par IC, il y a aussi les fibres à maille tubulaire. Ce type de fibre présente également, de par sa structure, un contour de cœur en forme hypocycloïdale, ainsi qu'une réduction des nœuds de silice. La fabrication de la première fibre à maille tubulaire a été réalisée par Pryamikov, en 2011 [66]. Le but était alors de fabriquer une fibre guidant dans l'infrarouge avec des pertes inférieures à celles de la silice, comme l'illustre la fibre fabriquée par Yu avec des pertes à 34 dB/km à 3,05 µm [67]. Depuis, de nombreuses études ont été menées à travers le monde sur ce type de structure. En faisant des optimisations sur différents paramètres tels que le nombre de tubes, leur épaisseur ou bien encore les dimensions du cœur, de nombreuses équipes ont pu obtenir des résultats records au niveau des pertes dans une multitude de gammes spectrales comme Kolyadin (50 dB/km à 3.39 µm) [68], Wang (100 dB/km à 3,1 µm) [69], Uebel (180 dB/km à 1,6 µm) [70], Michieletto

Licence CC BY-NC-ND 3.0

(30 dB/km à 1090 nm) [71], Hayes (25 dB/km à 1,2 µm) [72], Debord (avec deux fibres, une à 7,7 dB/km à 750 nm et une seconde avec des pertes entre 10 et 20 dB/km entre 600 et 1200 nm) [73], Chafer (avec là aussi deux fibres, une première présentant des pertes à 13,8 dB/km à 540 nm et une seconde avec des pertes à 150 dB/km à 343 nm et 75 dB/km à 355 nm) [74] et enfin Gao (2 dB/km à 1,5 µm) [75] et Bradley (1.3 dB/km à 1,45 µm) [76] (*Tableau 3*). Aujourd'hui, le principal facteur de pertes pour ce type de fibre est dorénavant dû aux rugosités de surface inhérentes au processus de fabrication. Celles-ci résultent en l'apparition d'ondes de surface, entrainant ainsi des pertes supplémentaires [56], [77], [78]. Ce type de pertes fait actuellement toujours l'objet d'études au sein de notre groupe de recherche.

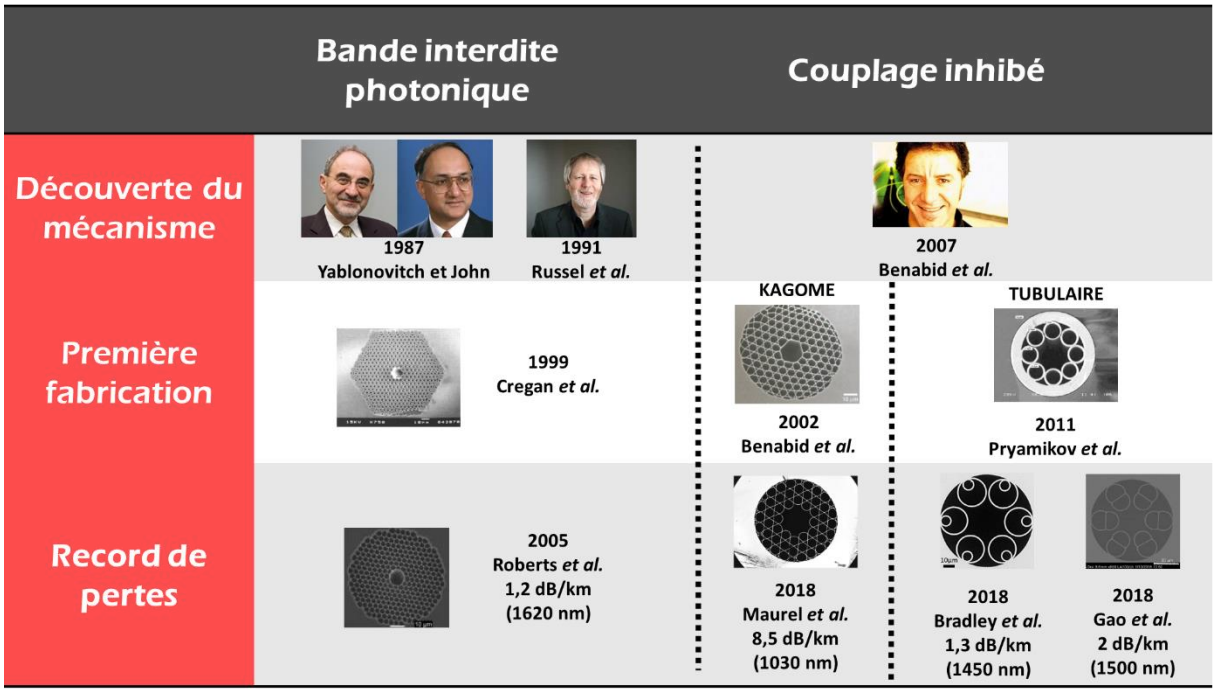


Tableau 3 : Bref historique des fibres creuses micro-structurées. L'accent est porté ici sur la découverte de chaque mécanisme de guidage, de la première fabrication de chaque fibre et de leurs records actuels de pertes (sans considération de longueur d'onde).

III.4. Présentation des fibres utilisées

Lors de ces travaux de thèse, différents modèles de fibres ont été utilisés. Cette section est là pour détailler leurs caractéristiques et expliquer la pertinence de leur choix. Ainsi, pour le confort du lecteur celui-ci pourra venir s'y référer lors de la lecture des chapitres suivants.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

La première fibre retenue est une fibre à BIP, utilisée dans le chapitre suivant (*Figure 33*). Ses diamètres externe et interne sont respectivement de 125 µm et 8 µm, impliquant un diamètre du mode (MFD) de 6 µm. La bande de transmission s'étend de 1030 nm à 1180 nm, avec des pertes minimales de 80 dB/km à 1100 nm.

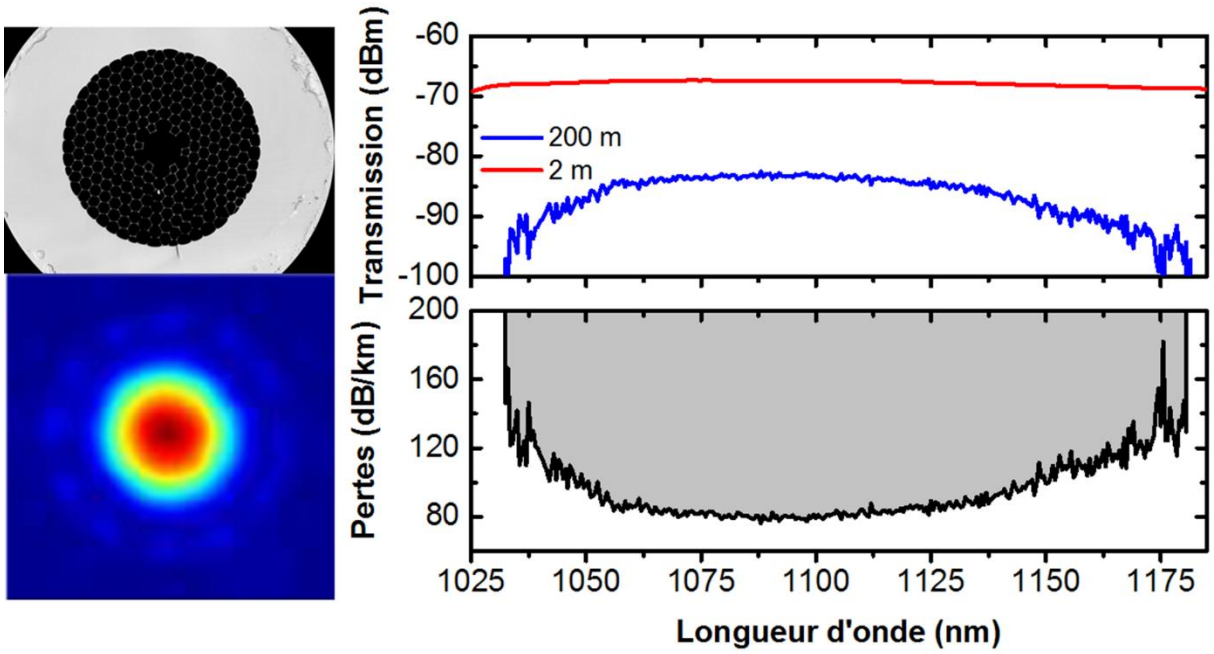


Figure 33 : Coupe transversale de la fibre au microscope (en haut à gauche). Contenu modal à 1064 nm (en bas à gauche). Spectres de transmission et pertes (respectivement en haut à droite et en bas) de la fibre à BIP utilisée pour l'étude de la dynamique de la cohérence Stokes inter-impulsionnelle.

Dans le contexte du chapitre IV, cette fibre a été choisie pour ses propriétés de transmission étroite centrée autour du laser de pompe émettant à 1064 nm et du premier Stokes correspondant à la première transition rotationnelle dans l'hydrogène à 1135 nm. Les ordres supérieurs Stokes (et Anti-Stokes) se situent dans les zones de fortes pertes de la fibre ne sont ainsi pas guidés. De plus, l'aire effective d'interaction dans ce type de fibre étant très petite, le gain net Raman est très élevé et permet de se placer en régime transitoire même pour des impulsions de durée proche de la nanoseconde. Lors de l'utilisation d'une fibre comme guide d'onde, un paramètre qu'il est important de connaître en particulier dans le régime de l'optique non-linéaire est la dispersion. La *Figure 34* ci-dessous présente justement cette grandeur (courbe rouge) en fonction de la longueur d'onde pour la fibre à BIP utilisée ici.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

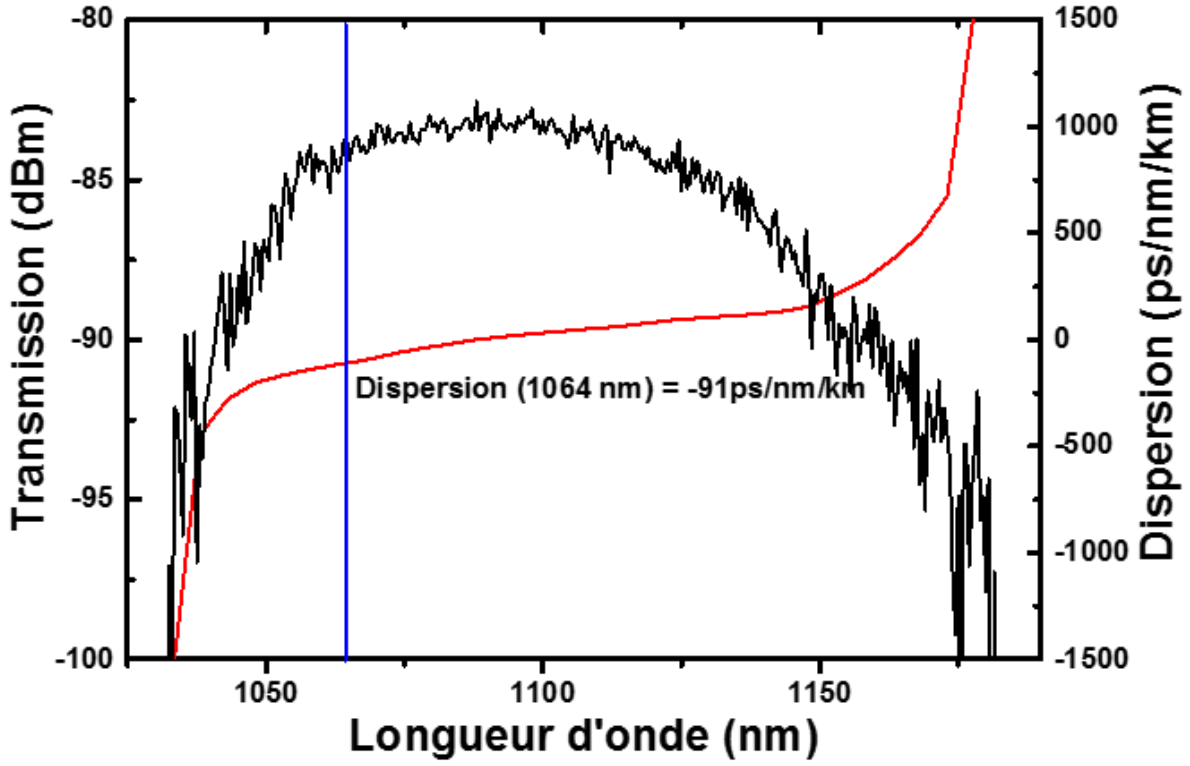


Figure 34 : Transmission et dispersion de la fibre à BIP, en fonction de la longueur d'onde. La valeur de cette dernière à 1064 nm est de -91 ps/nm/km.

La seconde fibre retenue est une fibre *Kagomé*, utilisée dans les chapitres V à VIII (*Figure 35*). Son diamètre externe est de 320 µm et son diamètre interne de 58 µm, résultant en un MFD de 45 µm. Les ponts de silice de la structure ont une épaisseur de 670 nm. Ses différentes bandes de transmission couvrent une large partie du spectre dans le visible et au-delà dans l'infrarouge, de 500 nm à plus de 2 µm. Le minimum de pertes est de 10 dB/km à 1030 nm.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

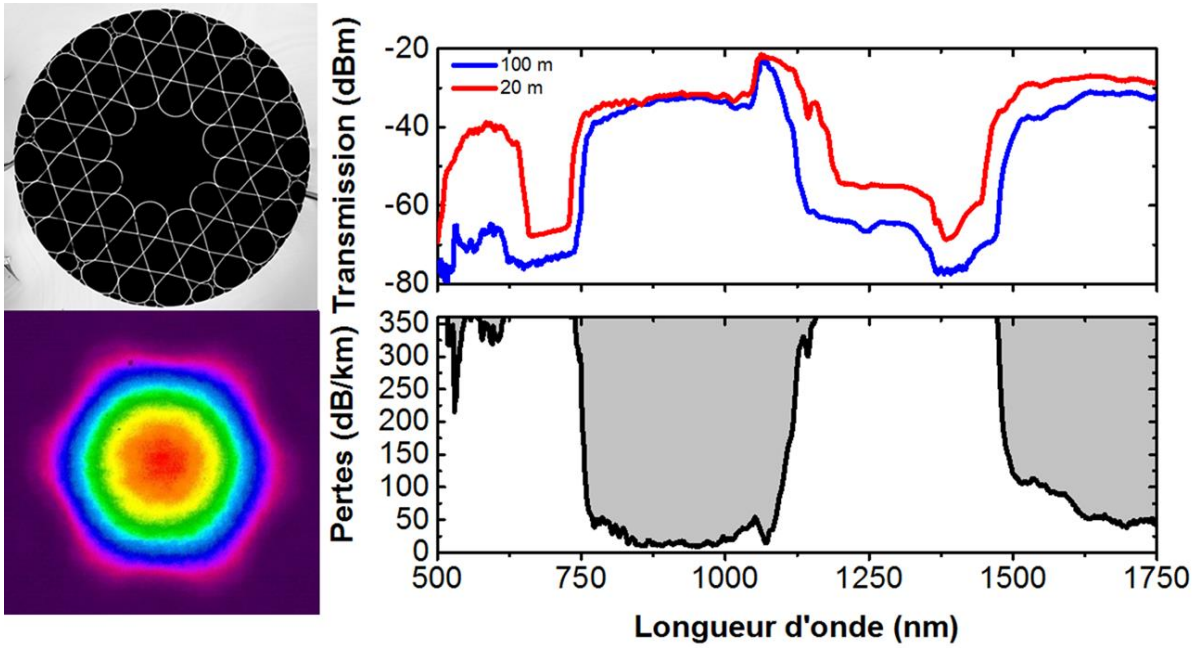


Figure 35 : Coupe transversale de la fibre au microscope (en haut à gauche). Contenu modal à 1030 nm (en bas à gauche). Spectres de transmission et pertes (respectivement en haut à droite et en bas) de la fibre Kagomé utilisée dans la seconde partie de cette thèse.

Cette fibre a été choisie pour ses propriétés de transmission large spectre, notamment afin de générer et d'étudier le premier Stokes vibrationnel dans l'hydrogène, situé dans notre cas à 1,8 µm (chapitres V et VI), ainsi que pour générer un rayonnement couvrant plusieurs octaves (chapitres VII et VIII), le tout en étant optimisé pour une pompe émettant à 1030 nm.

Un autre aspect à prendre en considération pour cette fibre est sa dispersion, car comme nous allons le voir dans le dernier chapitre celle-ci a un effet sur la phase des différentes composantes spectrales du peigne de fréquence généré. Le coefficient de dispersion β étant dépendant de la longueur d'onde, et l'espacement spectral entre les lignes étant important, chacune d'entre-elles subit une dispersion différente. Ainsi, les composantes spectrales n'ont pas la même phase, ce qui est un facteur limitant pour la synthèse d'ondes optiques. Des composantes en phase sont en effet le cas optimal. Cette dispersion inhérente à la silice de la fibre peut être en partie compensée et rapprochée d'une valeur nulle en la remplissant d'un gaz. L'indice effectif et la dispersion de vitesse de groupe pour cette fibre sont représentés en *Figure 36* en fonction de la longueur d'onde.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

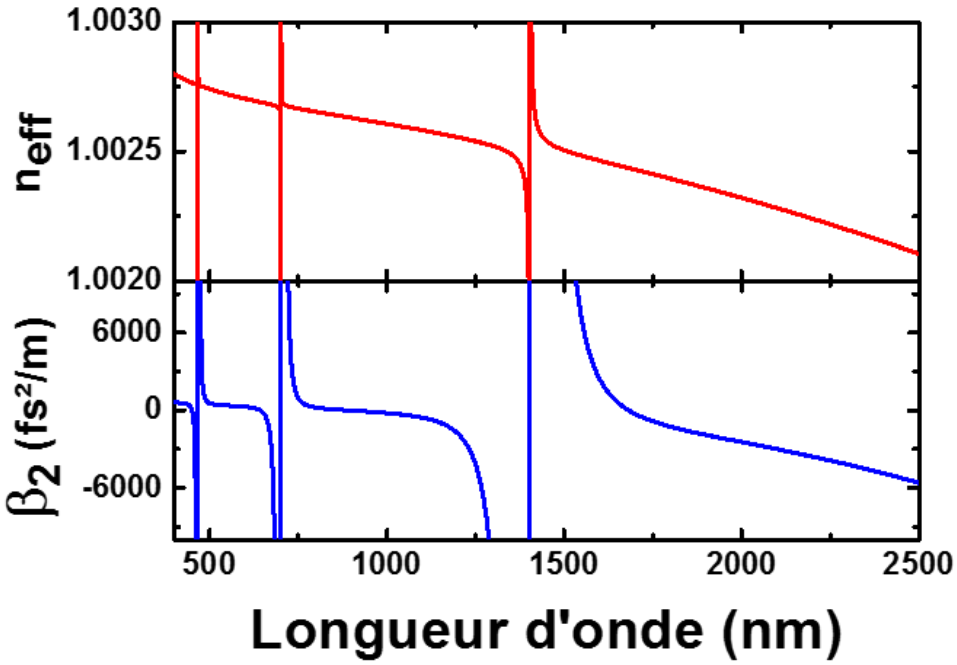


Figure 36 : Indice effectif et GVD de la fibre Kagomé utilisée au cours de cette thèse en fonction de la longueur d'onde.

On remarque que la fibre a été conçue de telle manière que le zéro de dispersion soit centré sur 1030 nm, c'est-à-dire la longueur d'onde de pompe des expériences menées dans les chapitres V à VIII.

III.5. Résumé

Dans ce chapitre nous avons évoqué les différents types de fibres creuses existant aujourd'hui ainsi que leurs mécanismes de guidage respectifs. Cette technologie, bien que relativement jeune, a fait d'énormes progrès en termes de performances. C'est le cas en particulier au niveau des pertes par transmission, les records étant continuellement battus dans les diverses zones du spectre électromagnétique. Le niveau de maturité que cette technologie a acquis permet d'élargir l'éventail de leurs potentielles applications : la photonique des plasmas [79], l'optique atomique [80], la compression d'impulsions [81], [82], le déport de puissance [83], [84] ou encore la réalisation de nouvelles sources laser qui fera l'objet des chapitres suivants.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Licence CC BY-NC-ND 3.0

CHAPITRE IV

Dynamique spatio-temporelle de la cohérence Raman dans une fibre creuse

Ce chapitre a pour objectif d'étudier théoriquement et expérimentalement la dynamique spatiale et temporelle de la cohérence Raman le long d'une fibre creuse remplie de gaz. En particulier sa persistance après le passage d'une impulsion de pompe, et sa distribution spatiale dans la fibre. Le chapitre montre des résultats numériques de la cohérence et le changement de population d'une transition Raman pour différents cas de durée d'impulsion et de gain stationnaire. Ensuite, nous exposons un dispositif expérimental de type interférométrique pour mesurer le degré de cohérence entre les champs Stokes générés par deux impulsions séparées par un délai contrôlable. Les résultats montrent que les Stokes générés avec des impulsions pompes séparées de ~29 ns, soit 85 fois la durée de relaxation moléculaire, exhibent un accord de phase. Ces résultats serviront à examiner les qualités d'une DRS dans une fibre creuse comme un modulateur de phase dans la génération de peigne Raman, et de concevoir un laser à verrouillage de mode basé uniquement sur la DRS.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

IV.1. Introduction

Les fibres creuses remplies de gaz actif Raman, en particulier les fibres à bande interdite photonique (BIP), ont déjà prouvé être de formidables convertisseurs de fréquence [58]. Une nouvelle dynamique Raman est en effet rendue possible par la grande longueur d'interaction et les faibles dimensions du cœur de la fibre. Ces propriétés ont permis d'utiliser la diffusion Raman stimulée (DRS) en régime transitoire avec des durées d'impulsions supérieures au temps de relaxation moléculaire [16]. Les fibres *Kagomé* ne sont pas en reste après avoir démontré un verrouillage de modes intra-impulsionnel lors de la génération d'un peigne de fréquences Raman ultra-large s'étalant sur plusieurs octaves. Les composantes du peigne restent cependant décorrélées pour des impulsions consécutives. Cela est dû au processus de génération du Stokes qui se fait à partir du bruit quantique, et de l'amortissement rapide de la résonance Raman (typiquement quelques centaines de picosecondes). Les performances d'un tel peigne de fréquences s'en trouvent donc limitées. Afin d'éviter l'utilisation d'un second laser pour la génération d'impulsions cohérentes au niveau inter-impulsionnel, il faudrait profiter à la fois d'un temps de cohérence Raman suffisamment long combiné à un laser de pompe avec un taux de répétition suffisamment rapide. De cette manière la cohérence Raman du milieu actif pourrait survivre malgré la durée séparant deux impulsions de pompe consécutives.

L'objectif de ce chapitre est donc d'approfondir la compréhension du phénomène physique de cohérence Raman. Nous voulons en particulier comprendre comment celle-ci est générée, et comment elle persiste dans le temps après avoir été préalablement excitée. Une méthode d'évaluation de cette cohérence est ainsi proposée grâce à un montage expérimental pompe-sonde. Pour cela nous mesurons l'intensité du Stokes généré par une impulsion de sonde qui diffuse la cohérence moléculaire préétablie au sein du milieu par une impulsion de pompe. Cette expérience est accompagnée de simulations numériques calculant la distribution spatio-temporelle de cette cohérence.

Dans le chapitre II, nous avons vu que le champ du Stokes était généré à partir du bruit quantique et pouvait être décomposé en une somme de modes spatio-temporels cohérents et indépendants [41]. Nous sommes donc intéressés ici par le contenu modal

Licence CC BY-NC-ND 3.0

du Stokes. En particulier, nous voulons savoir quel est le nombre minimal de modes excités nécessaire dans le milieu Raman pour réaliser une amplification d'une onde Stokes et non une amplification du bruit. La théorie de la diffusion Raman stimulée dit que la cohérence décroit selon le temps de relaxation moléculaire T_2. En 1991, Smithey *et al.* ont montré en utilisant la DRS en régime transitoire et en régime de fort gain qu'une excitation moléculaire cohérente pouvait survivre pour une durée bien supérieure à ce temps caractéristique. Ils ont également prouvé que la génération d'impulsions Stokes à partir de deux impulsions de pompe consécutives conserve une cohérence à condition que le mode spatio-temporel dominant contienne entre 15 et 50 molécules excitées (ici appelés phonons cohérents) [85]. Ce nombre, N_q, de phonons cohérents représente donc le minimum requis pour moduler un laser et générer donc un champs Stokes par modulation moléculaire et non pas par amplification du bruit quantique. On peut donc présenter ce nombre comme la limite quantique permettant une modulation moléculaire.

Le nombre de ces phonons cohérents N_C décroit comme l'indique la relation suivante :

$$N_C = N_0 e^{\frac{-t}{T_2}} \tag{4.1}$$

où $N_0 \approx \rho_{12} N_{ex}\, e^{\sqrt{G_{ss}\Gamma\tau}}$ est le nombre maximal de phonons cohérents initialement excités, correspondant au nombre de photons Stokes. Ici ρ_{12} est la cohérence Raman écrite sous la forme de la composante non-diagonale de la matrice densité (chapitre II), et N_{ex} est le nombre de molécules excitées. A la limite quantique on a $N_C = N_q$, et le délai maximal en dessous duquel il est possible de générer le Stokes par modulation est :

$$t_{max} = \left(\sqrt{G_{ss}\Gamma\tau} - \frac{N_q}{\rho_{12} N_{ex}}\right) T_2 \tag{4.2}$$

L'utilisation de fibres à cœur creux permet également d'atteindre des gains nets Raman très élevés (> 100000), et cela même à relativement basse puissance de pompe. En prenant un cas étudié ci-dessous, on trouve que pour $G_{ss}\Gamma\tau = 1000$, $\rho_{12} N_{ex}$ est de l'ordre ~10^9 pour 20 bars d'hydrogène. L'équation (4.2) donne un délai t_{max}~32 ns.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Enfin, en plus de cette exacerbation du gain Raman, le guidage monomode de la fibre peut réduire la contribution des phonons émis spontanément (ou les modes spatio-temporel du Stokes), et donc réduire N_q. On peut donc s'attendre à ce que la cohérence survive à partir d'un nombre de phonons excités inférieur à ce qui a été précédemment démontré en [85]. Cela fait des fibres creuses, et en particulier les fibres à très faibles pertes et très petites aires modales, des plateformes où la cohérence moléculaire Raman durerait bien plus longtemps que dans toute autre structure. Lors de la survie de cette cohérence Raman, une telle fibre remplie de gaz agirait tel un modulateur de phase à une fréquence fixée par le décalage Raman. Ainsi, si cette cohérence est excitée à partir d'un laser de pompe ayant une période de répétition inférieure à sa durée de survie, on pourrait utiliser cette technique pour développer un nouveau type de laser. Celui-ci pourrait alors être utilisé pour générer un peigne de fréquences Raman dont la cohérence se reporterait sur des impulsions consécutives. Enfin, cartographier la distribution spatio-temporelle de la cohérence Raman et explorer sa dynamique sur toute la longueur de la fibre est d'intérêt fondamental afin de fournir un moyen d'étudier les propriétés d'un état quantique pur dans un système macroscopique.

IV.2. Travaux précédents

Des expériences ont déjà été menées au sein de notre groupe sur l'étude de la survie de la cohérence Raman d'un milieu excité. Cette section se charge donc d'en présenter les résultats marquants. Un premier montage pompe-sonde a notamment permis de mesurer l'intensité du Stokes généré par une impulsion, elle-même trop faible pour initier un processus Raman, mais profitant de la cohérence préétablie dans la fibre remplie de gaz par une puissante impulsion de pompe la précédant. Cette expérience, dont les résultats sont présentés en *Figure 37(b)* a été réalisée pour différents délais entre la pompe et la sonde. Celui-ci va de 1 à 21,5 ns. Les différentes traces ont été obtenues en répétant la mesure pour différentes longueurs de fibre à BIP monomode (*Figure 37(a)*), en la raccourcissant de 20 cm à chaque mesure. Il a ainsi été possible de détecter un signal Stokes pour un délai aussi long que 21,5 ns. Ceci indique que la cohérence moléculaire est toujours suffisante pour générer une onde Stokes. En comparaison avec la durée de déphasage T_2 qui est de 340 ps, un tel délai est près de 63 fois plus

Licence CC BY-NC-ND 3.0

long que cette dernière. Il s'agit également d'une durée supérieure à la plus longue durée requise pour la survie de la cohérence moléculaire $\tau_r \sim 10T_2$.

Une décroissance exponentielle est clairement visible à partir de ces résultats. L'ajustement est en exp(-0,14τ). La durée de la décroissance est 7,1 ns, ce qui signifie qu'elle est 21 fois supérieure à la valeur attendue (T_2 ~ 0,34 ns).

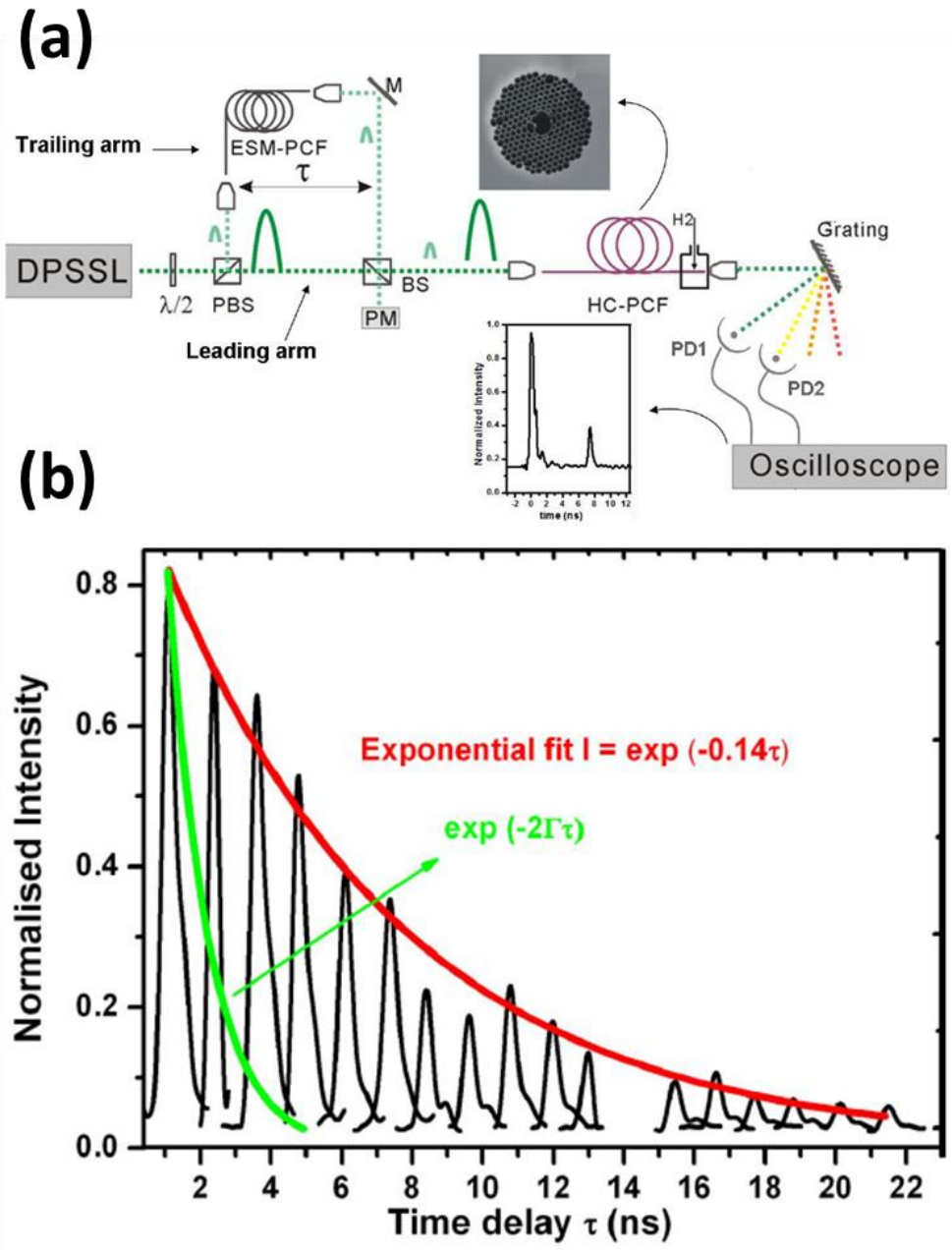


Figure 37 : (a) Montage expérimental, λ/2 : lame demi-onde, PBS : cube séparateur polarisé, M : miroir, PM : puissance-mètre, PD1 : photo-détecteur 1, PD2 : photo-détecteur 2. (b) Intensité du Stokes généré par la sonde en fonction du délai entre la pompe et la sonde. La courbe rouge représente l'ajustement expérimental exp(-0,14τ). La courbe verte l'ajustement expérimental pour le déphasage exp(-2Γτ) (avec Γ~2 GHz) du Raman rotationnel à une pression de 10 bars [86], [87].

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Des simulations numériques ont également été menées dans le but de mieux comprendre quels mécanismes régissent la survie de cette cohérence pour des temps très longs devant la relaxation moléculaire. La cohérence ainsi que la différence de population ont été obtenues dans le cas d'un délai fixe. La *Figure 38* montre l'évolution de la cohérence Raman théorique, ρ_{12}, et la différence de population $D = \rho_{22} - \rho_{11}$ (D+1 en réalité sur le graphique), dans le cas d'impulsions de pompe et de sonde séparées de 12 ns. Ceci a été calculé numériquement à l'aide du formalisme décrit en [88]. La puissance moyenne considérée est de 1,2 mW et 0,1 mW pour les impulsions de pompe et de sonde, respectivement. La cohérence et la différence de population montrent toutes deux un accroissement au moment correspondant au passage de la sonde. Leur décroissance exponentielle après le passage de la pompe suit la tendance attendue avec un temps T_2 et T_1 respectivement pour la cohérence et la différence de population. L'énergie du Stokes pour différents délais le long de la fibre est présenté en *Figure 38(b).*

Les simulations théoriques montrent que pour de courts délais entre la pompe et la sonde, la cohérence imprimée au milieu Raman après le passage de la première décale le début de la génération Raman à des positions spatiales antérieures, et mène donc en conséquence à de plus grandes pertes en raison d'une plus grande distance de propagation dans la fibre. Ce phénomène est illustré par les courbes rouge et verte de la *Figure 38(c)*. Ceci est dû au couplage de l'énergie avec des Stokes d'ordres supérieurs sujets à de plus grandes pertes et explique la décroissance du signal Raman pour un délai qui rétrécit entre les deux impulsions, observé aussi bien expérimentalement que numériquement. Pour des délais plus larges, la génération Raman n'est pas développée complètement. En revanche, une faible cohérence induite par la sonde et son interaction avec la cohérence imprimée par la pompe mène à la génération d'un Stokes par la sonde dont l'énergie n'est pas négligeable. Celle-ci décroit avec un délai qui augmente, mais ce phénomène est amorti par la cohérence apportée par la sonde elle-même.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

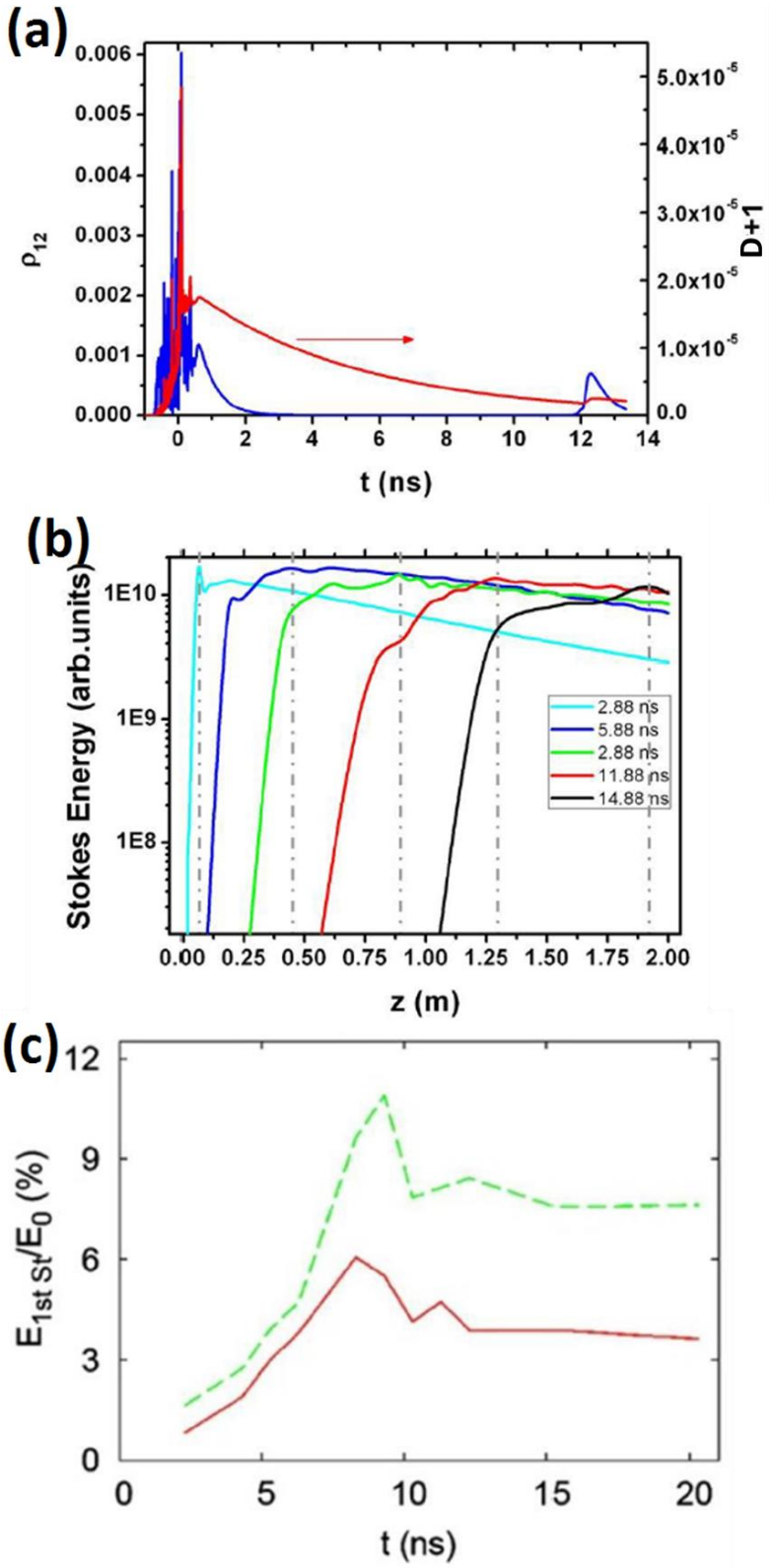


Figure 38 : (a) Cohérence Raman calculée (en bleu), et différence de population entre l'état rotationnel excité et l'état fondamental, exprimé en D+1 (courbe rouge) en fonction du temps, lorsque le milieu est excité par une impulsion de pompe et une sonde séparées d'un délai de 12 ns. (b) énergie du Stokes le long de la fibre, pour différents délais entre la pompe et la sonde. (c) fraction d'énergie du Stokes par rapport à toute l'énergie venant de l'impulsion de pompe, pour des longueurs de propagation de 2 m (en rouge) et 80 cm (en vert) [87].

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Dans ce manuscrit, nous reprendrons ces résultats pour aller plus en détail sur l'étude de la cohérence moléculaire Raman. En particulier, nous nous intéressons à l'interférence entre deux champs Stokes générés à des instants différents.

IV.3. Caractérisations de la cohérence Raman et de la différence de population

Considérons un milieu Raman cylindrique, comme peut l'être une fibre creuse remplie de gaz, de longueur L et de rayon de cœur r. Une impulsion lumineuse se propage le long de ce milieu en excitant sur son passage les molécules de gaz. Elle les entraine ainsi dans une vibration et un accord de phase se met en place le long du milieu Raman. On dit qu'une onde de cohérence s'établit au sein de ce dernier. Ceci est illustré dans les équations par la phase spatiale de Q qui possède un vecteur d'onde optique, bien que Q soit relié directement aux molécules. Il y a deux quantités qui caractérisent la cohérence d'un milieu Raman : la première est la phase, qui est caractéristique d'une certaine oscillation ou d'une synchronisation, et la seconde est justement le nombre de molécules qui se synchronisent.

Les questions auxquelles ce chapitre va tenter de répondre sont les suivantes : comment survit la cohérence établie au sein d'un milieu Raman ? Quel est le nombre de molécules dont la cohérence survit ? Pour y répondre un programme[2] basé sur les équations (2.52), vues dans le chapitre II, et simulant la situation décrite dans le paragraphe précédent est utilisé.

Prenons pour commencer un exemple représentatif des études expérimentales menées dans ce chapitre. La *Figure 39* présente une cartographie spatio-temporelle de la cohérence Raman (ρ_{12}) ainsi que de la différence de population ($D+1$) après le passage d'une impulsion dans le milieu simulé. Cette impulsion de longueur d'onde 1064 nm est d'une durée de 700 ps. Son intensité effective est de 84 GW/cm², ce qui donne un gain net Raman de 10 750 au sein d'une fibre de 4 mètres de long et de 4 µm de rayon de cœur (ce qui est typique d'une fibre à BIP). La pression d'hydrogène dans la fibre est de 20 bars, portant le coefficient de gain Raman g_{SS} à une valeur de 0,32 cm/GW. Le temps de relaxation de la différence de population T_1 est fixé à 100 ns et le temps

[2] Remerciements à Anton Husakou pour la rédaction de ce programme.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

de relaxation moléculaire T_2 à 20 ns. Cette même figure présente également une cartographie de la différence de population selon ces mêmes paramètres. Nous pouvons observer tout d'abord qu'avant le passage de l'impulsion (délai temporel négatif), aussi bien la différence de population que la cohérence sont extrêmement faibles (zones noires). Ensuite, lorsque l'impulsion arrive la cohérence et la différence de population augmentent très rapidement de plusieurs ordres de grandeur. La cohérence est alors uniforme le long de la fibre, ce qui n'est pas le cas de la différence de population qui dépend fortement de la longueur du milieu Raman. Enfin, lorsque le délai après le passage de l'impulsion augmente, la cohérence et la différence de population décroissent toutes les deux, suivant des temps T_1 et T_2, respectivement.

La *Figure 40(a)* montre sur un même graphique l'évolution de la cohérence Raman et de la différence de population en fonction du temps pour une longueur de milieu donné (ici 4 mètres). Ceci correspond à la dernière « tranche » de l'axe des ordonnées des cartographies ci-dessus. On voit bien l'augmentation brutale (environ 8 ordres de grandeur) des deux variables observées ici au moment où l'impulsion arrive, puis les décroissances suivant des temps respectifs (T_1 pour la différence de population et T_2 pour la cohérence). De la même manière, la *Figure 40(b)* présente l'évolution de la cohérence et de la différence de population en fonction de la longueur du milieu, une fois l'impulsion passée. Pour la suite, nous avons choisi d'étudier l'influence de certains paramètres sur les niveaux de cohérence et de différence de population atteints, notamment la durée des impulsions et le gain.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

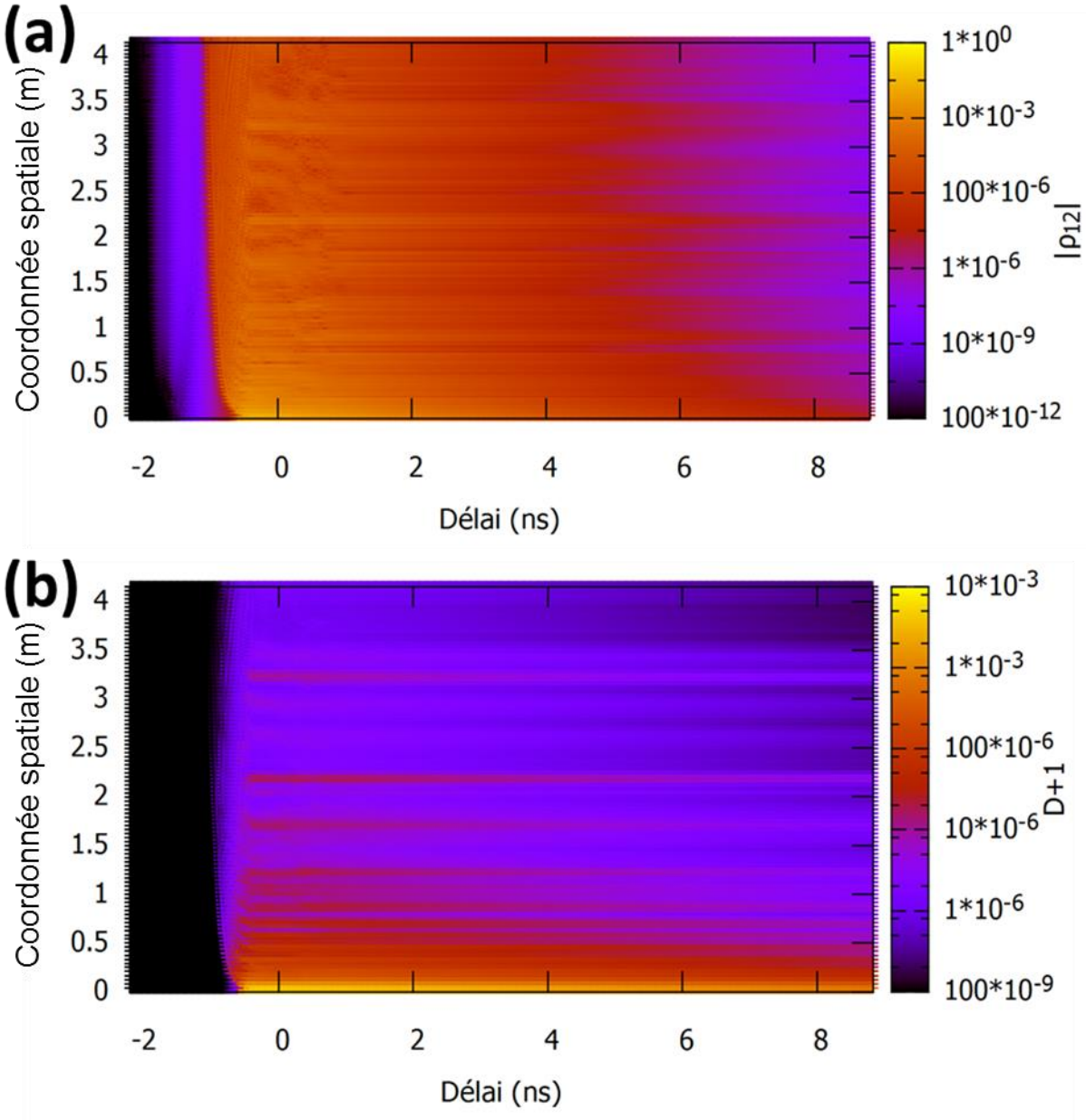


Figure 39 : Cartographies spatio-temporelles (a) de la cohérence Raman et (b) de la différence de population (D+1) en fonction du délai après le passage de l'impulsion de pompe (en ns) et de la coordonnée spatiale au sein de la fibre (en m).

Licence CC BY-NC-ND 3.0

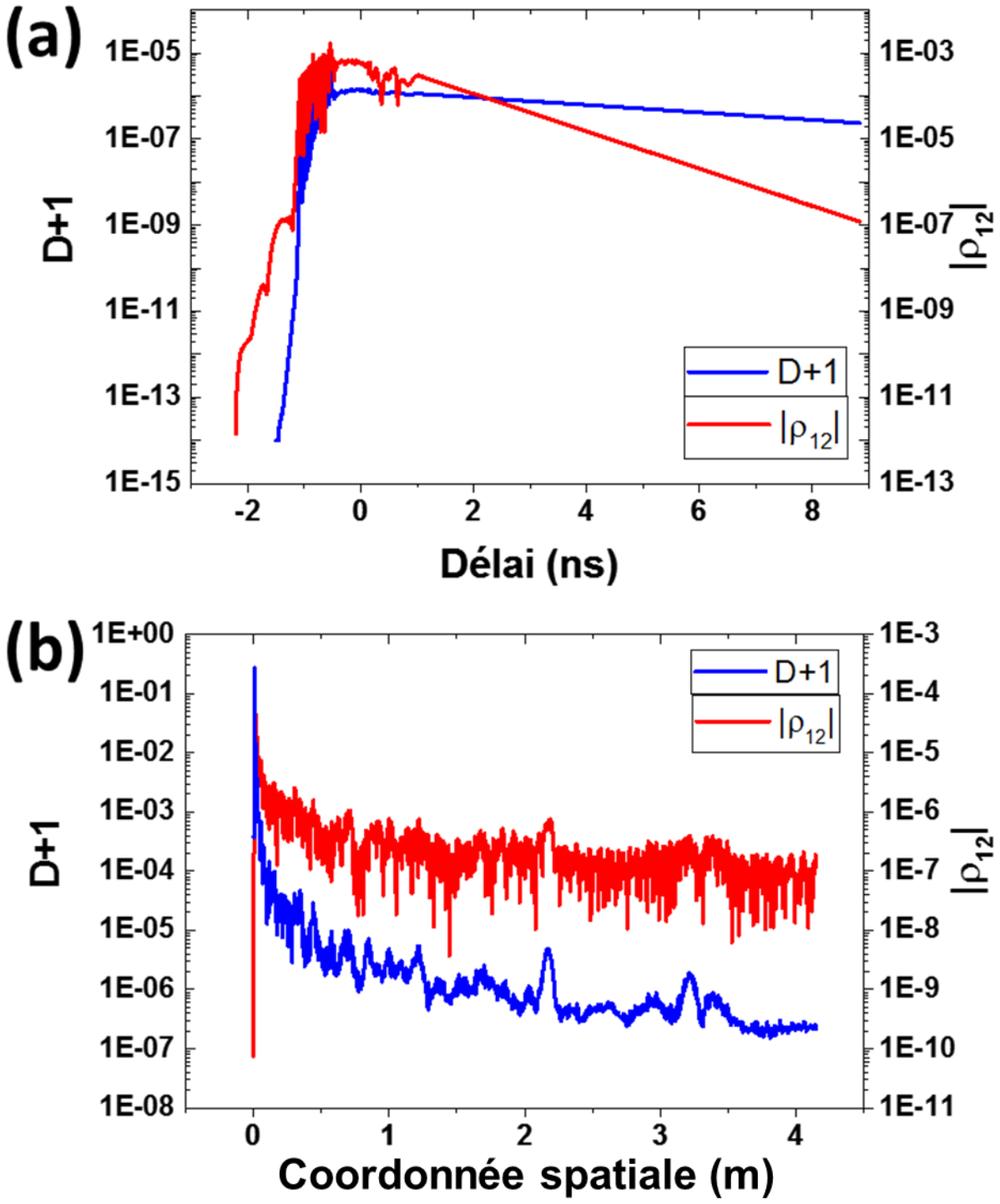


Figure 40 : Evolution de la cohérence et de la différence de population (a) en fonction du temps et pour une position donnée dans le milieu Raman (ici la sortie des 4 mètres de fibre), et (b) en fonction de la position dans le milieu Raman après le passage de l'impulsion.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

IV.3.1. Etude en fonction de la durée des impulsions

La *Figure 41(a)* montre des résultats similaires pour différentes durées d'impulsions. Aucun autre paramètre décrit auparavant ne change, en particulier G_{ss} = 10 750. Les résultats sont présentés en fonction de la position au sein du milieu Raman (la fibre remplie de gaz). Il est intéressant de constater que la cohérence $|\rho_{12}|$ augmente avec la durée d'impulsion, et la valeur maximale atteinte augmente également. Pour la cohérence, elle atteint ~10^{-4} pour des impulsions de 1 ns, pour seulement 6.10^{-7} avec des impulsions de 1 ps. Cette valeur maximale est en tout cas atteinte plus tôt dans le milieu avec une durée d'impulsion plus grande. En d'autres termes, plus la durée d'impulsion est large, plus la longueur de milieu nécessaire pour atteindre la valeur maximale est courte. La *Figure 41(b)* présente une évolution similaire pour la différence de population $D+1$. La valeur maximale atteinte pour une impulsion de 700 ps est de 0,27 tandis que celle obtenue pour une impulsion de 1 ps est de $2{,}3.10^{-6}$. Encore une fois, la longueur de propagation dans le milieu nécessaire pour atteindre ce maximum diminue avec l'augmentation de la durée d'impulsion.

La *Figure 42* présente en fonction de la durée d'impulsion τ et pour différentes valeurs de gain stationnaire G_{SS}, les maximums de cohérence et de différence de population obtenus, et la position L_{max} de milieu Raman à laquelle le maximum est atteint. Ainsi, cela nous permet de dimensionner notre système et de dire que pour un couple de longueur de fibre et de durée d'impulsion (L,τ) donné nous pouvons obtenir une cohérence maximale d'une valeur donnée. Les résultats peuvent être résumés par le fait que plus le gain est fort, plus L_{max} est petite, comme on devrait s'y attendre dans une DRS. Aussi, la population excitée et la cohérence augmentent. A titre d'exemple, on remarque que pour un G_{ss} = 100, nous avons L_{max} valant environ 1 m pour une durée d'impulsion de 10 ps, et les maximums de cohérence et de différence de population sont respectivement de 10^{-7} et de 10^{-4}. En parallèle, pour G_{ss} = 50 000, la longueur de la fibre nécessaire est seulement de 2 cm, et le maximum atteint en cohérence est 100 fois supérieur au cas de G_{ss} = 100.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

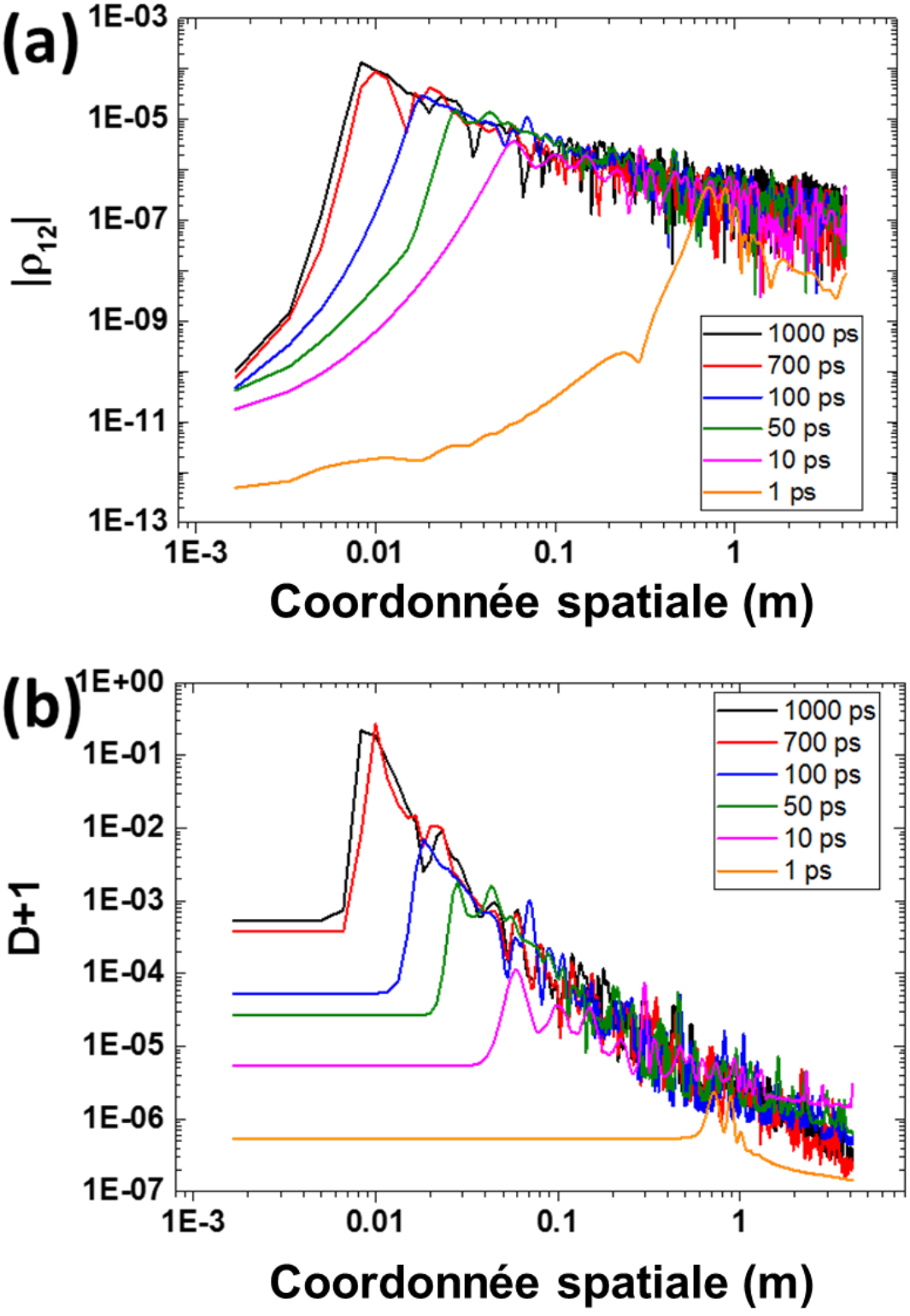


Figure 41 : (a) Evolution de la cohérence Raman le long du milieu, après le passage de l'impulsion. (b) Evolution de la différence de population le long du milieu, après le passage de l'impulsion. Différentes durées d'impulsions sont testées, de 1 ps à 1 ns.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

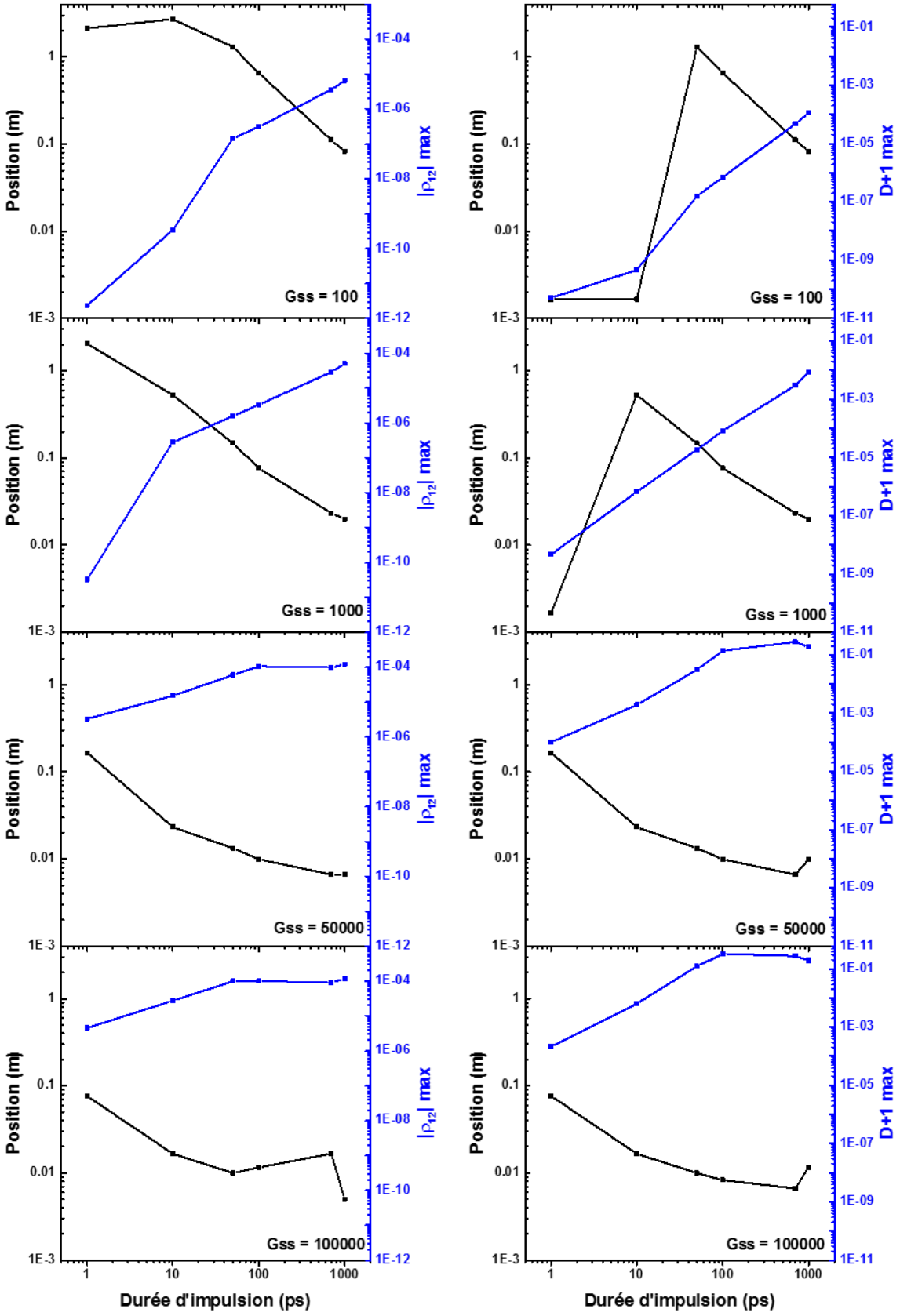


Figure 42 : (Colonne de gauche) valeur maximale de cohérence et sa position le long du milieu Raman en fonction de la durée d'impulsion. (Colonne de droite) valeur maximale de la différence de population et sa position le long du milieu Raman en fonction de la durée d'impulsion. Différents gains sont testés.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

IV.3.2. Etude en fonction du gain

Après avoir étudié le comportement du milieu après le passage d'impulsions de durée variable, nous choisissons de fixer cette dernière à 10 ps et de changer cette fois la valeur de gain. Pour balayer des valeurs de gain allant de 100 à 100 000 nous allons ainsi changer l'intensité effective des impulsions traversant le milieu simulé de 780 MW/cm² à 780 GW/cm².

Les résultats concernant la cohérence sont présentés dans la *Figure 43(a)*. Comme pour la durée d'impulsion dans la section précédente, plus le gain est fort plus le niveau de cohérence atteint est élevé, et plus il est atteint rapidement au sein du milieu. Pour un gain de 100 000, le maximum de cohérence est de $2{,}71.10^{-5}$, alors qu'il n'est que de $3{,}42.10^{-10}$ pour un gain de 100.

La *Figure 43(b)* s'attarde pour finir sur la différence de population *D+1*. Le gain a là encore le même effet : plus il est fort, plus le maximum atteint l'est également. Dans l'exemple simulé ici, la différence de population atteint ainsi $6{,}4.10^{-3}$ pour un gain de 100 000 et reste très basse, à $4{,}62.10^{-10}$, pour un gain de 100.

La *Figure 44* présente le même type de résultats que la *Figure 42*, mais nous regardons l'évolution des niveaux de cohérence et de différence de population en fonction du gain net stationnaire, et pour des durées d'impulsion fixées. Pour citer des exemples, on remarque que pour une durée d'impulsion de 10 ps, nous avons L_{max} valant environ 2 m pour un gain de 100, et les maximums de cohérence et de différence de population sont, respectivement, de 10^{-5} et de 10^{-2}. A l'opposé, pour une durée d'impulsion de 1 ns, la longueur de fibre nécessaire est d'à peine 10 cm. Cependant, pour un gain net de 100 000, la cohérence qui est d'environ 3.10^{-5} avec une impulsion de 10 ps ne s'élève qu'à 10^{-4} avec une impulsion de 1 ns.

La *Figure 45* montre enfin les niveaux de cohérence et de différence de population qu'il est possible d'atteindre en fonction du temps et pour une longueur de fibre donnée (4 mètres ici). Plus le gain net en régime stationnaire augmente, plus la valeur maximale de cohérence et de différence de population augmentent. Elles peuvent atteindre respectivement 10^{-3} et 10^{-5} pour un gain de 100 000.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

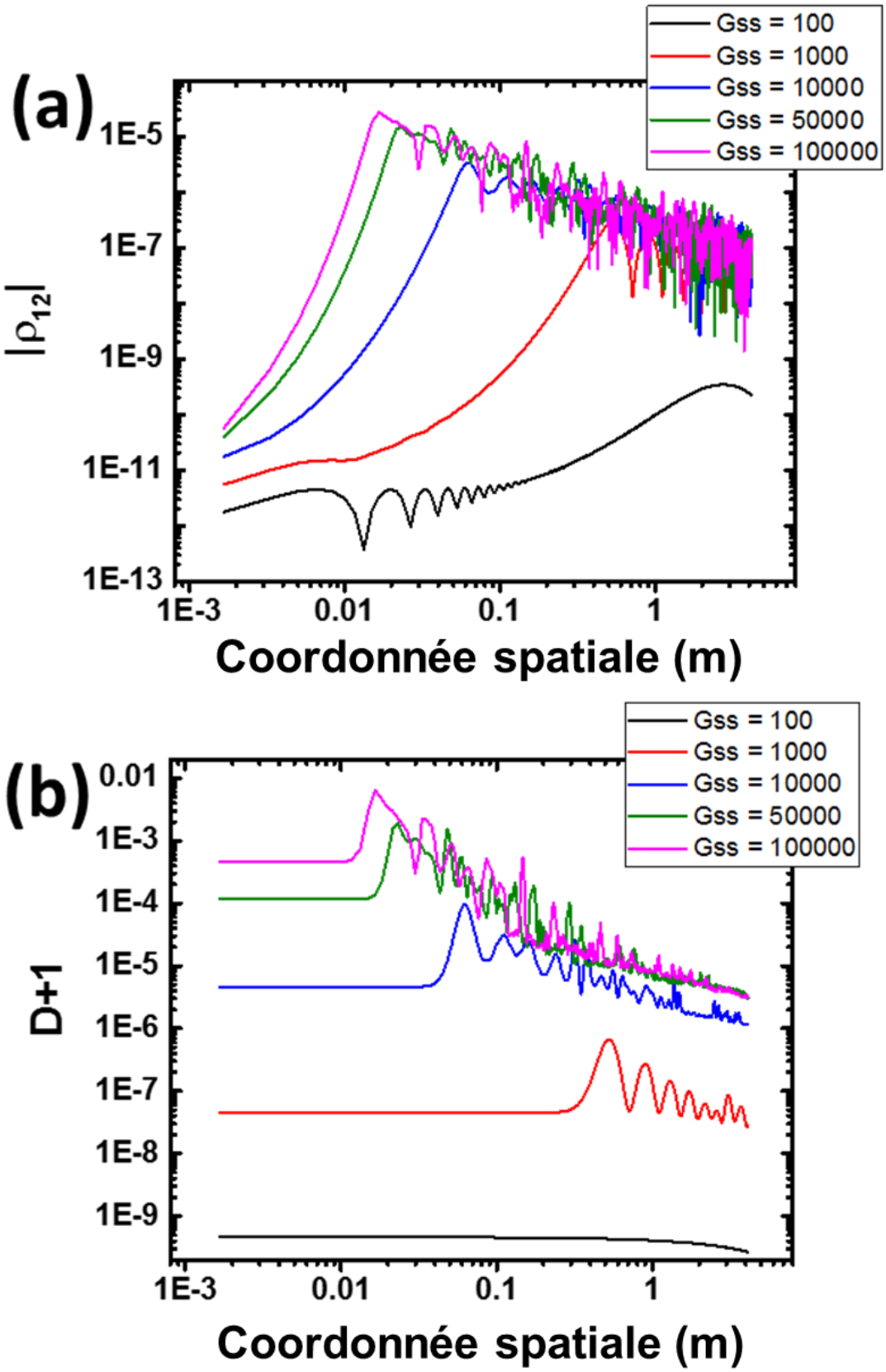


Figure 43 : (a) Evolution de la cohérence Raman le long du milieu, après le passage de l'impulsion. (b) Evolution de la différence de population le long du milieu, après le passage de l'impulsion. Différents gains nets sont testés, de 100 à 100 000.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

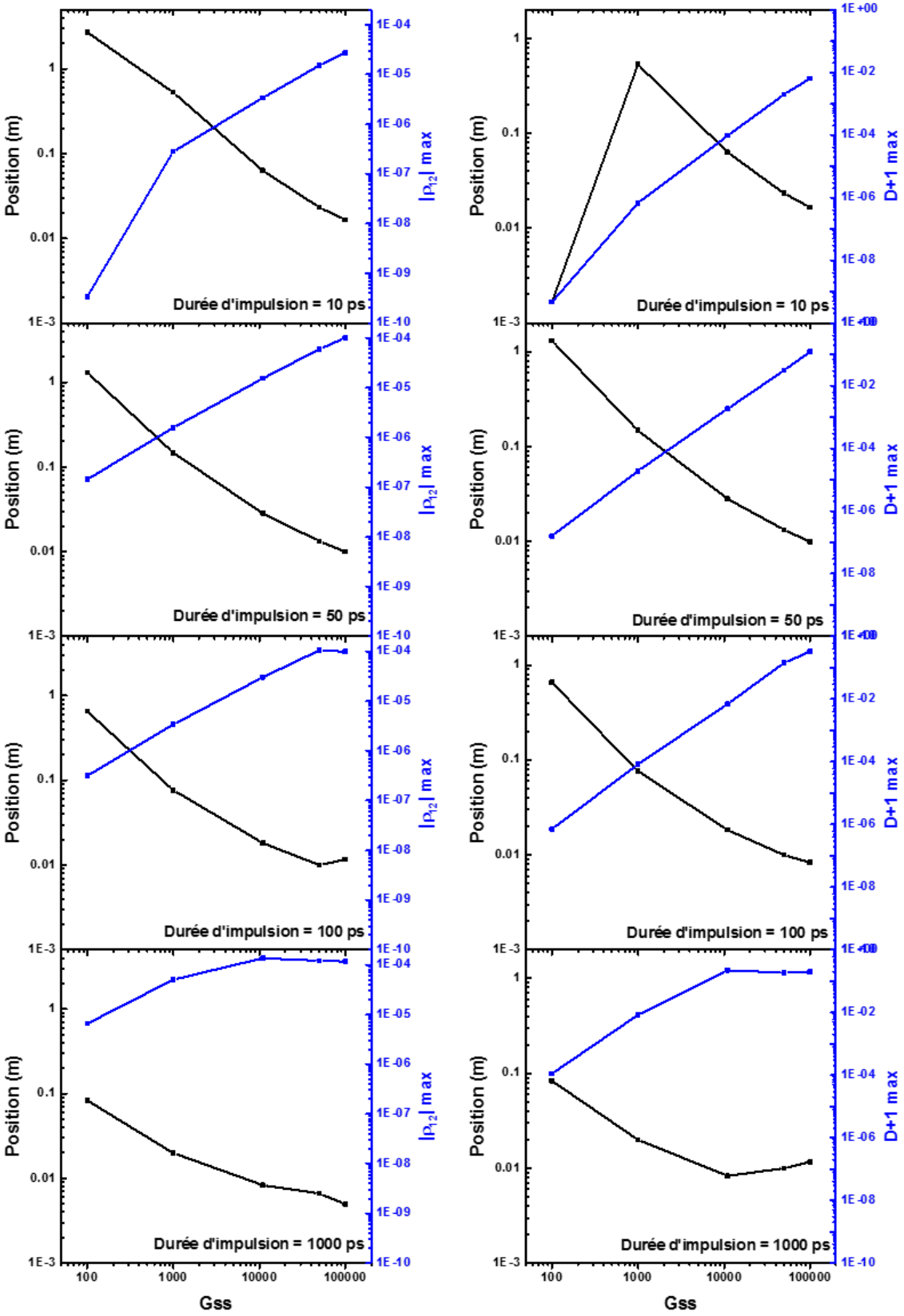


Figure 44 : (Colonne de gauche) valeur maximale de cohérence et sa position le long du milieu Raman en fonction du gain net. (Colonne de droite) valeur maximale de la différence de population et sa position le long du milieu Raman en fonction du gain net. Différentes durées d'impulsions sont testées.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

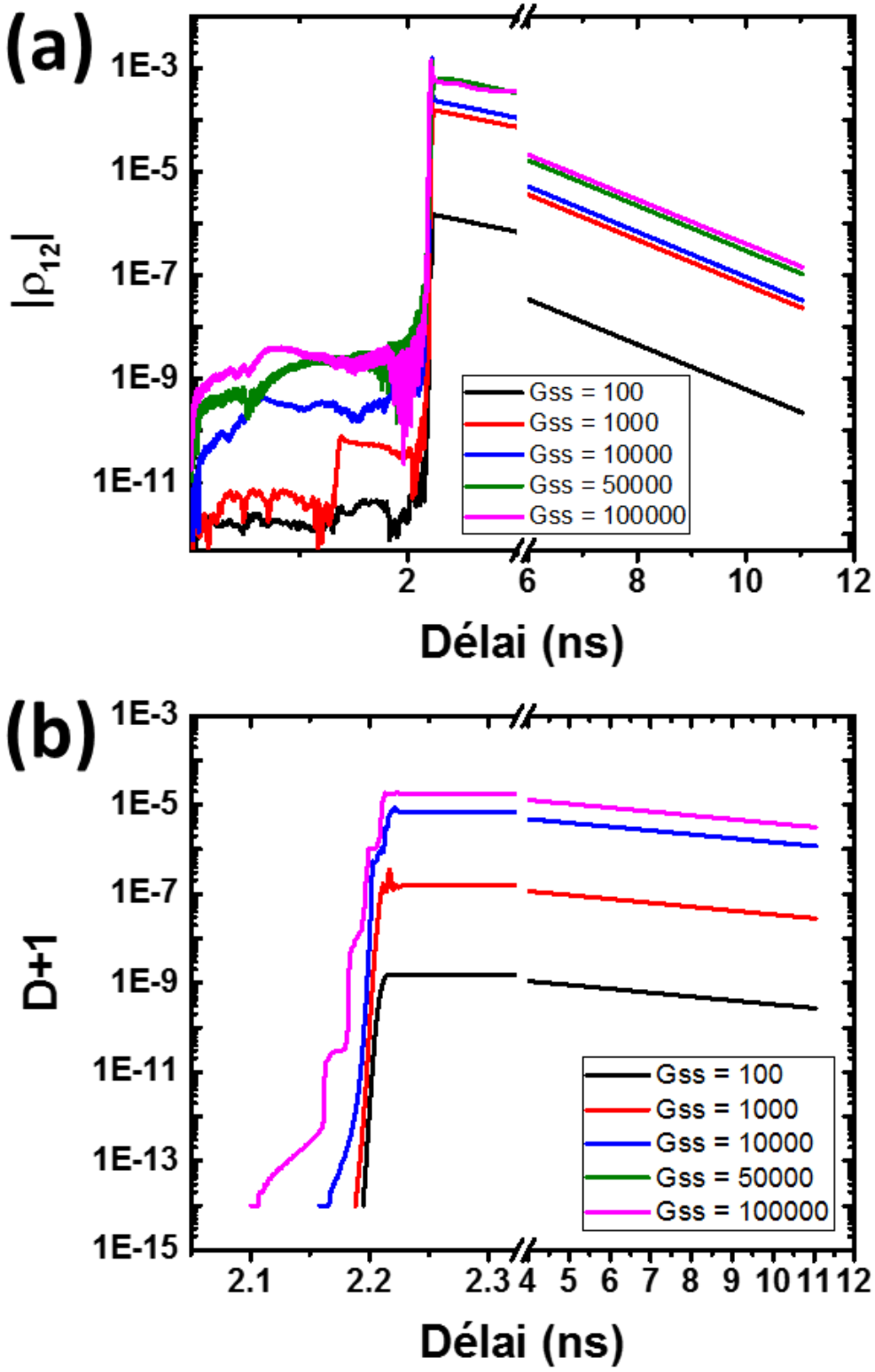


Figure 45 : (a) Evolution de la cohérence Raman en fonction du temps et pour une position donnée dans le milieu Raman (ici la sortie des 4 mètres de fibre) (b) Evolution de la différence de population. Différents gains nets en régime stationnaire sont testés, de 100 à 100 000.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Les résultats présentés dans cette section montrent ainsi qu'il est possible de dimensionner un système optique de manière à viser un certain niveau de cohérence (et de différence de population). Nous allons maintenant voir comment il est également possible, de manière expérimentale, d'avoir une idée de la survie de cette cohérence Raman.

En conclusion, les résultats présentés ci-dessus montrent que pour une plage entre 1 ps et 1 ns, et pour une plage de gain stationnaire entre 1 000 et 100 000, la cohérence varie entre 10^{-7} et 10^{-4}, alors que la différence de population varie entre 10^{-4} et 10^{-1}. Ces intervalles permettent de déduire à partir de l'équation (4.2) le délai maximal de la persistance de la cohérence pour une génération du Stokes par modulation moléculaire. On trouve que $316T_2$ pour une durée de 1 ns et G = 100 000, et T_2 pour une durée de 1 ps et G = 1 000. Enfin, pour le cas concernant les travaux présentés au chapitre VIII, où la durée est de 10 ps et le gain stationnaire pouvant aller jusqu'à 20 000, t_{max} prend une valeur de 14 ns.

IV.3.3. Etude de la visibilité en fonction du délai

Afin de tenter de confirmer la dynamique du temps de relaxation moléculaire telle qu'elle est suggérée par les mesures expérimentales décrites au début de ce chapitre, et en vue de fournir davantage de données, la corrélation entre les champs Stokes générés par un même milieu mais à deux instants différents est examinée. L'approche est donc ici interférométrique.

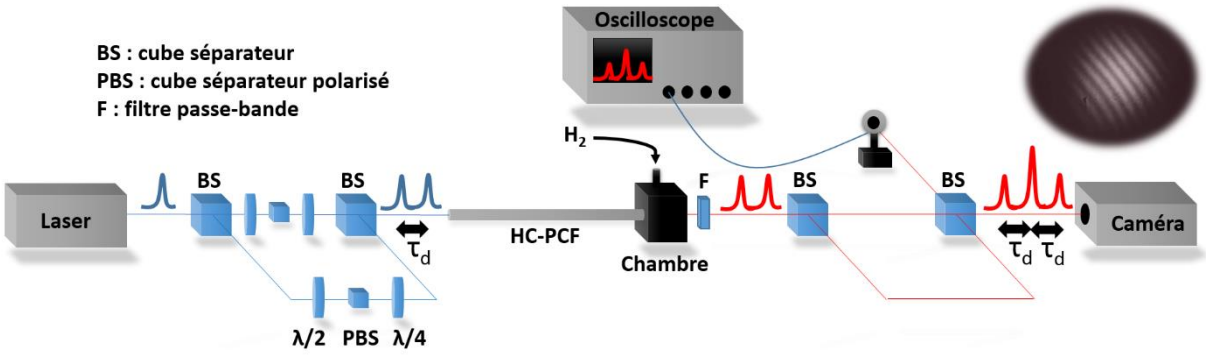


Figure 46 : Schéma du montage expérimental interférométrique utilisé pour la mesure de la visibilité du Stokes. En insert : exemple de franges d'interférences observées.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

En d'autres termes, nous voulons étudier de quelle manière des impulsions Stokes sont générées par deux impulsions de pompe séparées par un délai, et comment ces Stokes sont corrélés en mesurant leurs franges d'interférences. Le montage est présenté en *Figure 46*. Le faisceau de la source laser émettant avec une cadence de 500 Hz des impulsions de 700 ps à 1064 nm est séparé en deux parties d'égales puissances, l'une se voyant infliger un certain délai τ_d par rapport à l'autre. Les faisceaux sont injectés dans une fibre à BIP (se reporter au chapitre III pour plus de détails sur les propriétés linéaires de la fibre) de 4 mètres de long et 8 µm de diamètre de cœur avant d'être séparés à nouveaux, avec un délai τ_d identique à celui d'avant la fibre. Un filtre passe-bande centré à 1150 (± 50) nm ne laisse passer que le premier Stokes rotationnel à 1135 nm nécessaire à cette expérience. Des franges sont alors visibles telles que le présente la *Figure 46* en insert. Celles-ci sont enregistrées par une caméra infrarouge (InGaAs) pour différents délais d'environ 5 à 28 ns. 20 images sont enregistrées pour chaque délai. La superposition temporelle des impulsions est contrôlée à l'aide d'un oscilloscope, la superposition spatiale directement à l'aide de la caméra.

A partir d'une image de franges d'interférences telle que celle de la *Figure 47(a)* donnée en exemple, il est possible de remonter à leur valeur de contraste (ou de visibilité) (*Figure 47(b)*). Cette opération est répétée plusieurs fois pour un même délai afin d'en extraire une valeur moyenne, puis elle est répétée à nouveau pour différents délais. Le résultat final est présenté en *Figure 48*, où chaque point représente une valeur moyenne de visibilité obtenue sur les 20 mesures réalisées pour un délai donné.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

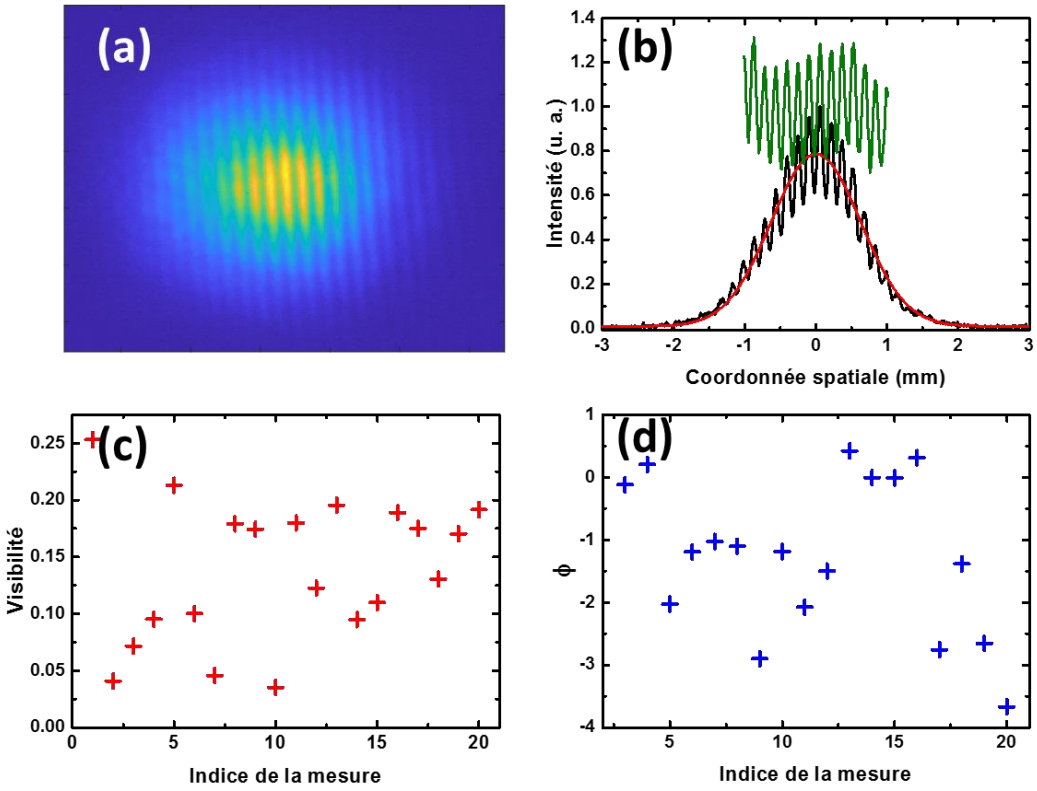


Figure 47 : (a) Exemple typique de franges d'interférences observées entre deux Stokes générés par deux impulsions de pompe consécutives, (b) extraction de la visibilité. (c) ensemble de visibilités et (d) de phases mesurées pour un délai donné de 27,93 ns.

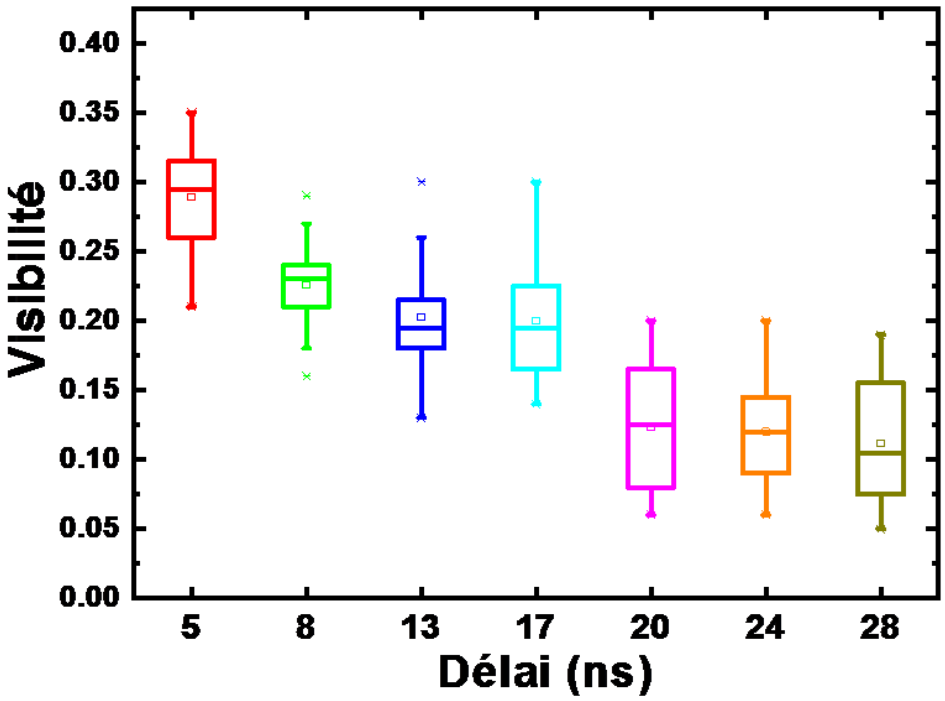


Figure 48 : Visibilité des franges d'interférences en fonction du délai entre les impulsions Stokes générées dans la fibre.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Cette figure présente une valeur de visibilité de près de 30% pour un délai de 5 ns, qui décroit jusqu'à près de 15% pour un délai de 28 ns. Les résultats expérimentaux sont ajustés par une fonction exponentielle décroissante en un temps de 29 ns, soit plus de 50 fois la durée de relaxation moléculaire T_2.

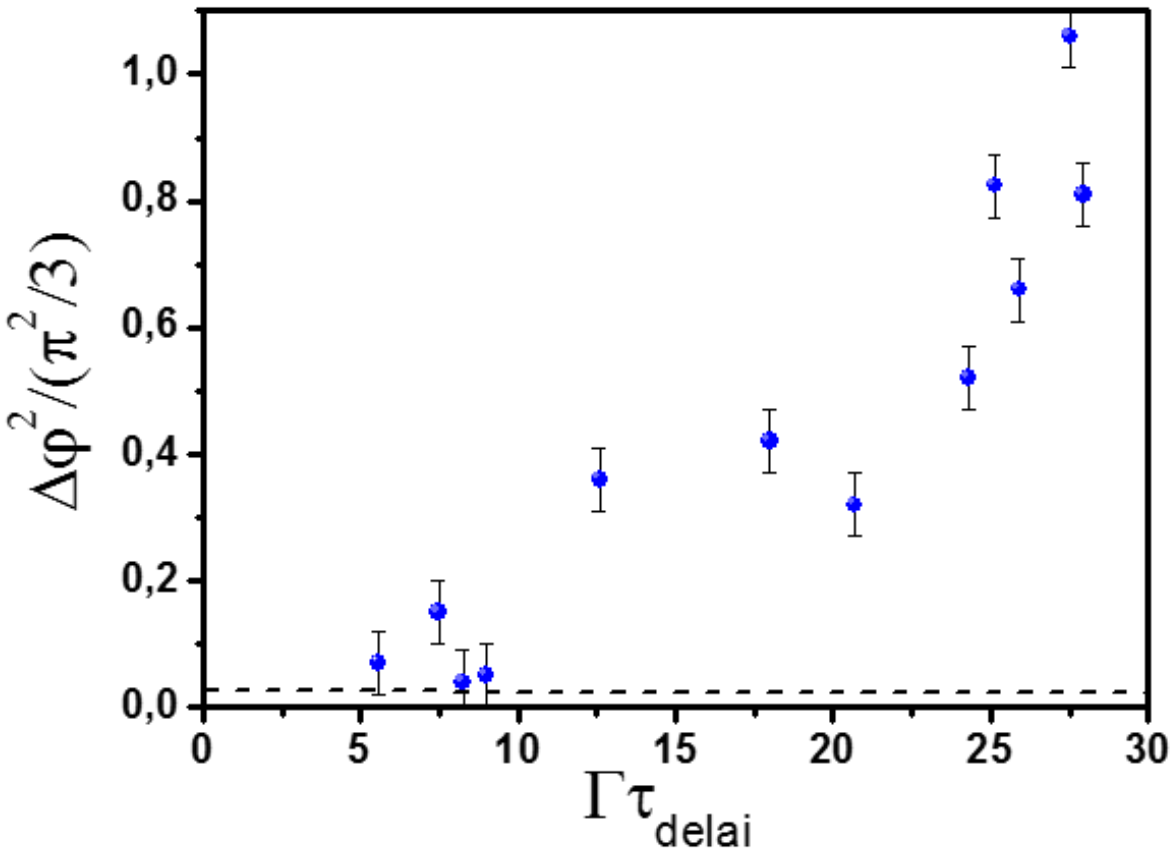


Figure 49 : Variance de la phase normalisée tracée en fonction du délai entre les impulsions, lui-même normalisé par Γ. En pointillés est tracée la gigue propre au laser lui-même.

Une autre information d'importance qu'il est possible d'extraire des franges d'interférences prises ci-dessus est la phase, en particulier la variation de celle-ci d'une image à l'autre. La stabilité des franges dans le temps permet en effet de se renseigner sur le niveau de cohérence du milieu Raman. En théorie, plus la cohérence est élevée plus les franges doivent être stables, et plus la fonction sinus servant à ajuster ces franges doit avoir une phase stable. C'est ce que présente la *Figure 49* qui démontre que plus le délai entre les impulsions est court, plus la variance de la phase diminue. La phase du Stokes est donc mieux définie si le délai avec le Stokes d'avant est court. Ceci illustre bien que plus le second Stokes arrive rapidement après le premier, plus il

Licence CC BY-NC-ND 3.0

bénéficie d'un milieu dans lequel l'amplification d'un mode spatio-temporel privilégié par rapport aux autres a eu lieu. Si ce même mode est amplifié d'un Stokes à l'autre, alors sa phase sera unique, et la variance de phase observée sur des impulsions consécutives sera faible. Cette variance croît donc avec le délai, jusqu'à atteindre une valeur de 1 pour un délai de près de 28 ns ici.

IV.3.4. Etude de la visibilité en fonction de la pression de gaz et de la puissance

L'étude réalisée ici vient compléter les résultats évoqués précédemment. Le montage optique reste ici le même que le montage décrit dans la section précédente. Cette fois, comme le titre l'indique, c'est l'influence de la pression d'hydrogène qui est examinée. Celle-ci varie de 15 à 37 bars. Pour chaque pression de gaz, différentes mesures de visibilité sont effectuées pour différentes puissances moyennes injectées dans la fibre. Le délai entre les impulsions est quant à lui ici fixé à 13,3 ns. Les différents résultats obtenus sont résumés dans la *Figure 50*.

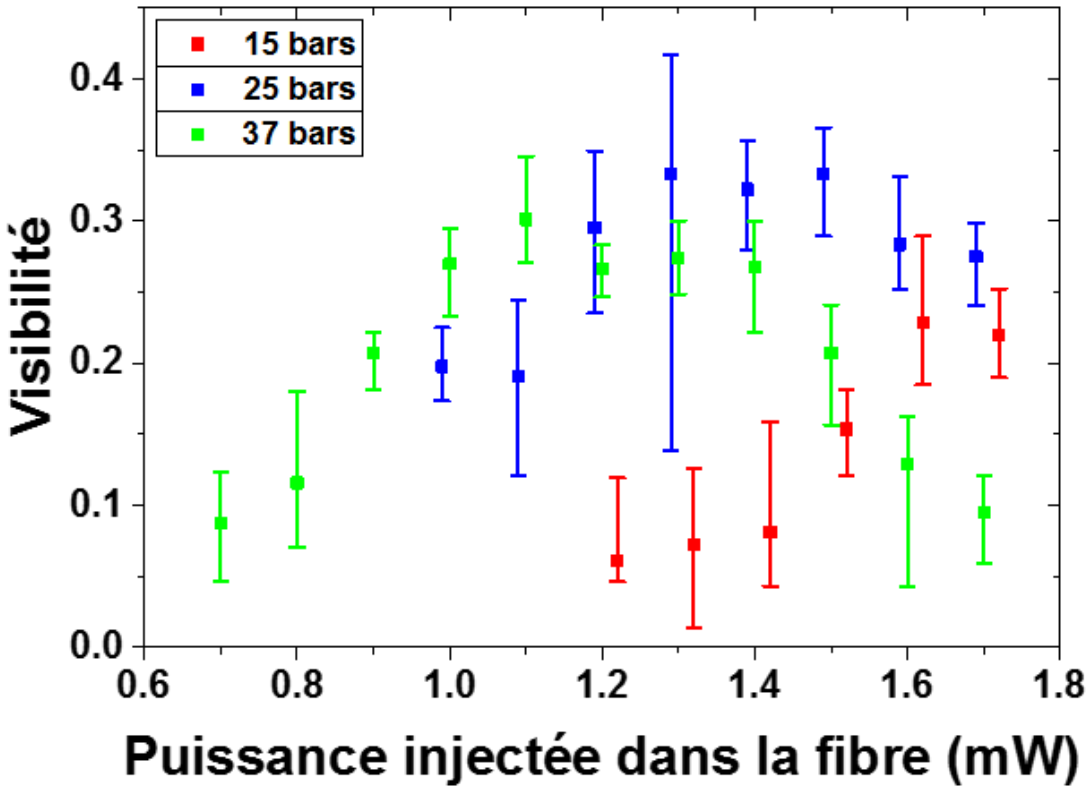


Figure 50 : Visibilité du Stokes en fonction de la puissance moyenne injectée dans la fibre à BIP, pour différentes pressions d'hydrogène à l'intérieur de cette dernière.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

A 15 bars, la visibilité est d'un peu plus de 5% pour une puissance de 1,22 mW et atteint les 23% à 1,72 mW. A 25 bars, elle démarre à 20% à 1 mW et atteint 33% à 1,5 mW avant de chuter légèrement à 28% à 1,7 mW. Pour une pression de 37 bars, la visibilité démarre à 8% à 0,7 mW avant d'atteindre de 27% à 31% pour des puissances comprises entre 1 et 1,4 mW, puis chute jusqu'à 9% à 1,7 mW. Cette chute que l'on peut commencer à observer à 25 bars est due à l'apparition du Stokes rotationnel du second ordre à 1216 nm. Une haute pression dans la fibre couplée à une puissance suffisante permet la génération de ce Stokes d'ordre supérieur. Ce dernier hérite d'une partie du gain disponible, qui n'est donc pas entièrement consacré à la génération du Stokes de premier ordre à 1135 nm. Or d'après le chapitre II, si le gain diminue le filtrage des modes spatio-temporels lors de la genèse du Stokes est moins efficace. Ceci a pour conséquence de réduire la cohérence de l'impulsion et donc, *in fine*, le contraste des franges d'interférences.

On peut également observer que la visibilité augmente avec la puissance, et qu'elle augmente avec la pression dans le sens où elle commence à devenir mesurable pour des puissances plus faibles lorsque la pression est supérieure. On commence en effet à pouvoir mesurer une visibilité à partir de 1,22 mW à 15 bars, puis de 0,99 mW à 25 bars et enfin de 0,7 mW à 37 bars. On peut expliquer ce phénomène par la dépendance en pression du coefficient de gain Raman rotationnel (vue en chapitre II également), plus la première augmente, plus le second augmente aussi.

En vue par exemple de réaliser un laser à blocage de modes Raman par ce biais, il ne serait donc pas nécessaire d'utiliser une forte pression dans la fibre pour une meilleure efficacité. Une haute pression serait utile dans le cas où la puissance de pompe disponible serait faible. A partir de 1,2 mW de pompe, la visibilité est meilleure pour une pression de 25 bars et à partir de 1,6 mW elle l'est même pour seulement 15 bars. Il y a donc un compromis à trouver entre puissance de pompe et pression de gaz.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

IV.4. Résumé

Nous avons ici présenté une série de résultats numériques montrant l'évolution spatio-temporelle de la cohérence et la population Raman pour différentes durées d'impulsion et différents gains stationnaires. En particulier, nous nous sommes intéressés aux valeurs maximales que peuvent prendre la cohérence et la différence de population. Les résultats montrent que pour une plage de durées d'impulsion entre 1 ps et 1 ns et pour une plage de gains stationnaires entre 1 000 et 100 000, la cohérence varie entre 10^{-7} et 10^{-4}. Parallèlement, la longueur de la fibre requise, présenté par la position des maximums de cohérence et de différence de population dans la fibre, varie entre 1 cm et 1 m. Ces résultats ont permis de donner le temps de persistance de la cohérence Raman pour différent cas de figures d'impulsions de pompe. Un montage expérimental interférométrique a été mis en place pour l'étude des dynamiques spatiale et temporelle de la cohérence moléculaire Raman. Les résultats montrent que pour un laser de pompe nanoseconde, la cohérence moléculaire subsiste pour une durée de plus de 20 ns. Compte tenu d'un tel délai, un laser de pompe délivrant des impulsions ayant suffisamment d'énergie pour déclencher un effet Raman et avec une cadence autour de 50 MHz permettrait de réaliser un nouveau type de laser à blocage de modes Raman. Cette cadence est accessible avec certains lasers commerciaux, de plus, avec un laser donnant un gain stationnaire plus élevé que celui utilisé ici (~2000), il est donc envisageable d'explorer l'idée de réaliser un laser à verrouillage de modes avec ces cadences inférieures à 50 MHz.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Licence CC BY-NC-ND 3.0

CHAPITRE V

Seuil entre les régimes transitoire et spontané de la diffusion Raman stimulée

Le chapitre reporte des résultats expérimentaux impliquant l'évolution de l'intensité du champ Stokes avec la durée d'impulsion du laser de pompe, et pour différentes valeurs de gain stationnaire. L'impulsion Stokes est générée par la résonnance Raman vibrationnelle du dihydrogène contenu dans une fibre creuse. L'intervalle de durée d'impulsion de pompe exploré s'étend de 10 ps à 250 fs, alors que le gain stationnaire réalisé peut atteindre une valeur de 100 000. Cet espace de durée et de gain a permis la première démonstration expérimentale montrant la limite séparant le régime transitoire de la diffusion Raman stimulé de l'émission Raman spontanée. Les résultats montrent que la fibre creuse remplie de dihydrogène reste un excellent convertisseur de fréquence, même pour des impulsions de pompe aussi courtes que 250 fs si le gain stationnaire est supérieur à 27 000. Aussi, le chapitre reporte sur l'évolution du seuil du régime stimulé en fonction de la durée d'impulsion de pompe. Ces résultats ont permis de déduire pour la première fois l'expression de l'intensité de l'émission Raman spontanée intervenant dans les instants originels de la diffusion Raman stimulée.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

V.1. Introduction

Dans le premier chapitre nous avons montré l'atout des fibres optiques à cœur creux par rapport aux capillaires et aux configurations en espace libre pour l'interaction lumière-matière par l'utilisation de grandes distances et d'aire modale fortement confinée. Une des conséquences directes de cette configuration fibrée est l'exacerbation des effets non-linéaires, permettant à ces derniers d'apparaitre à des intensités fortement réduites. Cette propriété a particulièrement changé les conditions déterminantes de la dynamique de la diffusion Raman stimulée [16]. En effet, il est dorénavant possible de se placer en régime transitoire même à des puissances relativement faibles et avec des impulsions de pompe beaucoup plus larges que le temps de déphasage de transition Raman T_2. Ces travaux antérieurs ont démontré expérimentalement et théoriquement, en excitant une fibre creuse remplie de dihydrogène avec des impulsions de pompe beaucoup plus larges que T_2, et dont la durée peut être accordée de 6 ns à 45 ns [16], que l'évolution de l'énergie ou de la puissance du Stokes généré lors de la DRS change de loi d'échelle à des durées d'impulsion $\tau_2 = T_2 G_{ss}$. Pour des durées d'impulsion supérieures à τ_2 l'amplification suit un régime stationnaire (ou permanent) et pour des durées inferieures à τ_2 la DRS suit un régime dit transitoire (se référer au chapitre II). Aussi la théorie [40] prédit qu'il existe un deuxième temps caractéristique de la DRS, $\tau_1 = T_2/G_{ss}$. Ce dernier représente la durée d'impulsion « frontière » entre le régime transitoire et le régime spontané.

L'intérêt dans la détermination de τ_1 et l'exploration de la DRS aves des durées d'impulsion de pompe aussi courtes que τ_1 est double. Tout d'abord il est d'ordre fondamental, car la limite entre le régime spontané et transitoire de la DRS dans une fibre creuse n'a pas été explorée avant les présents travaux. Parmi les points à soulever se trouve la nature du champ Stokes, « seed » qui est amplifiée par le mécanisme de DRS depuis le bruit quantique. Des travaux théoriques antérieurs [40] ont déduit l'expression de l'intensité du Stokes générée par émission spontanée et qui a été amplifiée dans une configuration de propagation monodimensionnelle en espace libre idéalisé. Cependant, dans la configuration guidée comme pour une fibre creuse, cette expression n'est pas nécessairement la même.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Le deuxième intérêt est d'ordre appliqué et technologique. En effet il a été prouvé à plusieurs reprises [14], [16], [22], [89] que la fibre creuse remplie de gaz actif Raman représente un convertisseur de fréquence très efficace. Cependant ces résultats ont été réalisés avec des impulsions dont la durée est supérieure à 25 ps. En parallèle, l'essor des lasers ultra-rapides ou à impulsion ultra-courtes ($\tau \leq 1$ ps) à une longueur d'onde de 1 μm invite à trouver des moyens pour le développement de ce type de laser à d'autres longueurs d'onde. La DRS se pose comme une de ces voies pour développer des lasers ultra-rapides à des longueurs d'onde autres que celles couvertes par les lasers les plus courants tels que les lasers à base d'Ytterbium (émettant à ~1030 nm) ou à base de Titane-Saphir (émettant à ~800 nm). Par exemple, si un effet Raman transitoire stimulé est constaté pour des durées d'impulsions de pompe inférieures à la picoseconde et émettant dans l'infrarouge proche (ex. 1030 nm), alors cet effet pourrait être utilisé afin de proposer de nouvelles sources lasers ultra-courtes dans la gamme spectrale infrarouge (ex. 1.8 μm ou 2 μm).

Dans ce chapitre, nous étudions expérimentalement l'évolution de la puissance du champ Stokes généré par DRS en utilisant un laser de pompe délivrant des impulsions ultra-courtes de durée, τ_p, comprise entre 250 fs et 10 ps, et émettant à 1030 nm. En particulier, nous déduisons le temps caractéristique τ_1 séparant le régime stimulé transitoire du régime spontané. Aussi, après avoir mesuré le seuil de la DRS et son évolution avec τ_p, nous déduisons par deux méthodes différentes l'expression de l'intensité du Stokes « seed » émis spontanément et rentrant dans les premières phases de la DRS.

V.2. Régime d'amplification et plage temporelle de la durée d'impulsion pour une DRS stimulée transitoire

Dans le chapitre II nous avons vu que la diffusion Raman stimulée est un phénomène à seuil et que l'amplification du Stokes à partir du bruit suit trois régimes distincts en fonction de la puissance et de la durée de l'impulsion de pompe d'un côté, et des propriétés du milieu Raman et la configuration d'interaction qui sont représentés par le gain net permanent $G_{ss} = g_{ss}L$ et le temps de la relaxation de la vibration/rotation $T_2 = \Gamma^{-1}$. Parmi ces trois régimes, on en compte un qui est

Licence CC BY-NC-ND 3.0

spontané (RSP) et deux stimulés, qui sont respectivement le régime stimulé stationnaire (RSS) et le régime stimulé transitoire (RST). Le RSP ne porte pas d'intérêt technologique pour les lasers. Au contraire, il est un facteur limitant ou parasitaire dans la conception des lasers, qu'ils soient continus ou impulsionnels. Pour les régimes stimulés, les RSS et RST se distinguent l'un de l'autre par la structure spectro-temporelle des impulsions Stokes générées. Pour le RSS, l'impulsion du Stokes ne montre pas une phase déterministe du fait qu'elle résulte de l'amplification depuis le bruit quantique de plusieurs paquets d'ondes de Stokes émis spontanément, et donc avec des vecteurs d'onde et phases non-corrélés. Cette propriété a fortement limité l'utilisation des sources Stokes comme une alternative aux lasers pulsés, surtout ceux à durée limitée par transformée de Fourier. En revanche, le RST permet potentiellement l'amplification d'un seul paquet d'onde depuis le bruit quantique. A ce titre, le RST représente une plateforme pour explorer des phénomènes quantiques tels que l'amplification à des niveaux macroscopiques d'un état quantique pur [41] ou la génération de sources de lumière cohérente. En effet dans la RST, la génération d'impulsions Stokes peut être fortement cohérente, c'est-à-dire à durée limitée par transformée de Fourier. Elle a ainsi une phase bien déterminée pendant toute la durée de la pompe. Cette propriété a été exploitée et étendue à un peigne spectral constitué de plusieurs Stokes et Anti-Stokes d'ordres élevés [18], [25].

Dans ce contexte, la génération de la DRS dans le RST a été limitée à des durées d'impulsions supérieures à 10 ps. Ceci est dû à la forte réduction du gain Raman dans le régime transitoire (voir équation (2.58)) relativement à G_{ss}. Aussi, les travaux expérimentaux antérieurs montrant les différents régimes de la DRS avec un seul dispositif expérimental ont été réalisés pour la limite RST et RSS [16].

Dans cette partie nous exploitons les progrès réalisés dans le domaine de la fibre creuse, spécialement celle à guidage par couplage inhibé (évoquée au chapitre III) pour étendre cette étude et explorer la DRS à la frontière des RSP et RST. En effet, aujourd'hui, il est possible de combiner des fibres creuses à très faibles pertes linéiques (typiquement ~10 dB/km) et une tenue au flux allant jusqu'à des énergies de plusieurs milliJoules pour des impulsions de plusieurs centaines de femtosecondes.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

La *Figure 51* reprend la courbe des temps caractéristiques normalisés $\Gamma\tau_1$ et $\Gamma\tau_2$ respectivement sur un intervalle de G_{ss} allant jusqu'à 100 000. Ce dernier peut être atteint par le dispositif expérimental décrit dans la section suivante. On remarque que pour G_{ss}=100 000, les conditions du régime RST sont remplies pour des $\Gamma\tau$ variant de 10^{-5} jusqu'à 10^5. Ceci se traduit, pour le cas de l'hydrogène à une pression de 20 bars (Γ=1 GHz), à une plage temporelle de durée d'impulsion de pompe allant de 100 µs à 10 fs. A noter, qu'ici le laser pompe est quasi-monochromatique, et par conséquent nous ne tenons pas compte des effets dû à la largeur spectrale de la pompe ni à l'effet Kerr optique qui limitent légèrement la validité de cette projection.

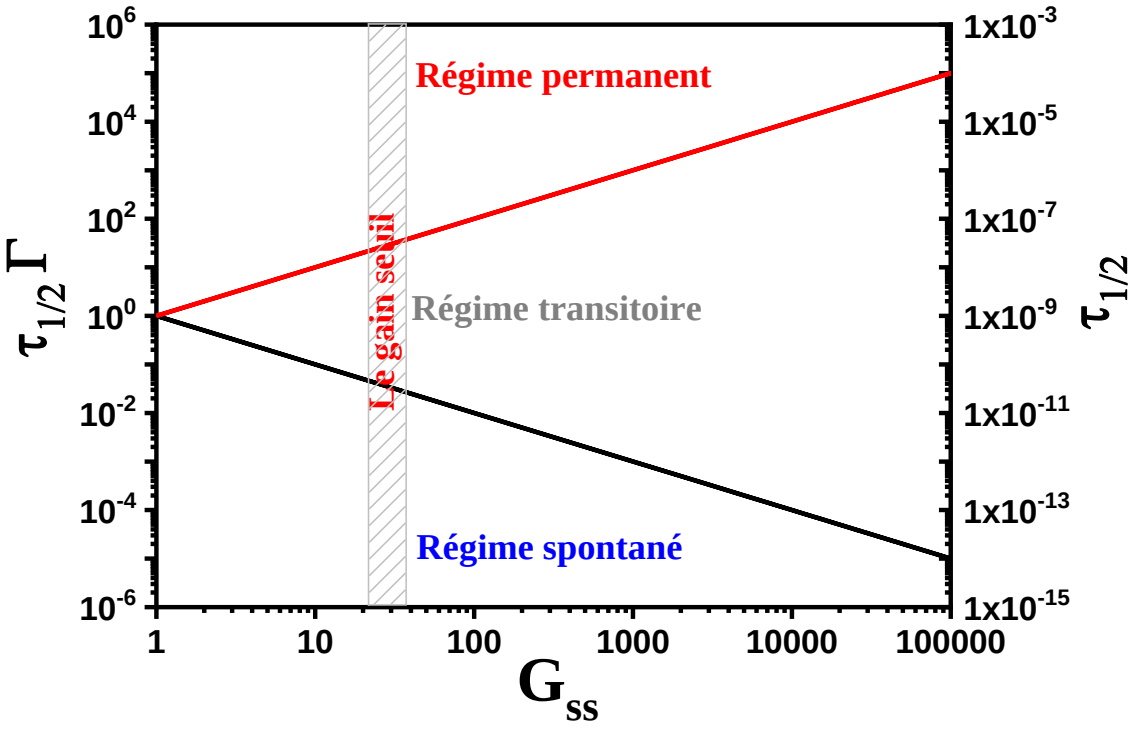


Figure 51 : Les différents régimes Raman délimités par les valeurs de τ_1 et τ_2 en fonction du gain G_{ss}.

La *Figure 52* illustre quant à elle l'évolution de l'intensité Stokes normalisée (équation (2.53)) en fonction de $\Gamma\tau$ pour des valeurs de G_{ss} accessibles par notre dispositif expérimental. Aussi, la figure montre la séparation entre les RSP et RST (en pointillés), et dont les abscisses correspondent à $\Gamma\tau_1$. Enfin, la zone à exploiter expérimentalement est délimitée par les lignes verticales rouges.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

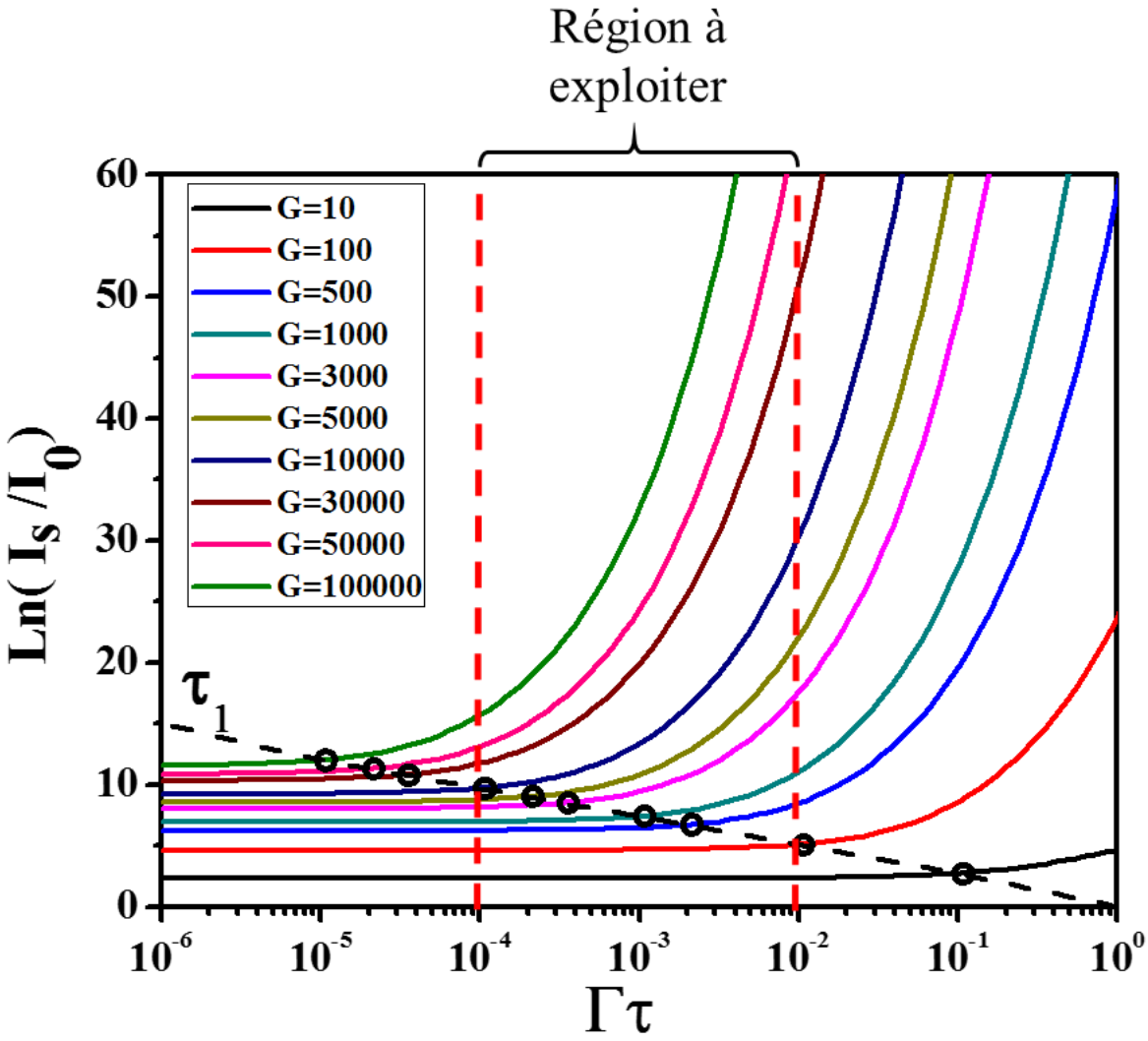


Figure 52 : Intensité du Stokes normalisée en fonction de la durée d'impulsion de pompe normalisée pour différentes valeurs de gain. La droite noire en pointillés représente les différentes durées d'impulsions (en fonction du gain) pour lesquelles on passe du régime spontané au régime transitoire. La zone délimitée par les pointillés rouges représente la gamme de durées d'impulsions accessibles avec le laser de pompe à disposition.

V.3. Dispositif et protocole expérimental

Le laser utilisé dans nos expériences est le laser Tangerine HP de la société Amplitude Systèmes. Celui-ci permet de disposer d'impulsions de durées allant de 250 fs à 10 ps avec une énergie élevée (jusqu'à 200 µJ) à 1030 nm, et avec une cadence de 175 kHz à 2 MHz (*Figure 53*). Dans ce chapitre ainsi que dans les suivants, cette dernière est toutefois fixée à 250 kHz, afin de bénéficier d'une énergie maximale par impulsion. En effet, celle-ci décroit rapidement au-delà de cette cadence.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

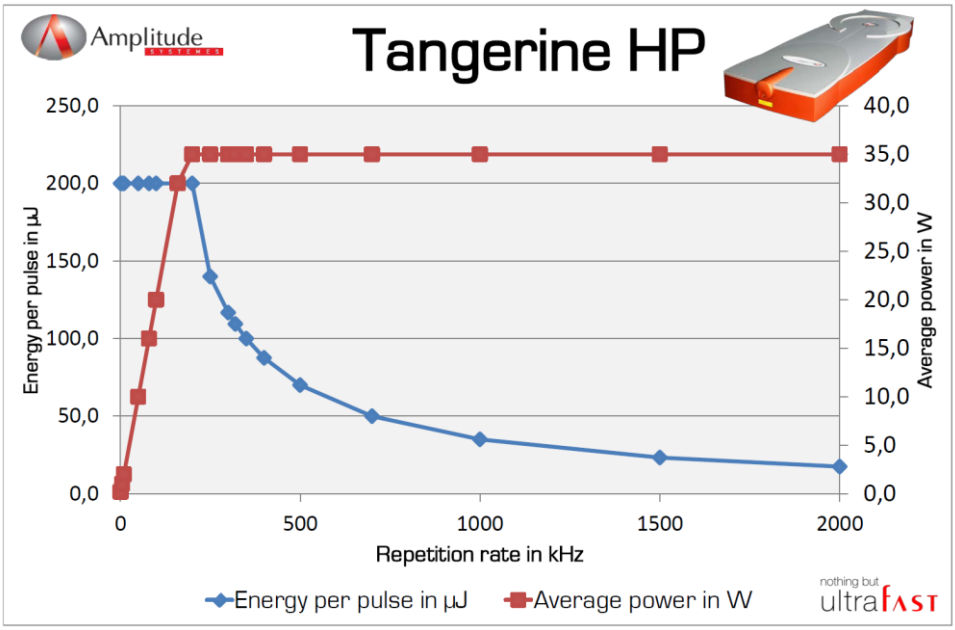


Figure 53 : Evolution de l'énergie et de la puissance moyenne du laser Tangerine HP en fonction du taux de répétition choisi (données fournies par Amplitude Systèmes).

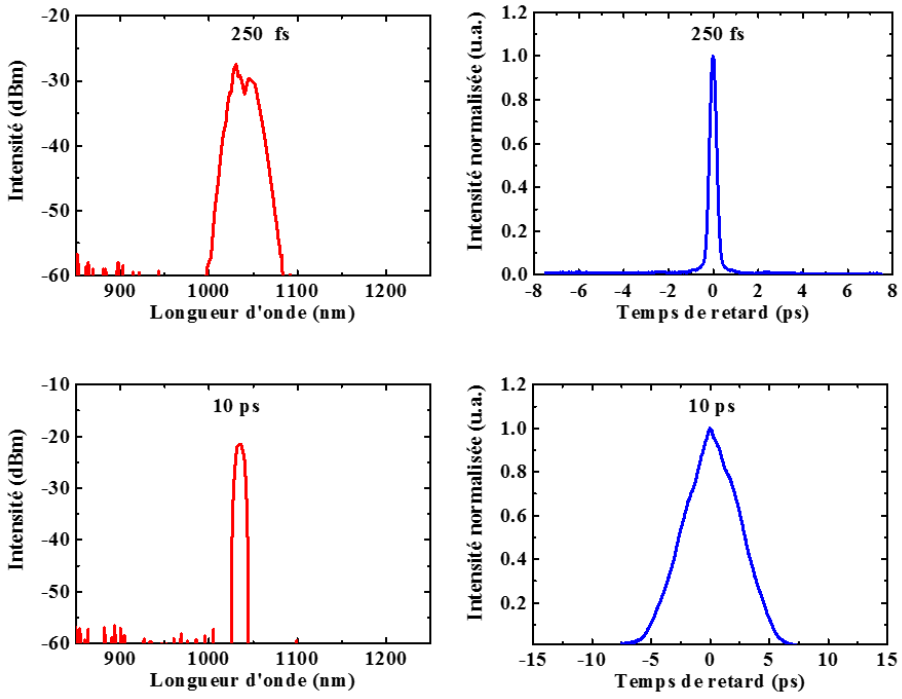


Figure 54 : Traces temporelles et spectrales mesurées à la sortie du laser Tangerine HP pour des durées d'impulsions demandées de 250 fs et 10 ps.

La *Figure 54* présente ensuite les traces d'autocorrélation et les spectres correspondants pour les deux impulsions les plus extrêmes, à savoir 10 ps et 250 fs.

Le montage expérimental utilisé dans ce chapitre est illustré par la *Figure 55*. Le faisceau provenant du laser est dirigé vers une lame demi-onde accompagnée d'un cube

Licence CC BY-NC-ND 3.0

polariseur et d'une lame quart d'onde pour le contrôle de la puissance et de la polarisation. Il est en effet important d'optimiser la génération des ondes Stokes vibrationnelles, et en particulier celle du premier ordre située à 1800 nm, à l'aide d'une polarisation linéaire. Le faisceau est ensuite injecté avec un taux de couplage de 70% dans une fibre *Kagomé* dont les caractéristiques ont été présentées à la fin du chapitre III. Cette dernière est remplie de gaz d'hydrogène moléculaire à une pression constante de 20 bars. Une partie de la lumière qui sort de la fibre est ensuite dirigée vers deux analyseurs de spectre optique permettant de couvrir une gamme spectrale totale allant de 350 nm à 3400 nm. L'autre partie est divisée en deux, et chaque faisceau est dirigé vers un photodétecteur placé après un filtre spectral. Le premier filtre est un passe-haut coupant à 1650 nm pour détecter et mesurer le signal à 1800 nm. Le deuxième est un passe-bas à 1150 nm pour détecter la pompe à 1030 nm. Les deux photodétecteurs sont reliés à un oscilloscope (IDS-2304A, Iso-Tech). Le photodétecteur pour détecter le signal à 1,8 µm est un PDA10D (-EC) (Extended InGaAs Amplified Detector) de la société Thorlabs avec une bande passante de 15 MHz.

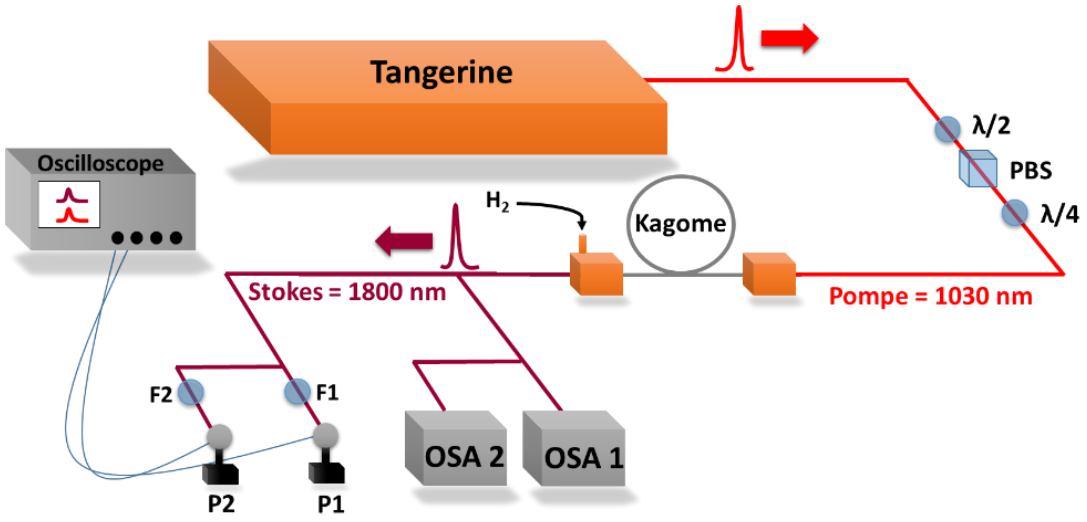


Figure 55 : Schéma du montage expérimental, OSA 1 : 350 nm – 1750 nm, OSA 2 : 1500 nm – 3400 nm, F1 : passe-haut 1650 nm, F2 : passe-bas 1150 nm, P1 : photodiode pour le Stokes, P2 ; photodiode pour la pompe.

Dans cette étude, la fibre choisie est de type *Kagomé* de telle sorte que ses bandes de transmission soient optimisées aussi bien pour la longueur d'onde de la pompe que pour le premier Stokes vibrationnel. En effet, avec des pertes de seulement 10 dB/km à 1030 nm, on peut pleinement profiter de notre laser de pompe pour générer un Stokes

Licence CC BY-NC-ND 3.0

à 1,8 µm (*Figure 56*). La longueur de fibre utilisée est de 3 mètres, elle est remplie d'hydrogène à une pression de 20 bars.

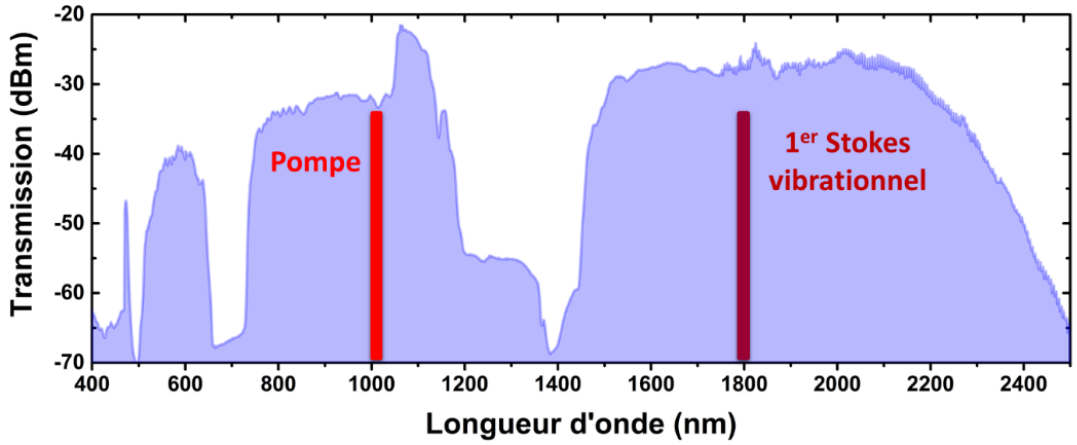


Figure 56 : Bandes de transmission de la fibre centrées à la fois sur la pompe à 1030 nm, et sur le premier Stokes vibrationnel à 1,8 µm.

V.4. Evolution du Stokes en fonction de $\Gamma\tau$ et G

L'intensité d'une impulsion Stokes générée par effet Raman stimulé est donnée par l'équation (2.53) du chapitre II. Cette équation dite générale peut être simplifiée en fonction du type de régime dans lequel nous nous trouvons. Même si celle-ci a été déduite pour une impulsion carrée, elle reste une très bonne approximation pour une impulsion gaussienne ou une sécante hyperbolique.

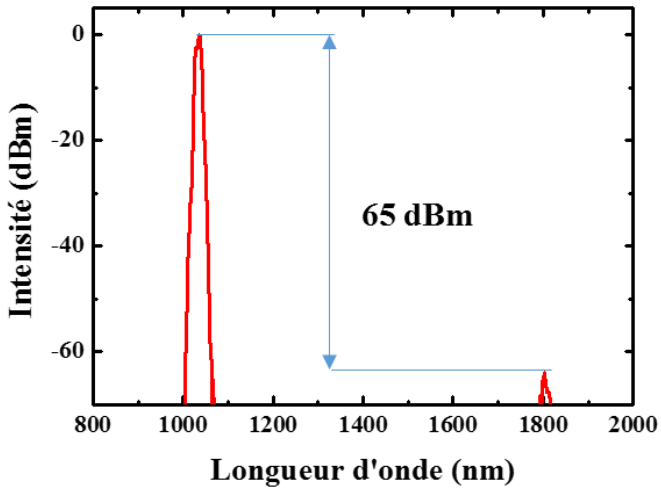


Figure 57 : Spectre optique montrant la raie de la pompe à 1030 nm et le premier Stokes vibrationnel à 1,8 µm au seuil.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

La *Figure 57* illustre un spectre optique typique obtenu à la sortie de la fibre pour les paramètres d'entrée suivants : une durée d'impulsion pompe de 1 ps et une puissance d'entrée de 300 mW. Le premier Stokes vibrationnel à 1,8 µm est ici mesuré juste après le seuil, et à la limite de détection de notre analyseur de spectre. A noter que la puissance de ligne du Stokes peut être beaucoup plus forte que celle montrée dans cet exemple. La caractérisation du Stokes sera l'objet du chapitre VI. Ici, nous nous limiterons à explorer son intensité et son seuil en fonction de la durée d'impulsion de pompe.

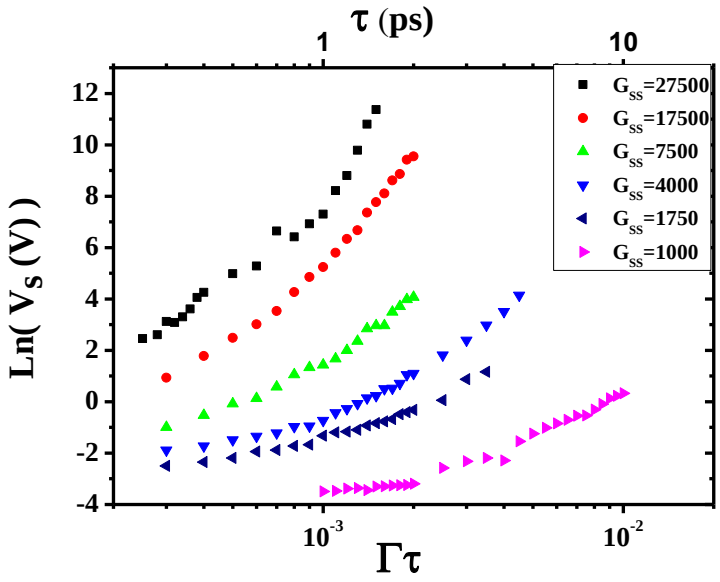


Figure 58 : Evolution expérimentale du signal Stokes détecté en fonction de Γτ pour différentes valeurs de gain.

La *Figure 58* présente les résultats expérimentaux de l'évolution du signal Stokes en fonction de $\Gamma\tau$ pour différentes valeur de G_{SS}. Le signal Stokes est tracé en Volts, valeurs mesurées avec le photodétecteur sur l'oscilloscope. Les courbes sur la figure montrent toutes une inflexion, avec une évolution plus lente pour les faibles valeurs $\Gamma\tau$, et une plus rapide pour des valeurs de $\Gamma\tau$ plus élevées. Cette évolution est consistante avec ce que la théorie prédit pour des $\Gamma\tau$ et des G_{ss} correspondants aux régimes transitoire et spontané. Afin d'interpoler ces données expérimentales avec la théorie, nous convertissons le signal du détecteur en puissance optique moyenne.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

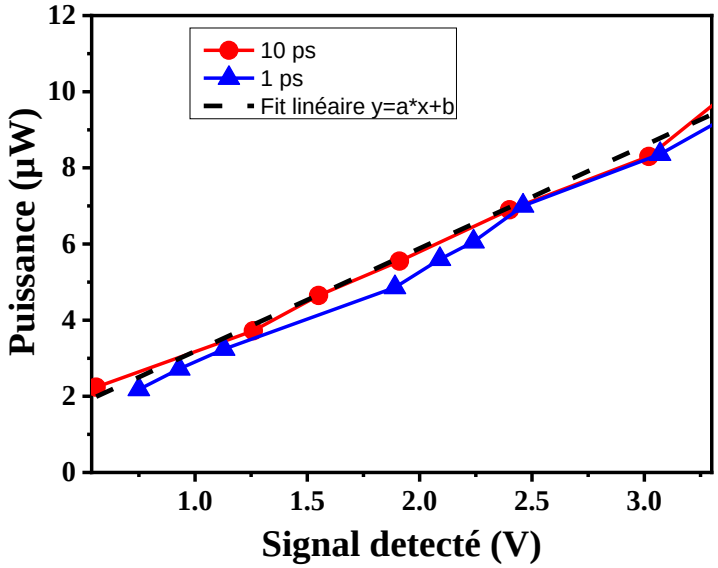


Figure 59 : Evolution de la puissance en µW en fonction de la puissance en Volts détectée par le photodétecteur.

Pour cela, le photodétecteur a été calibré de la manière suivante : dans un premier temps nous déterminons la plage de la dynamique linéaire du photodétecteur. L'intervalle de celle-ci est fixé par le voltage correspondant à un rapport signal-bruit de 4, pour la partie basse et par la valeur de 4 V (un ratio signal-saturation de 1/3) pour la partie haute. Ensuite nous intercalons des atténuateurs optiques calibrés auparavant afin de s'assurer que nos mesures sont dans la plage linéaire déterminée du photodétecteur. A noter que nous nous sommes assurés que le signal du photo-détecteur enregistré (le maximum du pic de la trace de l'oscilloscope) est bien linéairement proportionnel à la puissance moyenne pour toutes les durées d'impulsions en le comparant avec un puissance-mètre à des puissances d'impulsions où les deux détecteurs sont « linéaires ». Ceci est corroboré par la *Figure 59* qui montre les résultats de la calibration faite pour deux durées d'impulsions différentes de 10 ps et 1 ps. L'interpolation linéaire donne une pente de $2{,}761.10^{-6}$ W/V et une intersection de $8{,}05.10^{-8}$ W. Après la calibration nous avons converti les valeurs du voltage du Stokes en puissance (W). Cette dernière, qui correspond à la puissance moyennée par la réponse du photodétecteur, est convertie en puissance crête P_S.

La *Figure 60* reprend les données de la *Figure 58* avec la conversion vers l'intensité correspondante. Pour la dernière, elle est déduite par l'identité $I = P/A_{eff}$, avec A_{eff}

Licence CC BY-NC-ND 3.0

l'aire effective du mode fondamental de la fibre, reliée au rayon, r_{fib}, par $A_{eff} = \pi(0.75\, r_{fib})^2$. Dans le cas présent, la fibre utilisée a une aire effective de 1.5 10^{-5} cm^2.

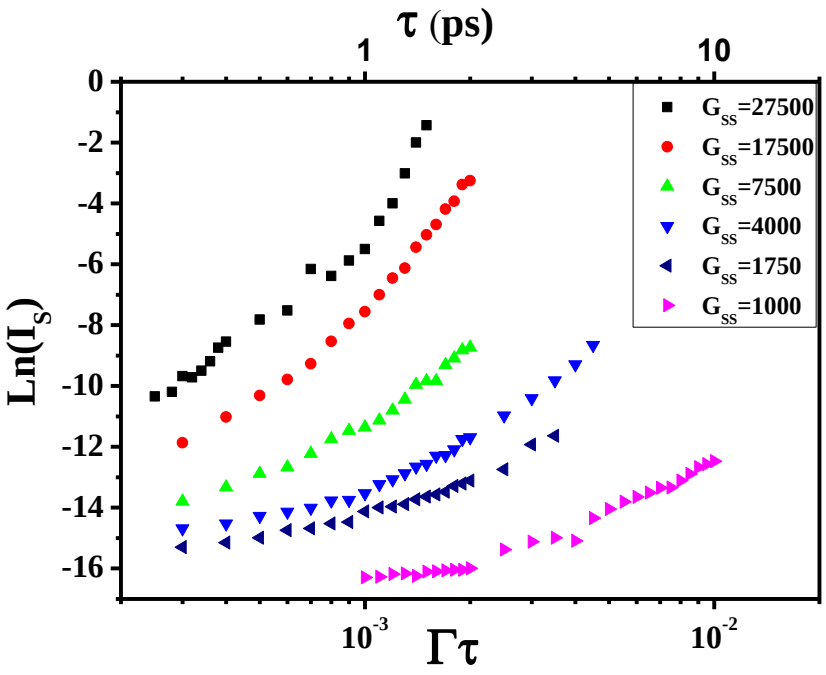


Figure 60 : Evolution expérimentale de l'intensité du Stokes en fonction de Γτ pour différentes valeurs de gain.

Enfin, la *Figure 61* montre l'interpolation de ces données avec l'expression théorique de l'intensité du Stokes (équation (2.53)). Les résultats de l'interpolation montrent que les mesures et la théorie s'accordent très bien pour les différents gains stationnaires. Ci-dessous nous discuterons de l'impact de cet accord sur l'expression de l'intensité.

Les résultats montrent que pour un gain stationnaire de 27 500, le temps caractéristique $\Gamma\tau_1$ est de 3.10^{-5}. Ainsi pour notre valeur expérimentale de Γ de 970 MHz, la durée d'impulsion correspondante est de ~30 fs. En conclusion, on peut atteindre un régime de DRS transitoire même pour des impulsions aussi courtes que 30 fs si l'énergie de l'impulsion est suffisamment élevée pour avoir un gain net stationnaire supérieur à 27 500. Nous rappelons que notre modèle théorique ne tient pas compte d'un laser avec un large spectre ou de la contribution d'autres composantes spectrales qui peuvent être générées par d'autres effets non-linéaires tels que l'effet Kerr. Cependant, le modèle est suffisamment précis pour conclure que la DRS avec des impulsions aussi courtes que 100 fs peut être utilisée comme un convertisseur de fréquence efficace.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

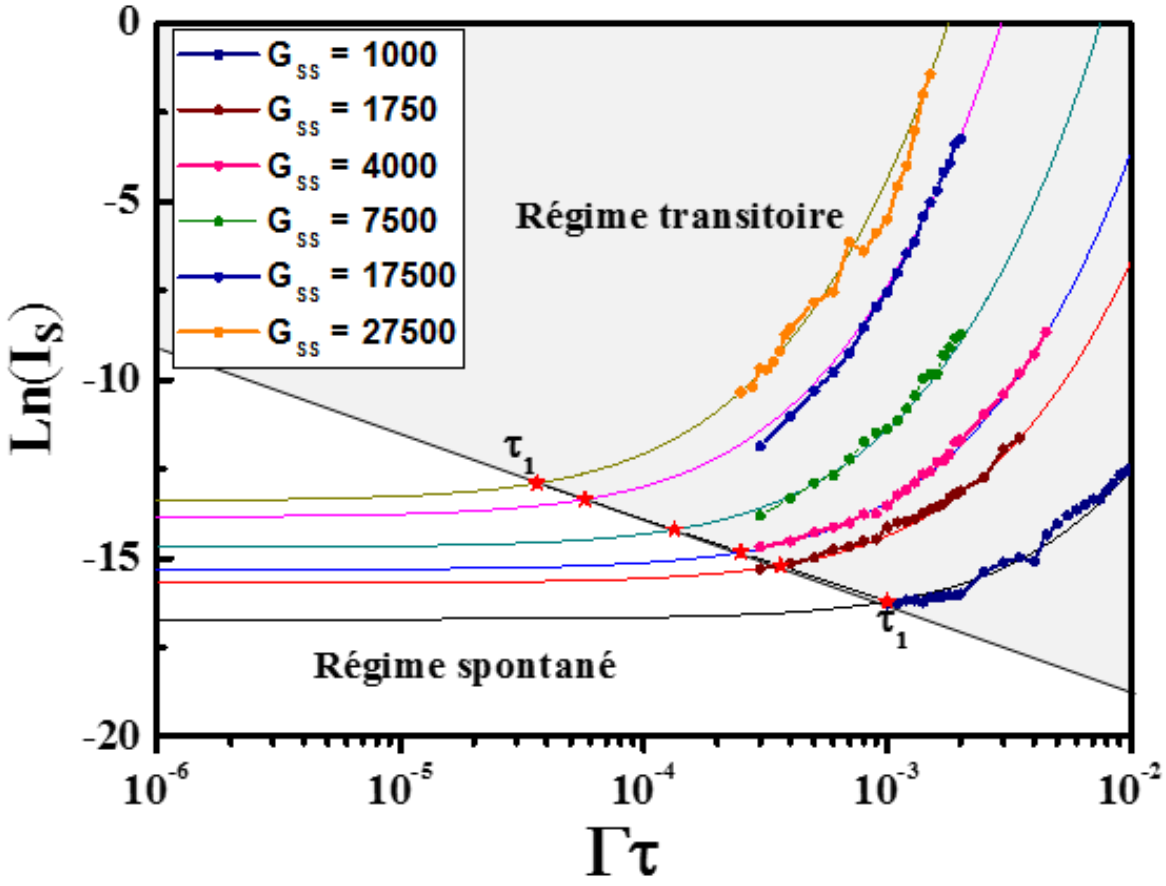


Figure 61 : Evolution de l'intensité du Stokes et de son ajustement en fonction de Γτ pour différentes valeurs de gain. Les résultats expérimentaux (en pointillés) sont en bon accord avec les résultats théoriques (en trait plein). Les points d'inflexion de chaque courbe sont reliés pour donner une droite séparant le régime spontané du régime transitoire. Celle-ci permet de remonter à la valeur de τ_1 dans chaque cas.

V.5. Seuil d'énergie de la pompe en régimes spontané et transitoire

L'autre aspect important de la DRS est l'exigence d'un seuil minimum d'énergie par impulsion pour atteindre le régime stimulé. Celui-ci est couramment identifié dans la littérature scientifique par l'étape du processus de la diffusion quand le gain net Raman ($\ln(\frac{Is}{I0})$) est égal à G_{th} (dont la valeur peut aller de 15 à 30 suivant les auteurs). Ici I_S est l'intensité du Stokes généré, et I_0 est l'intensité de l'émission spontanée participant à l'amplification.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

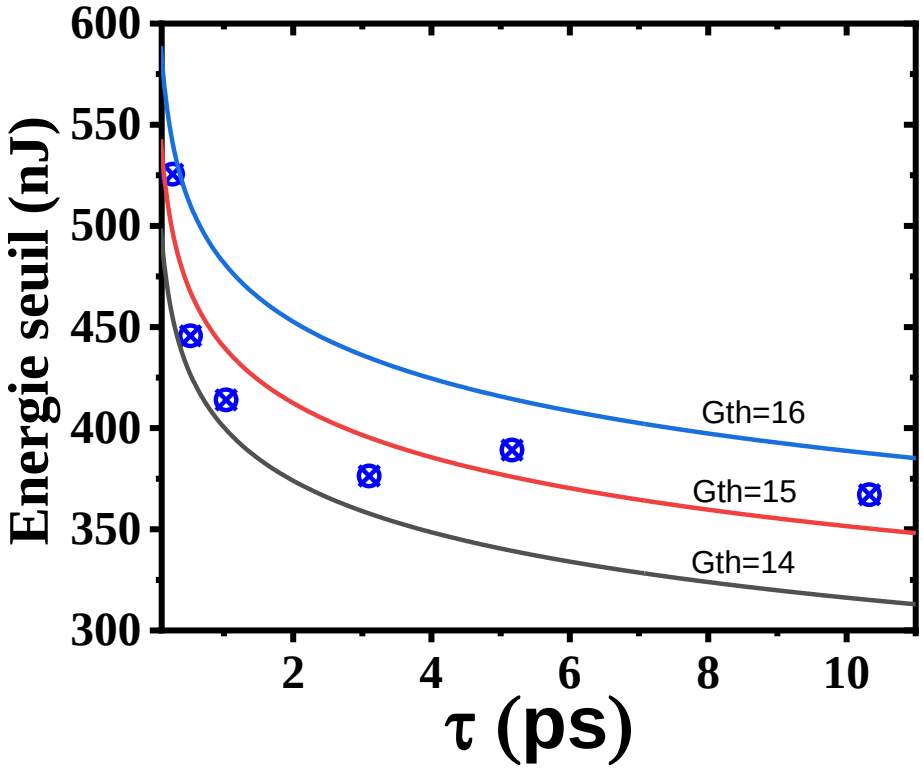


Figure 62 : Energie par impulsion de pompe nécessaire pour se placer en régime transitoire, en fonction de la durée d'impulsion τ. Les points représentent les résultats expérimentaux et les traits pleins les résultats théoriques pris pour différentes valeurs de gain net Raman au seuil G_{th} (14, 15 et 16). Les résultats expérimentaux sont en accord avec une valeur de 15 qui est communément reprise dans la littérature (entre 15 et 30 selon les cas).

Pour identifier expérimentalement le seuil d'amplification Raman, il faut mesurer l'énergie avec la largeur d'impulsion pour laquelle nous avons un signal Stokes à 1,8 µm à l'aide du photo-détecteur (*Figure 62*). Cet évènement est tout d'abord prédéterminé en calibrant le signal du photo-détecteur avec le spectre mesuré par l'analyseur de spectre pour des valeurs de puissances de pompe et du Stokes détectables par les deux appareils. La *Figure 57* montre le spectre correspondant à ce travail de pré-calibration. La puissance du Stokes présente un ratio d'extinction de 65 dB par rapport à celle de la pompe. Une fois cette pré-calibration faite, le seuil est déterminé lorsque le photo-détecteur donne un signal ayant un ratio signal-bruit entre 1.5 et 2.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Les symboles sur la *Figure 62* représentent l'énergie par impulsion de pompe nécessaire pour se placer en régime transitoire, donc en régime stimulé. Pour l'intervalle de durée entre 250 fs et 10 ps, l'énergie de seuil est trouvée entre 525 nJ et 370 nJ. Une plage d'énergie qui est largement couverte par les lasers ultra-rapides qui sont commercialement disponibles.

Les 3 courbes solides sont les courbes théoriques déduites de l'équation (2.61), $E_{tr}^{threshold} \approx A_{eff}/8\Gamma G_{SS}(G_{th} - ln(4\pi\Gamma\tau) + 2\Gamma\tau)$, pour des valeurs de G_{th} de 14, 15 et 16, respectivement. Etant donné les incertitudes de mesure liées à l'identification de l'évènement du seuil, l'accord entre les mesures et la théorie est très bon. Enfin, cet accord corrobore l'expression théorique de l'intensité du Stokes, depuis laquelle l'expression de l'énergie du seuil est déduite. Plus important, elle confirme l'expression de l'intensité de l'émission spontanée, I_0, qui rentre dans la dynamique de la DRS. Ce point est abordé dans la section suivante.

V.6. Intensité de l'émission spontané pour une DRS dans une fibre creuse

Dans le chapitre II nous avons vu que I_0, c'est-à-dire l'intensité du Stokes généré à partir du bruit et amplifié par le mécanisme de DRS, a été déduite dans le cadre d'une configuration en espace libre. Celle-ci s'écrit comme $h\nu_S\Gamma G_{ss}/2$.

Cette expression résulte du modèle unidimensionnel utilisé dans la référence [41]. Dans ce modèle les auteurs considèrent la géométrie d'interaction entre le laser de pompe et le milieu Raman comme celle d'un faisceau très fin en forme de « crayon » (pencil-shaped en anglais), et pour un nombre de Fresnel $\mathcal{F} = 1$. Ce faisceau est représenté par une aire transverse A et une longueur L, avec $A/L \ll 1$.

En parallèle, dans notre cas, la DRS se déroule dans une configuration guidée. Il est donc logique de se demander si cette expression reste valable dans le cas de la DRS dans une fibre creuse, et si on peut en déduire une expression alternative. Pour cela, on rappelle que dans le cas d'un dipôle dans une fibre, la partie guidée de l'émission du dipôle représente une fraction β qui correspond approximativement à l'ouverture du mode de la fibre. Par similitude, nous écrivons l'expression de l'intensité de l'émission spontanée intervenant pour la DRS dans un guide comme :

Licence CC BY-NC-ND 3.0

$$I_0^{guide} = \beta I_0 = \beta \frac{h\nu_S G_{ss} \Gamma}{2} \quad (5.1)$$

En prenant β comme une variable d'interpolation dans les interpolations citées plus haut, à savoir aussi bien avec les six courbes de l'expression de l'intensité du Stokes qu'avec l'expression de l'énergie de seuil. Dans les deux cas, nous obtenons β~1.

Ce résultat corrobore bien que le modèle monodimensionnel à « crayon » s'applique bien à la fibre creuse. Ceci peut s'expliquer par le fait qu'aussi bien pour les fibres creuses à bande interdite que pour celles à couplage inhibé, les effets Purcell ou d'inhibition d'émission spontanée sont trop faibles.

V.7. Résumé

En conclusion, nous avons reproduit expérimentalement l'évolution de l'intensité du Stokes dans le régime transitoire sur une plage $\Gamma\tau$ allant de 3.10^{-4} à 10^{-2}, ce qui correspond à un gain qui va de 1 000 à 27 500. Tout d'abord, ces résultats ont permis de corroborer l'expression de l'évolution théorique de l'intensité du Stokes en espace libre monodimensionnel avec l'évolution de l'intensité Stokes dans un guide d'onde. Aussi, nous avons mesuré les énergies de seuil pour une telle plage de durée d'impulsion. Les résultats montrent que les énergies de seuil restent nettement en dessous de 1 µJ, un niveau aujourd'hui atteint par la plupart des lasers ultra-courts.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

CHAPITRE VI
Génération d'impulsions infrarouges ultra-courtes

Ce chapitre est dédié au développement d'une source infrarouge impulsionnelle picoseconde émettant à 1,8 µm par effet Raman stimulé dans une fibre creuse remplie d'hydrogène. La pompe est ici un laser ultra-bref ayant une durée d'impulsion accordable allant de 10 ps à 250 fs et de puissance moyenne pouvant atteindre jusqu'à 35 W. Il sera montré que la durée des impulsions infrarouges générées se situe dans un intervalle entre 2 et 10 ps, avec une puissance moyenne de 2 W. Nous verrons que leurs propriétés dépendent des caractéristiques des impulsions de pompe elles-mêmes, notamment en termes de puissance et de durée.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

VI.1. Introduction

Au cours des dernières décennies, le domaine des sources dans le proche-infrarouge (0,76 µm à 2 µm) et moyen infrarouge (2 µm à 20 µm) a progressé de manière spectaculaire. Ces progrès ont été motivés par la forte sollicitation de ce type de source dans plusieurs domaines de recherche fondamentale et appliquée. Un exemple est la capacité à détecter les polluants atmosphériques ou les agents cancérigènes. Les impulsions ultracourtes dans l'infrarouge permettent également d'analyser les dynamiques atomique et moléculaire, ainsi que d'imager les structures moléculaires. Les sources à large bande présentent quant à elles un intérêt particulier pour les applications spectroscopiques, en permettant d'éviter le recours à de multiples lasers de manière simultanée. La *Figure 63* illustre une partie des domaines d'applications des sources IR qui peuvent être classés en deux sections selon que le besoin se situe sur le contenu spectral ou temporel des impulsions. Les sources IR ont un grand potentiel en vue d'applications extrêmes telles que la génération d'harmoniques d'ordre élevé et la génération d'impulsions attosecondes. En médecine, les lasers infrarouges permettent une coupe micrométrique de précision et le prélèvement des tissus malades. Les sources IR trouvent également des applications dans le domaine militaire qui peuvent aller de la désignation des cibles au brouillage des systèmes de guidage.

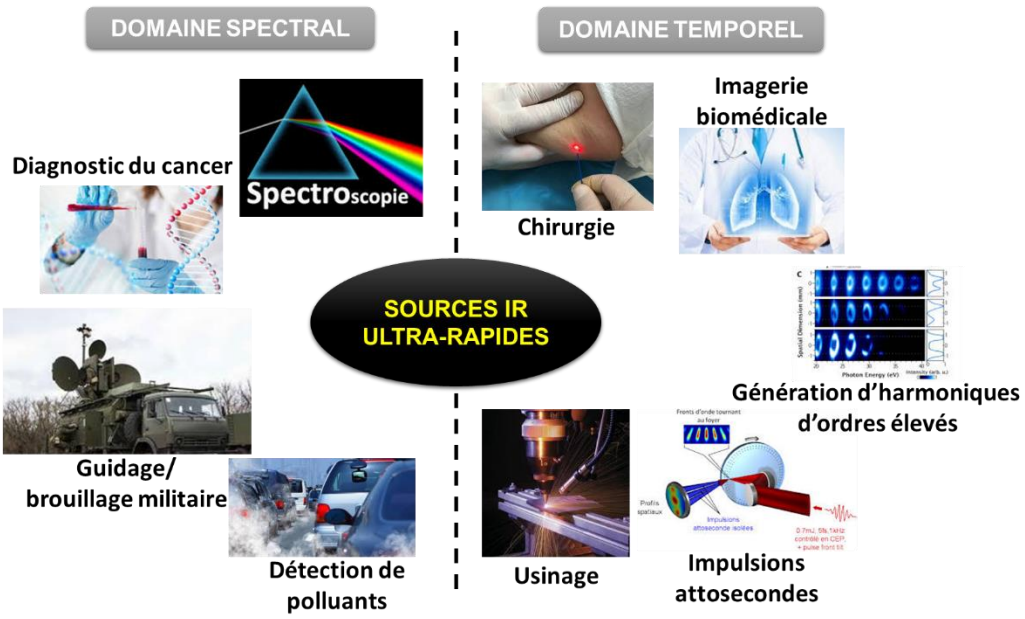


Figure 63 : Domaines d'applications des sources IR ultra-rapides, classées en fonction de leur intérêt pour les particularités spectrales ou temporelles de ces sources [90].

Licence CC BY-NC-ND 3.0

De nombreuses techniques existent pour parvenir à générer une lumière cohérente dans l'IR. Dans ce but, de nombreux matériaux peuvent être utilisés comme milieux à gain, que ce soit par conversion de fréquences ou par inversion de population. La *Figure 64* résume les sources lasers pouvant être utilisées pour générer un rayonnement infrarouge et les différentes plages de longueurs d'ondes accessibles dans chaque cas.

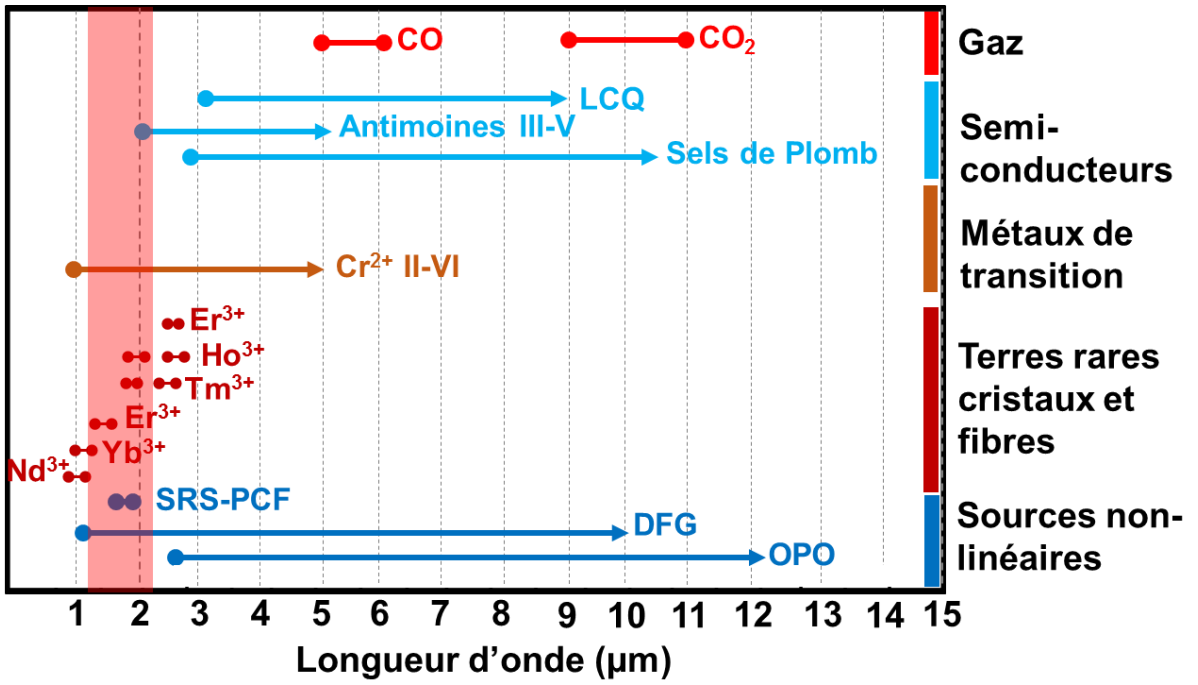


Figure 64 : Différentes sources lasers dans l'infrarouge et leurs plages en longueur d'onde, la bande rouge située entre environ 1 et 2 µm représente la gamme spectrale qui nous intéresse dans ce chapitre [91].

Un premier exemple se porte sur les lasers à cascade quantique (QCL : Quantum Cascade Lasers) qui sont des lasers à semi-conducteurs développés à partir de 1994. Ils sont basés sur des transitions inter-sous-bandes dans des puits quantiques [92]. La longueur d'onde d'émission ne dépend pas de la bande interdite des matériaux semi-conducteurs mais de l'empilement d'un grand nombre de couches formant le milieu actif. L'épaisseur de ces couches est contrôlée à une épaisseur atomique près pour un contrôle du niveau d'énergie des transitions. Les QCL fonctionnent généralement en régime continu (CW) ou quasi-continu de 4,3 µm à 20 µm et délivrent des puissances de l'ordre de quelques Watts. De récents développements sur les QCL ont permis d'atteindre des longueurs d'onde de fonctionnement plus courtes, aux alentours de 2,6 µm [93]. Bien que ces sources soient relativement simples d'utilisation, elles

Licence CC BY-NC-ND 3.0

souffrent de divergence, d'astigmatisme et d'une limitation en puissance due à leur taille et la forte chaleur qu'elles dissipent.

L'utilisation du principe de la conversion paramétrique dans des cristaux non-linéaires a également permis le développement de sources dans l'IR. Parmi celles-ci : la génération de fréquence différence (DFG), la génération paramétrique optique (OPG), l'amplification paramétrique optique (OPA) ainsi que l'oscillation paramétrique optique (OPO). L'efficacité de ces sources est liée au développement de cristaux non-linéaires efficaces et de lasers de pompe puissants, fiables et adaptés. Généralement les cristaux non-linéaires utilisés sont les oxydes ferroélectriques [94], [95], le PPLN (Periodically Poled Lithium Niobate) [96], le KTA (Potassium Titanyle Arsénite) [97], [98], le KTP (Potassium Titanyle Phosphate) [99], [100] ou encore les chalcopyrites ($AgGaS_2$ et AgGaSe). Ces sources ont longtemps été limitées à une émission infrarouge comprise entre 1 µm et 4 µm à cause de l'absorption multi-phonons dans les oxydes. Récemment, ces limitations ont pu être dépassées par l'utilisation de cristaux de CSP (Cadmium Silicon Phosphide) pompés à 1,55 µm permettant une émission jusqu'à 7,2 µm [101]. Au prix d'un montage complexe avec deux OPO consécutifs, d'autres matériaux peuvent être utilisés tels que le ZGP (phosphore de zinc germanium : $ZnGeP_2$) ou l'arséniure de gallium GaAs afin d'avoir une émission au-delà de 4 µm. Les OPO sont accordables en longueur d'onde et fonctionnent en régime impulsionnel. Leurs inconvénients sont la complexité de leur mise en œuvre ainsi que la nécessité d'un laser de pompe puissant. Celui-ci doit avoir une forte stabilité car ce type de source est sensible aux vibrations mécaniques.

Parmi les lasers fonctionnant dans l'infrarouge, il y a également les lasers à gaz et en particulier les lasers CO_2. En théorie, grâce à ces derniers il est possible de générer des impulsions picosecondes avec des puissances-crêtes atteignant les 15 TW autour de 10 µm. Le problème de ce type de laser est leur faible largeur de gain, rendant leur amplification difficile. Récemment, des chercheurs ont réussi à compenser cette limitation en multipliant le phénomène de mélange à 4 ondes pour l'onde de battement d'un laser CO_2, ce qui a pour effet d'augmenter la largeur de gain. Ceci, combiné à une dispersion de vitesse de groupe (GVD) négative obtenue dans un cristal de GaAs (ou

Licence CC BY-NC-ND 3.0

bien encore de GaAs couplé à du NaCl) a permis la génération d'impulsions de haute puissance d'environ 2 ps à 10 µm [102].

Enfin, une des technologies les plus répandues aujourd'hui est basée sur les lasers à fibres dopées aux ions de terre-rare (principalement erbium et thulium dans la gamme qui nous intéresse). Ces ions absorbent l'énergie provenant d'une pompe pour la réémettre à une longueur d'onde supérieure (entre 1520 et 1650 nm pour l'erbium et de 1750 nm à 2100 nm pour le thulium). Le développement de ce type de laser a bénéficié à la fois des progrès réalisés dans le domaine des fibres optiques et dans la grande variété des sources de pompe disponibles. En régime impulsionnel, leurs performances en termes de puissance moyenne peuvent atteindre quelques dizaine de Watts moyens, avec des durées d'impulsions de quelques centaines de femtosecondes.

Il existe également des technologies basées sur les lasers à solides, les plus courants utilisent des ions Cr^{2+} au Fe^{2+} comme élément actif, dopés aux ZnSe, ZnS, ZnTe, CdS et CdSe. Pour une pompe autour de 2 µm, ils émettent sur une bande assez large allant de 2 à 4 µm avec des puissances de l'ordre de plusieurs Watts. Néanmoins ces sources laser possèdent des défauts, notamment des effets de lentille thermique et une qualité de faisceau inférieure à celle des lasers à fibre par exemple.

La *Figure 65* dresse une carte des performances des différentes technologies capables d'émettre un rayonnement impulsionnel dans l'infrarouge proche, en particulier entre 1,5 et 2 µm. Ces performances sont classées en termes de durées d'impulsions et de puissance moyenne. On constate par exemple que les diodes lasers sont limitées à des puissances de quelques dizaines de milliwatts, du domaine picoseconde à nanoseconde. Les lasers à fibres dopées aux terres-rares ont des performances très diverses aussi bien en termes de puissance (du milliwatt à plusieurs dizaines de Watts) que de durée (de quelques centaines de femtosecondes au domaine nanoseconde). Enfin, les points verts représentent la dernière technologie qui sera évoquée dans cette introduction et qui est l'objet de cette thèse : la diffusion Raman stimulée (DRS) dans les fibres creuses remplies de gaz.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

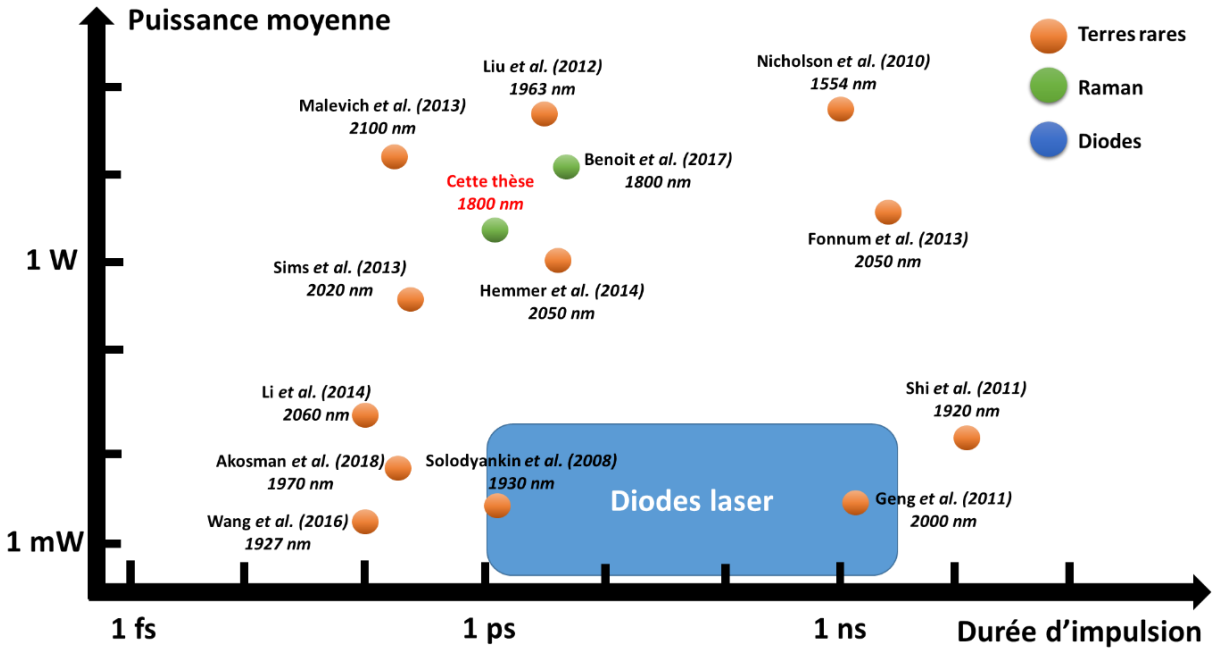


Figure 65 : Graphique permettant de comparer les différentes technologies de génération d'impulsions IR entre approximativement 1,5 et 2 µm en termes de durées d'impulsions et de puissance moyenne.

Cette dernière technique, âgée d'une vingtaine d'années, permet une conversion de fréquence à la limite quantique, aussi bien en régime continu [17] qu'impulsionnel (impulsions nanosecondes) comme nous l'avons vu précédemment lors du chapitre I [15]. De plus, les larges bandes de transmission (~1000 THz) des fibres guidant par le mécanisme de couplage inhibé (mailles Kagomé ou tubulaires) permettent de générer des lignes spectrales relativement éloignées de la pompe. A titre d'exemple, à l'aide d'un laser de pompe émettant à 1030 nm et d'une fibre creuse remplie d'hydrogène on a pu générer un rayonnement intense à 1800 nm [103]. Les nombreux paramètres sur lesquels il est possible de jouer lors de l'utilisation de la DRS dans les fibres creuses remplies de gaz, comme la longueur de fibre, la pression du gaz ou encore la polarisation du faisceau de pompe, permettent une sélection du contenu spectral généré. Cela a pu être montré par exemple lors de la génération d'un peigne de fréquences Raman ultra-large sur plus de 5 octaves et jusqu'à 12,5 µm dans l'infrarouge [22], la polarisation permettant d'augmenter le nombre de lignes générées lorsqu'elle est circulaire (excitation des niveaux d'énergie rotationnels en plus des niveaux d'énergie vibrationnels). En utilisant la DRS en régime transitoire dans une fibre creuse remplie d'hydrogène, la générations d'impulsions à 1800 nm à partir d'un laser à fibre LMA Yb^{3+} émettant à 1030 nm a été démontrée [26]. Ceci est illustré par la

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Figure 66 présentant l'évolution de la puissance générée à 1,8 µm en sortie d'une PMC de 1 m en fonction de la puissance de pompe à 1030 nm. La puissance maximale alors atteinte pour 1,8 µm était de 9,3 W pour 22,7 W de puissance de pompe. Cette même figure montre également le spectre optique normalisé entre 300 et 2400 nm, fortement dominé par le Stokes vibrationnel, illustrant une efficacité de conversion de 42%. Des travaux complémentaires ont depuis montré la possibilité de générer des impulsions d'une durée inférieure à 20 ps [103].

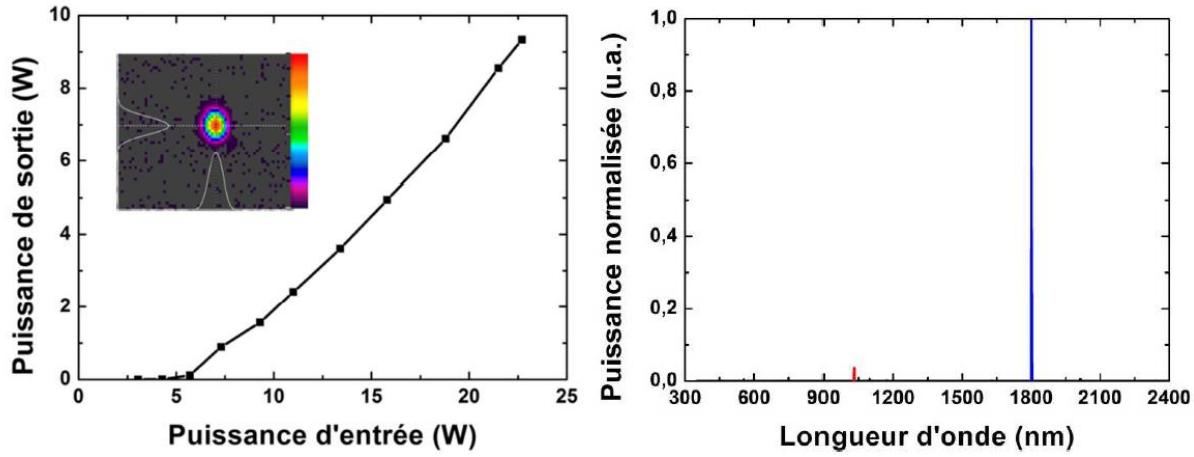


Figure 66 : (à gauche) Puissance du Stokes émis à 1800 nm en fonction de la puissance de la pompe injectée dans la fibre (en insert : champ proche du Stokes à la puissance maximale), (à droite) spectre normalisé obtenu en sortie de fibre (1 mètre de longueur et 24 bars d'hydrogène) [26].

L'objectif de ce chapitre est de poursuivre ces travaux sur la génération d'impulsions ultra-courtes dans l'infrarouge en utilisant la DRS dans les fibres creuses. Par cette méthode nous voulons, premièrement, générer des impulsions infrarouges encore plus courtes, notamment grâce à l'utilisation d'une nouvelle source laser capable de délivrer des impulsions de durée accordable, du domaine picoseconde jusqu'à celui des femtosecondes. Nous voulons notamment en profiter pour étudier les limites de cette technique, et en particulier la durée d'impulsion IR la plus courte qu'il est possible de générer. L'autre but sera de déterminer une plage de fonctionnement optimale en terme de durées d'impulsions et de puissance de pompe afin d'obtenir la source IR la plus efficace possible.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

VI.2. Montage expérimental

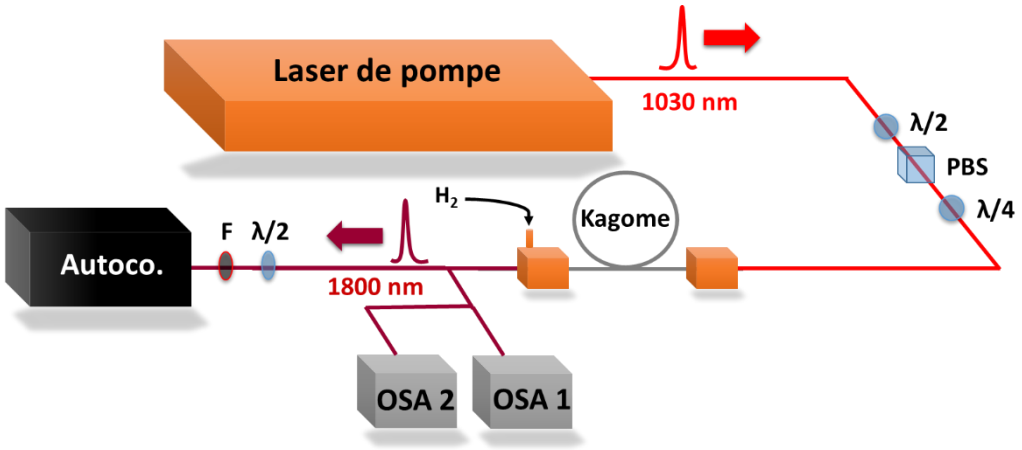


Figure 67 : Montage expérimental de génération d'impulsions à 1,8 µm par effet Raman stimulé dans une fibre creuse remplie de gaz.

Le montage expérimental utilisé dans cette partie est illustré par la *Figure 67*. Il est similaire à celui du chapitre précédent à ceci près que les photodétecteurs sont remplacés par un autocorrélateur. Ce dernier est capable de détecter et mesurer des impulsions à 1800 nm (FR-103XL, Femtochrome Research Inc.). Une lame demi-onde placée devant ce dernier permet d'optimiser son efficacité. Ainsi, il est possible de détecter une trace temporelle sur un oscilloscope (IDS-2304A, Iso-Tech) qui lui est associé. La fibre est également la même que celle utilisée dans le chapitre précédent. Un filtre passe-haut coupant à 1650 nm permet de filtrer le résidu de pompe tout en laissant passer 85 % de la puissance à 1,8 µm.

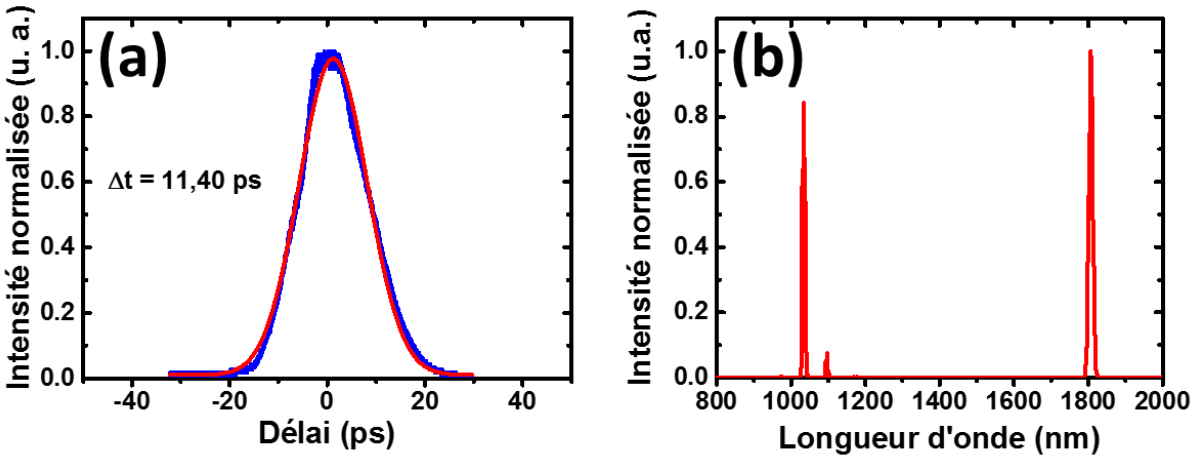


Figure 68 : (a) Trace temporelle du Stokes pour une longueur de fibre de 3 m, une durée d'impulsion pompe de 10 ps et une puissance injectée dans la fibre de 10 W. (b) Spectre correspondant, avec la pompe à 1030 nm et le Stokes à 1800 nm.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

La *Figure 68* présente le spectre optique total mesuré à la sortie de la fibre ainsi que la trace temporelle obtenue du signal converti à 1,8 µm pour une impulsion de pompe d'une durée de 10 ps et d'une puissance moyenne de 10 W. Il est à noter que la ligne laser générée la plus intense pour une polarisation linéaire correspond au premier Stokes vibrationnel. Ce dernier est séparé de la pompe de 125 THz. La puissance moyenne mesurée à 1,8 µm est de près de 1,85 W, pour une efficacité de conversion de 91%. La durée de l'impulsion mesurée à 1,8 µm est de 11,40 ps (ajustement avec un profil de sécante hyperbolique). L'impulsion générée à 1,8 µm est donc légèrement plus longue que l'impulsion de pompe. On constate dans un premier temps que ce nouveau montage expérimental nous permet de générer des impulsions IR d'une durée de près de 10 ps, ce qui est déjà inférieur aux durées présentées en [103], toujours avec une conversion proche de la limite quantique.

Dans ce qui suit, l'objectif est de faire une étude plus approfondie et complète de cette génération d'impulsions IR par effet Raman stimulé. Ceci permettra de démontrer quelle est la durée minimale d'impulsion que nous pouvons obtenir, de déterminer quel est le contenu spectral et temporel, ou bien encore le niveau de puissance. Au vu de la versatilité de la pompe, nous avons effectué une étude systématique en fonction du couple puissance-durée d'impulsion de celle-ci, pour différentes longueurs de fibre. La pression est de 20 bars et reste constante durant toute l'étude afin d'optimiser la génération du premier Stokes vibrationnel.

VI.3. Evolutions spectrale et temporelle de la source infrarouge

Les premiers résultats de cette étude systématique concernent le contenu spectral et temporel des impulsions émises par le milieu Raman. Cette étude systématique a été réalisée de la manière suivante : pour une longueur de fibre donnée nous avons mesuré la trace d'autocorrélation, le spectre ainsi que la puissance du Stokes pour différentes puissances des impulsions de pompe injectées dans la fibre. L'opération a été ensuite répétée pour différentes durées d'impulsions de pompe, puis pour différentes longueurs de fibre. Nous présentons ici des résultats typiques obtenus pour différents couples longueur de fibre/durée d'impulsion de pompe. La *Figure 69* illustre

Licence CC BY-NC-ND 3.0

par exemple ce qui se passe dans le cas où la longueur de la fibre est de 3 mètres et la durée des impulsions de pompe de 5 ps.

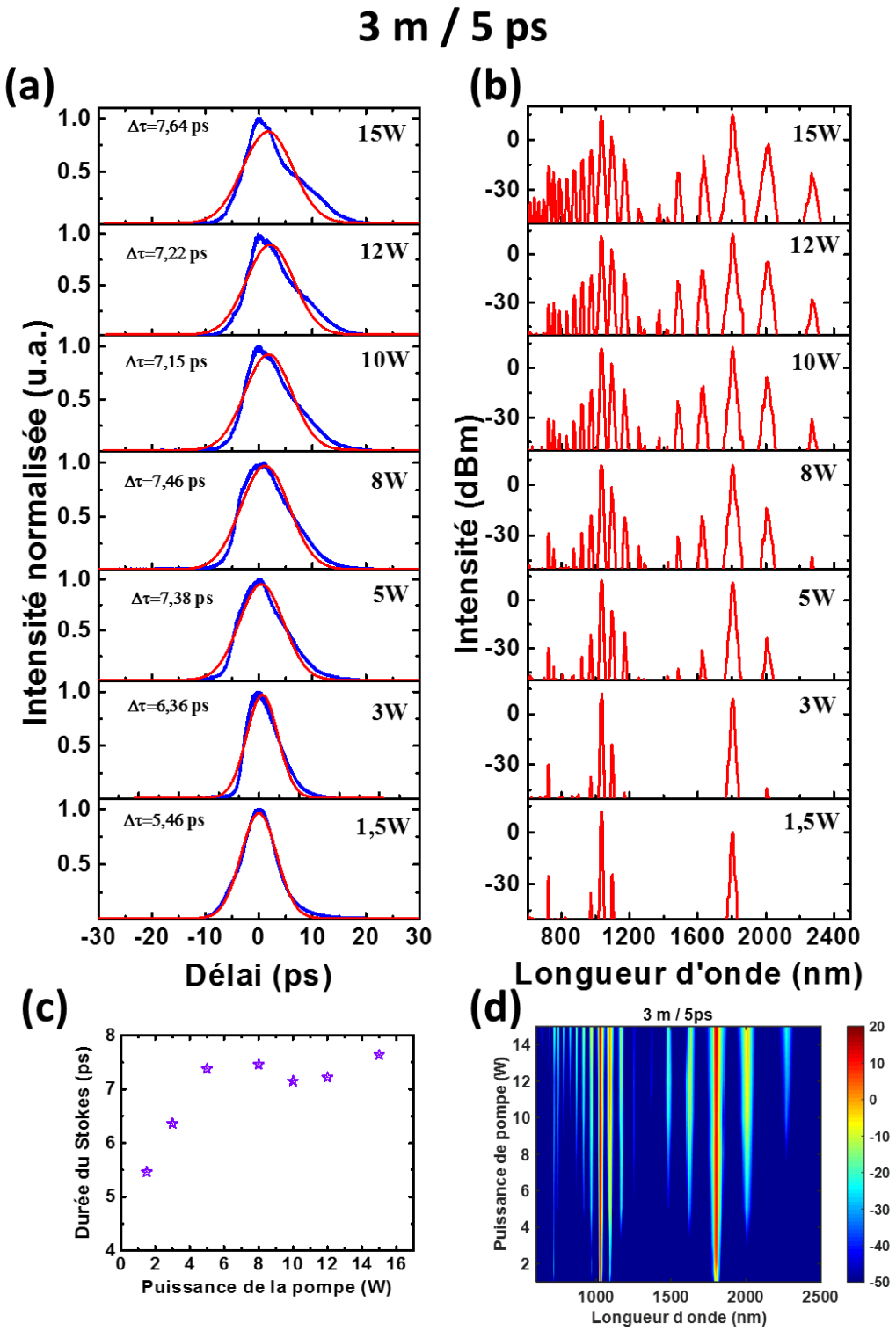


Figure 69 : (a) Traces d'autocorrélation pour une longueur de fibre de 3 m et des impulsions de pompe de 5 ps mesurées pour différentes puissances de pompe, en (b) les spectres correspondants. En (c), la durée du Stokes en fonction de la puissance de pompe et en (d), cartographie regroupant les spectres mesurés en (b).

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Le spectre est un peigne de fréquences Raman avec des lignes discrètes et bien définies. Les premières lignes générées sont les Stokes et Anti-Stokes vibrationnels de part et d'autre de la pompe. Ensuite, avec l'augmentation en puissance, de nombreuses nouvelles lignes (correspondant aux niveaux d'énergies rotationnels de l'hydrogène) sont générées. On observe alors l'apparition rapide de ces nouvelles lignes autour du Stokes vibrationnel à 1,8 µm. En effet, celles-ci apparaissent dès que la puissance d'entrée atteint les 5 W, et plus la puissance augmente plus un grand nombre d'ordres supérieurs de Stokes sont générés. Ceci se produit par effet Raman en cascade ou par mélange à quatre ondes. De la même manière, la pompe s'entoure elle-même de multiples ordres de Stokes rotationnels. Ainsi, toute la puissance de la pompe n'est pas consacrée strictement à la génération du premier Stokes vibrationnel à 1,8 µm. La polarisation étant ici linéaire et donc déjà optimisée pour « retarder » la génération des lignes rotationnelles, il faut jouer sur d'autres paramètres pour optimiser la conversion de l'énergie de la pompe vers le premier Stokes vibrationnel uniquement. C'est ce qui a été fait dans ce qui suit en jouant sur la longueur de la fibre. Ainsi des mesures ont été réalisées pour 1 mètre et 50 cm de fibre. Celles-ci seront présentées un peu plus loin dans ce chapitre. La durée des impulsions obtenues pour le Stokes à 1,8 µm va de 5,46 ps pour une puissance de pompe de 1,5 W à 7,64 ps pour une puissance de 15 W. Elle semble stagner autour de cette valeur dès 5 W de puissance de pompe où elle mesure déjà 7,38 ps (*Figure 69(c)).* Cette augmentation de durée est due à la présence de nombreuses lignes spectrales supplémentaires autour du signal à 1,8 µm. On obtient donc un facteur 1,5 entre la durée du Stokes et celle de la pompe. Le profil d'impulsion utilisé pour déterminer la durée est la sécante hyperbolique (facteur 1,54).

L'exemple suivant (*Figure 70*) présente les résultats pour le cas où l'impulsion de pompe utilisée a cette fois a une durée de 1 ps. Dans ce cas, un nouvel aspect est à prendre en compte dans la réalisation d'une source infrarouge à impulsions ultra-courtes : l'effet Kerr. Le chapitre II a déjà permis de présenter 2 phénomènes non-linéaires majeurs concernant ces travaux de thèse : les effets Raman et Kerr, et le prochain chapitre illustrera de manière plus complète la concurrence qu'ils entretiennent. Ce qu'il est pour le moment important de retenir est que lorsque la durée des impulsions de pompe est inférieure à une certaine valeur (ici entre environ 3 ps), l'effet Kerr prend le

Licence CC BY-NC-ND 3.0

dessus sur l'effet Raman. Le spectre obtenu change ainsi complètement de structure, et le peigne de fréquences Raman cède sa place à un supercontinuum. Dans ce cas, l'énergie de la pompe est disséminée à travers tout le spectre de transmission de la fibre. Il n'y a plus de rayonnement infrarouge à 1,8 µm bien défini.

La durée du Stokes obtenu atteint 1,38 ps pour une puissance moyenne de pompe de 1,5 W, pour augmenter jusqu'à 3,35 ps à 15 W. Encore une fois, la durée du Stokes semble saturer autour d'une valeur de 3 ps dès 5 W (2,74 ps) (*Figure 70(c)).* L'utilisation d'impulsions de pompe d'une durée de 1 ps a pu montrer que la génération d'impulsions IR d'une durée de seulement quelques picosecondes est possible en utilisant la DRS dans les fibres creuses. Cependant, le facteur entre la durée de la pompe et celle du Stokes est cette fois d'environ 3. Passé un certain stade, la durée du Stokes ne suit plus forcément la durée de la pompe. Cela est dû à des phénomènes complexes entre les effets Kerr et Raman.

Après avoir pu constater des effets de la durée des impulsions de pompe et de leur puissance sur la génération du Stokes, regardons les conséquences d'une modification de la longueur de la fibre. Les exemples qui vont suivre ont été mesurés pour des longueurs de fibre de 1 mètre et 50 cm. Le but est d'optimiser la génération du premier Stokes vibrationnel, en particulier de diminuer le nombre de lignes spectrales générées autour de ce dernier pour obtenir une meilleure conversion. Le prochain exemple choisi présente des résultats obtenus pour une longueur de fibre de 1 m et une durée d'impulsions de pompe de 5 ps (*Figure 71*).

Licence CC BY-NC-ND 3.0

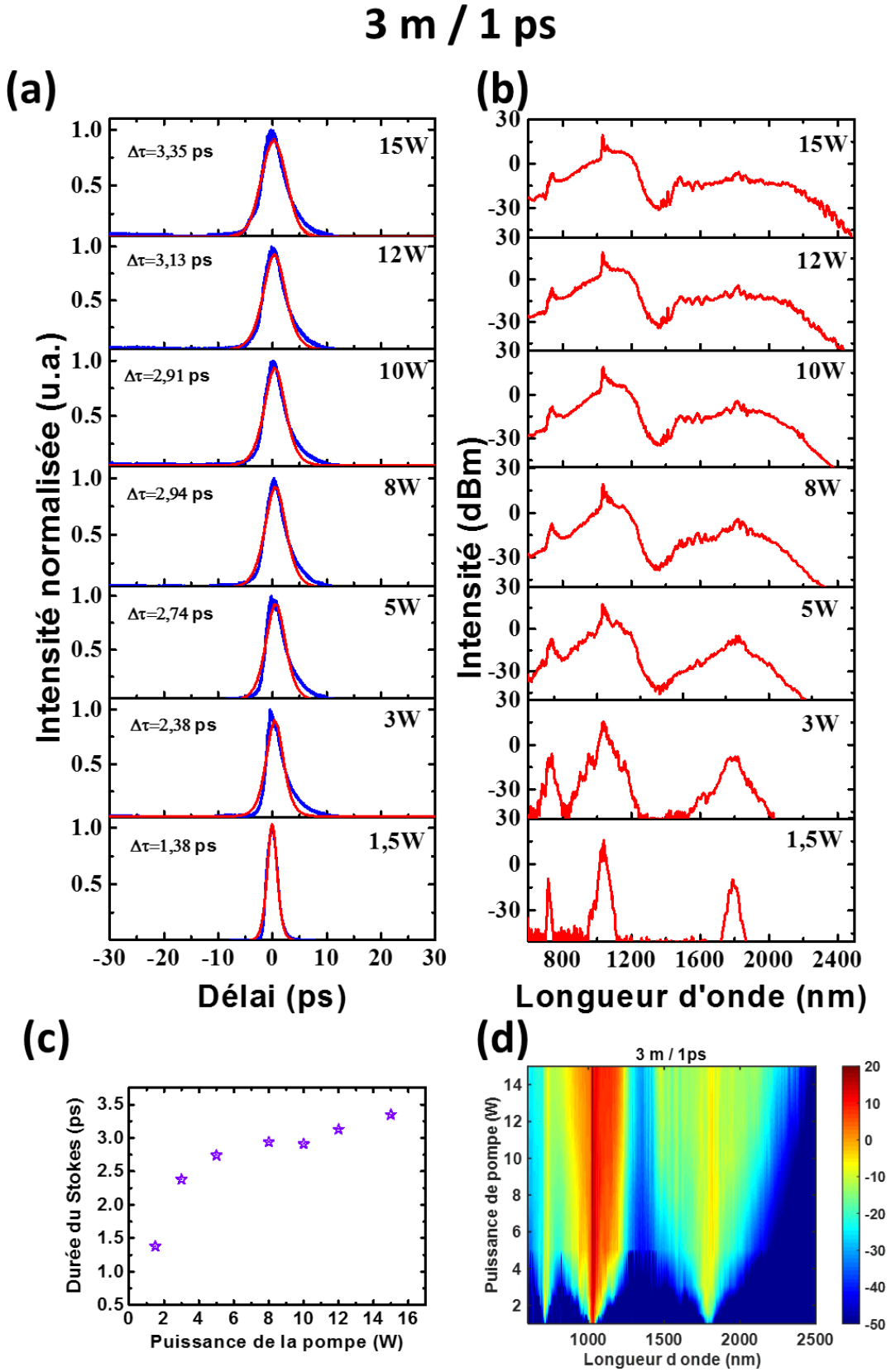


Figure 70 : (a) Traces d'autocorrélation pour une longueur de fibre de 3 m et des impulsions de pompe de 1 ps mesurées pour différentes puissances de pompe, en (b) les spectres correspondants. En (c), la durée du Stokes en fonction de la puissance de pompe et en (d), cartographie regroupant les spectres mesurés en (b).

Licence CC BY-NC-ND 3.0

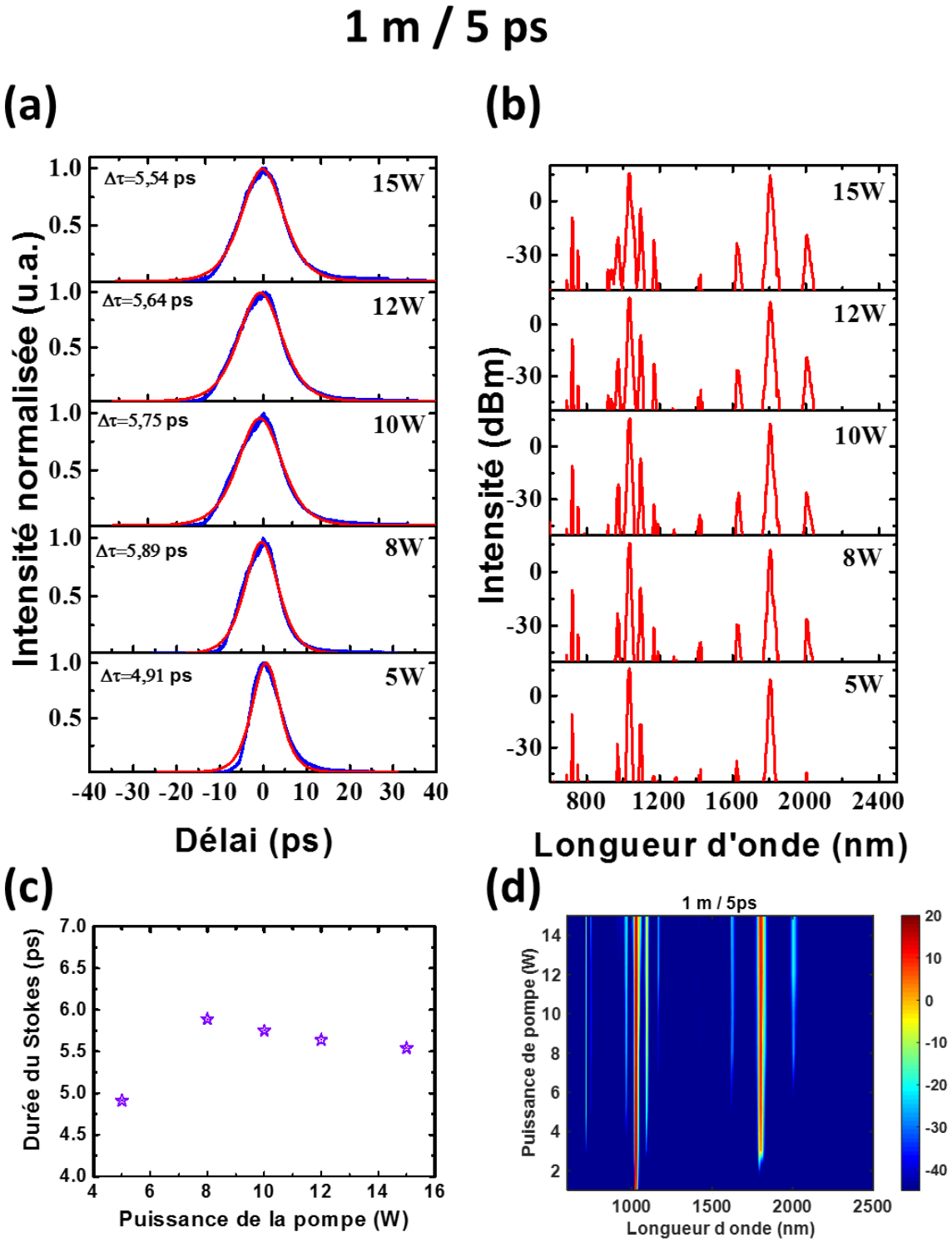


Figure 71 : (a) Traces d'autocorrélation pour une longueur de fibre de 1 m et des impulsions de pompe de 5 ps mesurées pour différentes puissances de pompe, en (b) les spectres correspondants. En (c), la durée du Stokes en fonction de la puissance de pompe et en (d), cartographie regroupant les spectres mesurés en (b).

Licence CC BY-NC-ND 3.0

La première constatation est qu'il y a, en termes de quantité, moins de traces d'autocorrélation et de spectres. La longueur de fibre étant plus courte que dans les exemples précédents, il est nécessaire d'injecter plus de puissance dans la fibre pour commencer à observer un signal, aussi bien spectral que temporel, car on rappelle que le gain net Raman dépend linéairement de la longueur de la fibre :

$$G = g_{ss} P_{crête} \frac{L_{int}}{A_{eff}} \tag{6.1}$$

L'effet Raman est donc moins « efficace » et la génération des Stokes se concentre sur ses premiers ordres. Le principal changement ici par rapport aux résultats précédents mesurés pour une longueur de fibre de 3 m se situe au niveau spectral. En effet, contrairement à la *Figure 69* le spectre n'est ici pas constitué d'une multitude de lignes. Le Stokes généré à 1800 nm domine, tout du moins dans la partie infrarouge du spectre, et sa génération n'est pas « polluée » par la génération de Stokes rotationnels. Ainsi, même avec une puissance de pompe de 15 W, l'écart entre le Stokes vibrationnel à 1800 nm et les premiers rotationnels générés de part et d'autre est supérieur à 30 dB (*Figure 71(b)*). La durée du Stokes (*Figure 71(c)*) reste plus proche de celle de la pompe (de 4,91 ps à 5,54 ps plus précisément), le rapport entre les deux durées d'impulsions a diminué et est maintenant quasiment de 1 contrairement au cas où la fibre mesurait encore 3 mètres.

Vérifions de nouveau la situation lorsque les impulsions de pompe utilisées ont une durée de 1 ps. Les résultats sont présentés en *Figure 72*. Comme pour la *Figure 70*, le spectre s'élargit rapidement avec la montée en puissance, il n'y a plus de ligne Stokes discrète à 1800 nm. L'effet Kerr a pris le dessus à cause de la courte durée d'impulsion mise en jeu.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

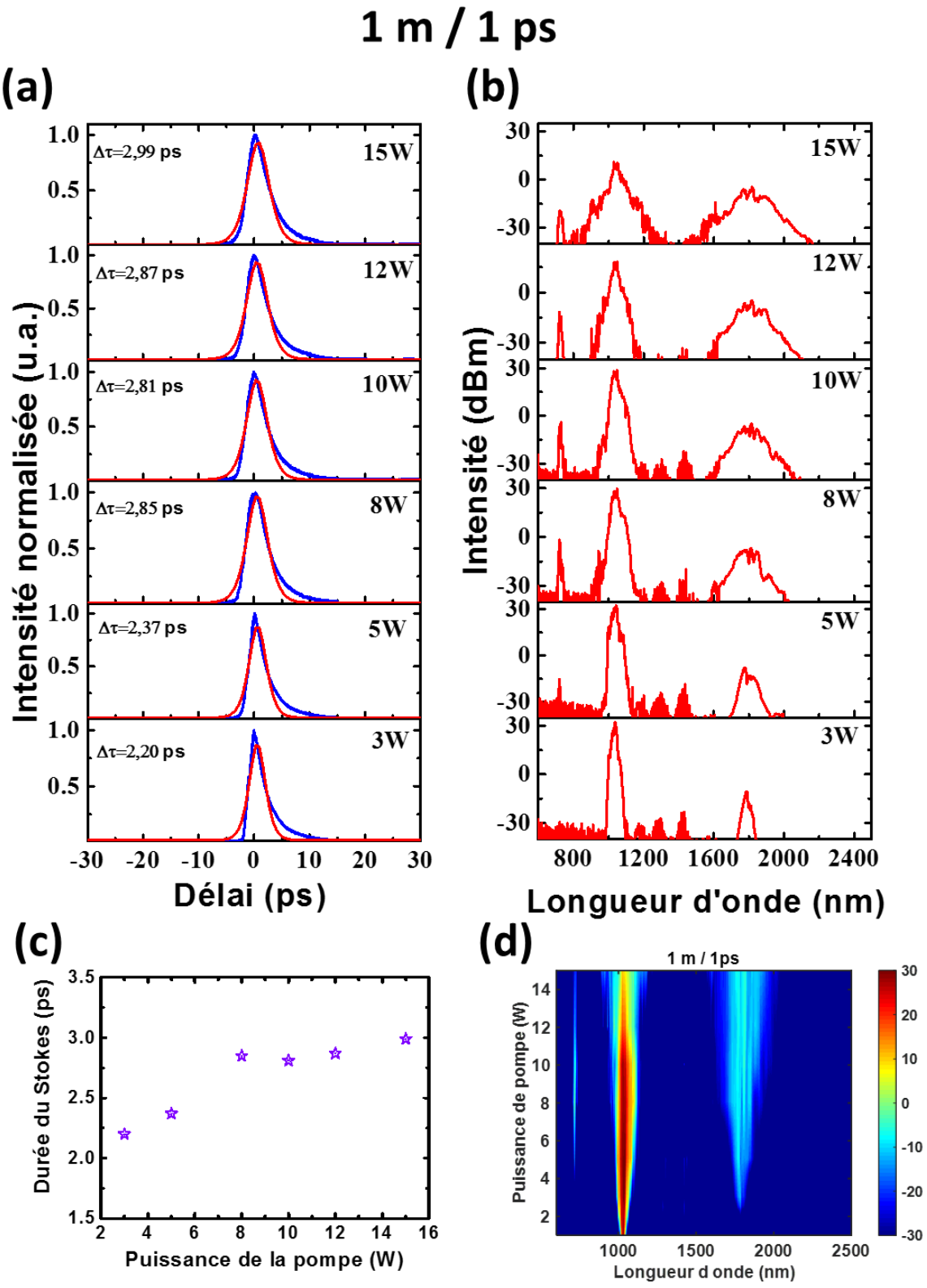


Figure 72 : (a) Traces d'autocorrélation pour une longueur de fibre de 1 m et des impulsions de pompe de 1 ps mesurées pour différentes puissances de pompe, en (b) les spectres correspondants. En (c), la durée du Stokes en fonction de la puissance de pompe et en (d), cartographie regroupant les spectres mesurés en (b).

Licence CC BY-NC-ND 3.0

La durée mesurée du Stokes est déjà le double de celle de la pompe (2,20 ps) à 3 W, et augmente légèrement pour atteindre 2,85 ps à 8 W et saturer autour d'une valeur proche de 3 ps à 15 W (*Figure 72(c)).* On a donc à nouveau un facteur de 3 entre la durée du Stokes et celle de la pompe, comme dans le cas d'une longueur de fibre de 3 mètres. Ces résultats semblent en revanche confirmer que la durée d'impulsion du Stokes ne suit pas forcément celle de la pompe. Diminuer la durée des impulsions de pompe, passé une certaine valeur, ne signifie pas que le Stokes aura la même durée en sortie de fibre. Comme cela a pu être évoqué dans le cas des 3 mètres de fibre, cela est dû à un mélange complexe de phénomènes incluant les effets Kerr et Raman.

Enfin, la fibre est alors réduite à une longueur de 50 cm. Les résultats sont donnés par la *Figure 73* pour des impulsions de pompe de 5 ps. Le spectre est tel qu'il n'y a quasiment plus que le premier Stokes vibrationnel à 1800 nm qui apparait en plus de la pompe, et cela même à 15 W de puissance. Autour de ce dernier et aussi bien qu'autour de la pompe, les premiers ordres de Stokes rotationnels restent peu nombreux et faibles. Près de 30 dB encore une fois entre la ligne à 1800 nm et ses deux bandes latérales. En ce qui concerne la durée du Stokes, elle reste très proche de 5 ps, 5,07 ps à 15 W exactement. Seule la première durée mesurée à 5 W a un écart significatif de 15% (5,76 ps). Comme pour les longueurs de fibre de 3 m et 1 m, le dernier exemple présenté pour ces 50 cm est celui mesuré pour des impulsions de 1 ps (*Figure 74*). Le spectre reste très proche de celui mesuré pour une fibre de 1 m. Encore une fois l'effet Kerr domine pour des impulsions de pompe aussi courtes. La durée d'impulsion quant à elle reste proche des 2,5 ps à toutes les puissances. On est donc à nouveau proche d'un facteur 3 comme constaté pour les longueurs de fibre des cas précédentes.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

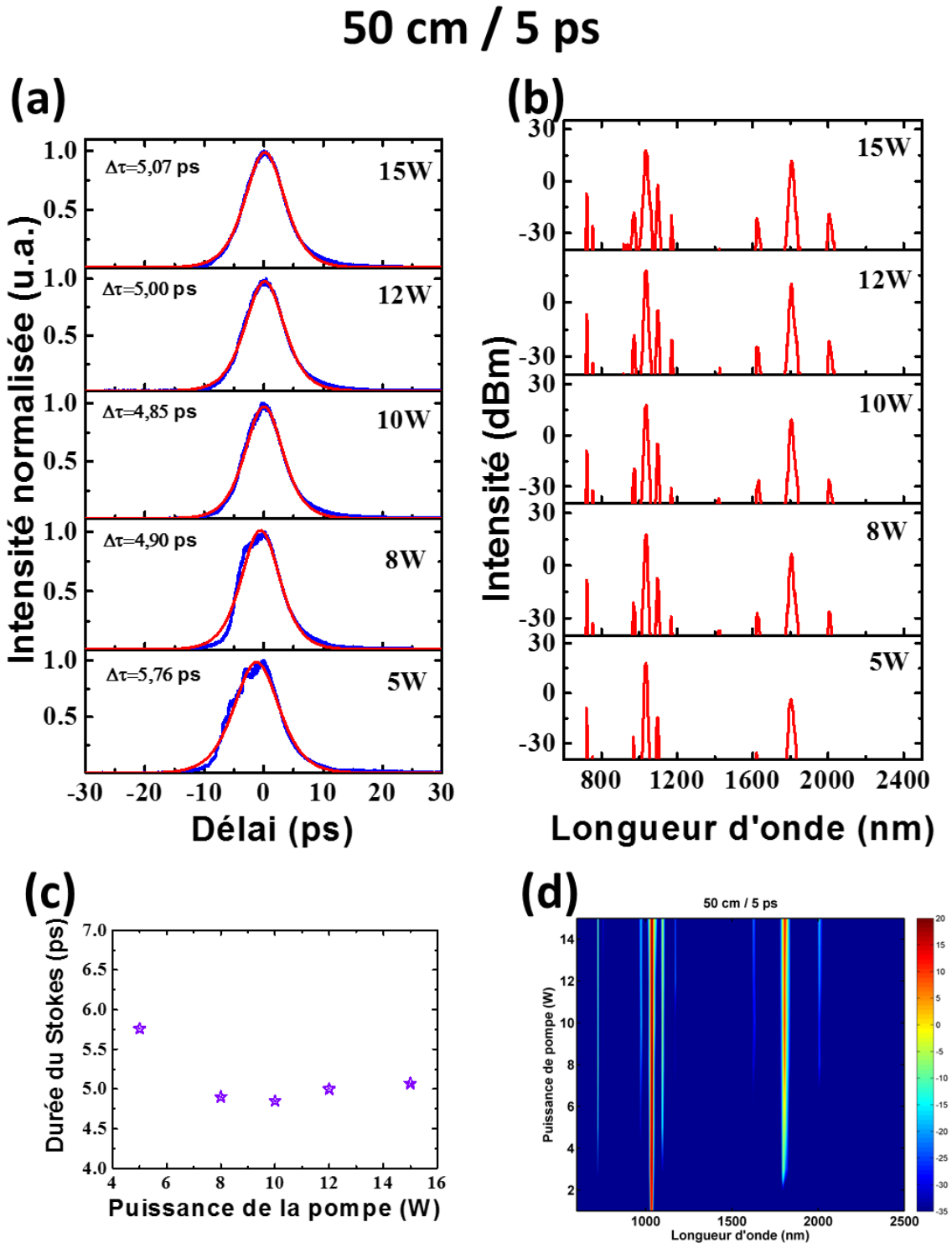


Figure 73 : (a) Traces d'autocorrélation pour une longueur de fibre de 50 cm et des impulsions de pompe de 5 ps mesurées pour différentes puissances de pompe, en (b) les spectres correspondants. En (c), la durée du Stokes en fonction de la puissance de pompe et en (d), cartographie regroupant les spectres mesurés en (b).

Licence CC BY-NC-ND 3.0

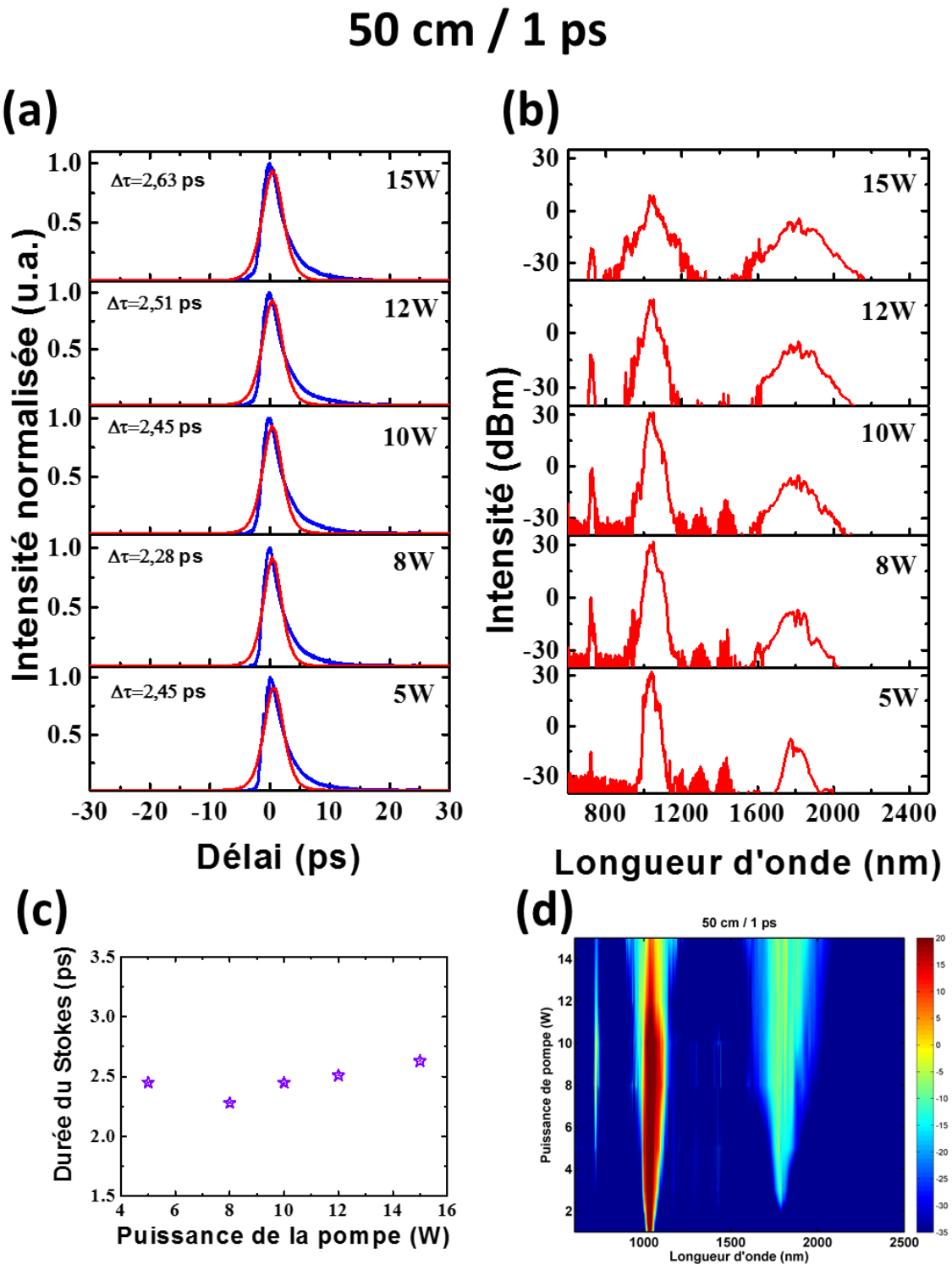


Figure 74 : (a) Traces d'autocorrélation pour une longueur de fibre de 50 cm et des impulsions de pompe de 1 ps mesurées pour différentes puissances de pompe, en (b) les spectres correspondants. En (c), la durée du Stokes en fonction de la puissance de pompe et en (d), cartographie regroupant les spectres mesurés en (b).

Dans un but de comparaison, toutes les durées mesurées pour le Stokes, dans tous les cas de figure de longueurs de fibre et de durées d'impulsions de pompe sont réunis

Licence CC BY-NC-ND 3.0

dans la *Figure 75* de la page suivante. On y représente, pour chaque durée d'impulsion de pompe et longueur de fibre, la durée du Stokes normalisée par la durée de la pompe en fonction de la puissance injectée dans la fibre. Pour les durées d'impulsions de pompe supérieures ou égales à 3 ps, on observe différentes dynamiques pour la durée du Stokes en fonction de la longueur de la fibre. En effet, pour une longueur de 3 m la durée du Stokes à tendance à augmenter avec la puissance injectée dans la fibre (courbes rouges). Ce phénomène est aussi présent pour une longueur de 1 m, mais reste moins prononcé (courbes bleues). La différence a lieu pour une longueur de fibre de 50 cm où la durée du Stokes semble cette fois se réduire au fil de l'augmentation de la puissance de la pompe (courbes vertes). Ce qu'il se passe pour une grande longueur de fibre est que le phénomène de dispersion est accentué, toutes les composantes spectrales de l'impulsion (qui sont de plus en plus nombreuses avec l'augmentation de la puissance) ne se propagent pas à la même vitesse au sein de la fibre remplie de gaz, d'où ce phénomène d'étalement temporel.

Si on considère cette fois les durées d'impulsions de pompe inférieures ou égales à 1 ps, la dynamique est encore différente. Elle est en effet la même quelle que soit la longueur de la fibre. La durée du Stokes est supérieure à la durée de la pompe, et cela même aux puissances les plus basses où une impulsion Stokes a pu être mesurée (de 2 à 5 W en fonction de la longueur de la fibre). De plus, la durée du Stokes augmente avec la puissance de la pompe injectée dans la fibre pour atteindre entre 2 et 3 fois la durée de la pompe lorsque celle-ci est au départ de 1 ps, et entre 4 et 6 fois la durée de la pompe lorsque cette dernière est au départ de 500 fs.

Enfin, la *Figure 76* résume les différentes durées mesurées du Stokes dans les différents cas étudiés. On constate que l'évolution de la durée du Stokes avec celle de la pompe est linéaire, bien qu'elles ne soient pas systématiquement égales. En effet, pour les courtes durées d'impulsion on constate que la durée du Stokes reste supérieure à celle de la pompe. Ceci est valable pour les différents cas présentés ici en fonction de la longueur de la fibre. Les cartographies permettent également de constater que plus la fibre est longue plus la durée du Stokes est susceptible de l'être aussi, comme le montrent les couleurs de plus en plus chaudes avec l'augmentation de la longueur de

Licence CC BY-NC-ND 3.0

fibre. Les effets de dispersion, et donc d'élargissement temporel des impulsions, se font logiquement plus ressentir sur 3 mètres de fibre que sur 50 cm.

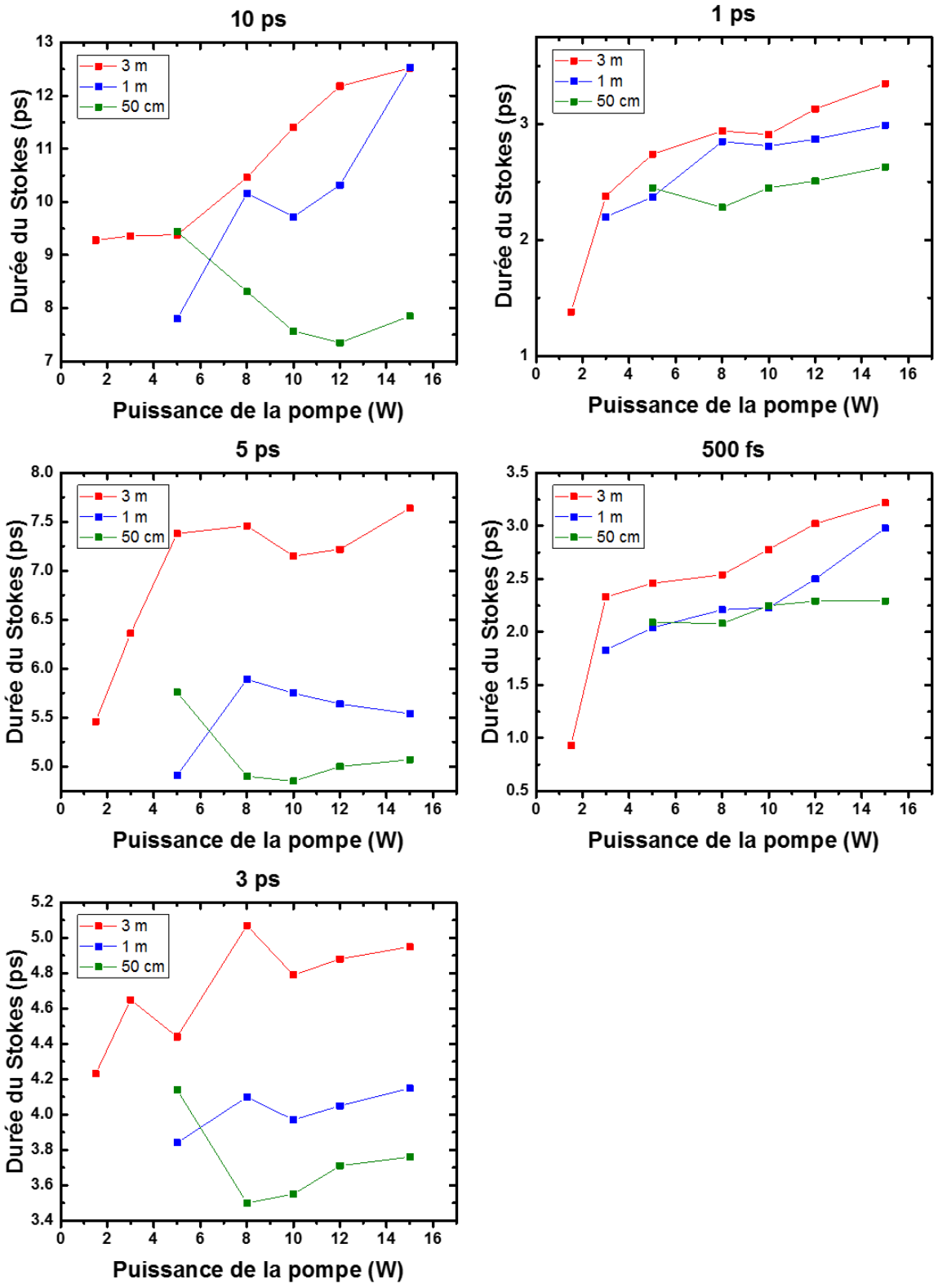


Figure 75 : Durée du Stokes en fonction de la puissance de la pompe, pour différentes durées d'impulsions de pompe. Les différentes couleurs représentent différentes longueurs de fibre.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

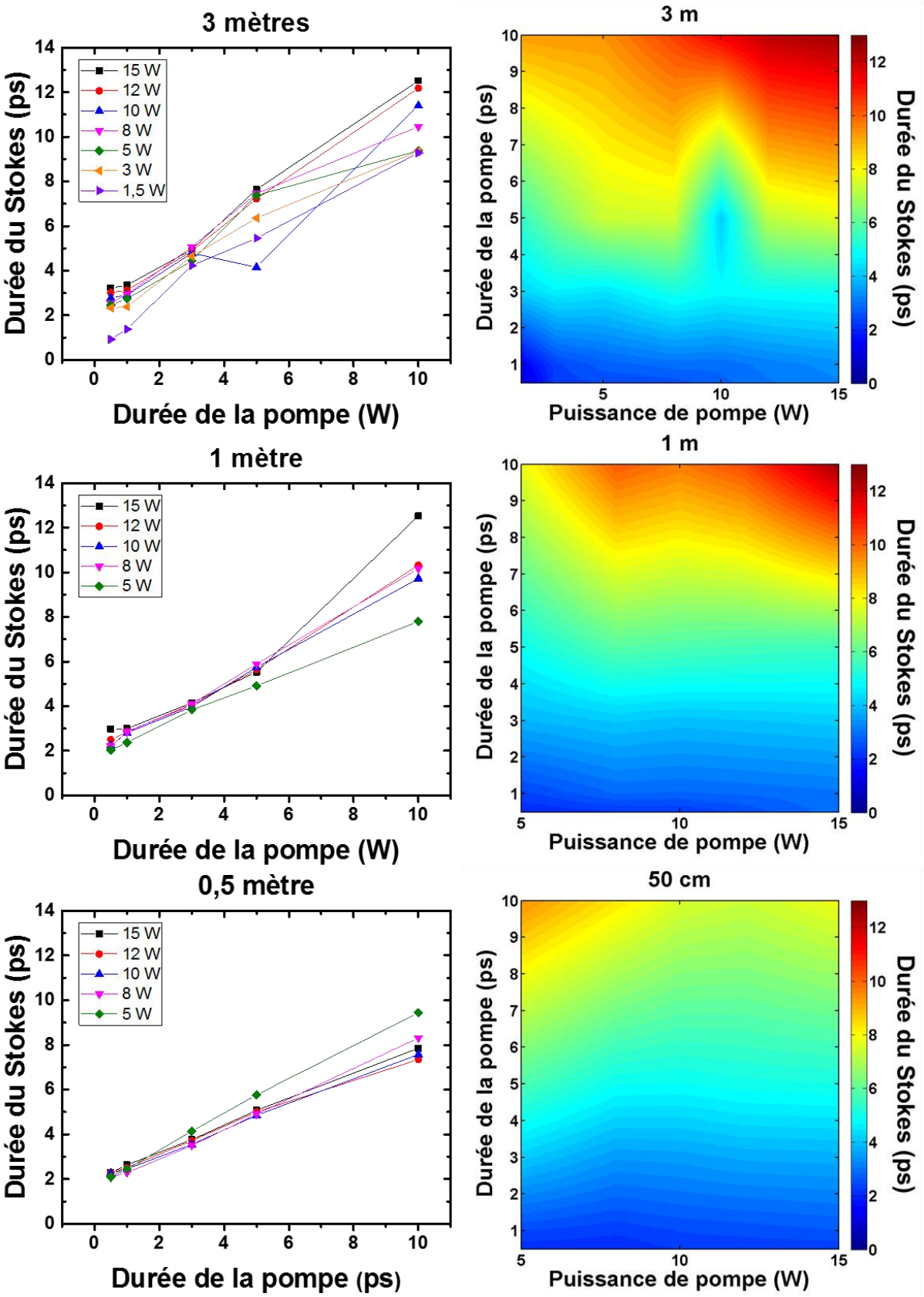


Figure 76 : (colonne de gauche) Durée du Stokes en fonction de la puissance de la pompe, pour différentes puissances injectées dans la fibre. (Colonne de droite) Durée du Stokes en fonction de la puissance de la pompe et de la durée des impulsions de pompe.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Ce type d'étude systématique permet de délimiter un espace de fonctionnement pour la pompe basé sur le couple de valeurs puissance/durée d'impulsion pour une génération optimale du premier Stokes vibrationnel à 1800 nm. Cependant, lorsque nous parlons d'optimisation, il faut évoquer un paramètre important : l'efficacité de conversion quantique. C'est l'objet de la prochaine section.

VI.4. Efficacité de conversion

Pour caractériser notre source laser, il est nécessaire de calculer le coefficient de conversion quantique. Ce nombre permet de déterminer ici à quel point la conversion de l'énergie de la pompe vers le premier Stokes vibrationnel est efficace. Ce coefficient, que nous appellerons η, peut se calculer à l'aide de la formule suivante :

$$\eta = \frac{P_{Stokes}}{P_{Pompe}} \times \frac{\lambda_{Stokes}}{\lambda_{Pompe}} \tag{6.2}$$

Nous avons ainsi pu donner le coefficient de conversion quantique de notre source dans tous les cas de mesure (*Figure 77*). L'efficacité est maximum dans le cas d'une longueur de fibre de 3 mètres (93%), atteignant presque la limite quantique (99,99%). A cette longueur, seule la conversion pour une durée d'impulsion de pompe de 3 ps est légèrement inférieure (80% à 15 W). Ceci peut s'expliquer en partie par un gain net Raman inférieur à celui obtenu avec une plus grande durée d'impulsion. Une valeur supérieure à 80% est déjà atteinte pour une puissance de pompe de 8 W, la conversion présente donc comme un effet de saturation à partir de cette valeur. Ceci indique qu'à partir de 8 W de pompe, le premier Stokes vibrationnel lui-même sert de pompe pour la génération d'ondes Stokes d'ordres supérieurs. Nous avons déjà pu constater l'effet de la réduction de la longueur de fibre sur les contenus spectral et temporel des impulsions Stokes générées dans cette expérience. Qu'en est-il de l'efficacité de conversion ? La *Figure 77* présente également les efficacités de conversion pour les différentes durées d'impulsions, à la fois pour 1 mètre et 50 centimètres de fibre. Avec 1 m de fibre, la conversion commence seulement à partir de 3 W de puissance de pompe, alors qu'elle augmentait dès 1 W pour une longueur de 3 m. Elle augmente ensuite pour toutes les durées testées pour atteindre environ 73% à 15 W, ce qui est inférieur aux plus de 90% obtenus pour une conversion avec une fibre de 3 m. On ne

Licence CC BY-NC-ND 3.0

constate pas non-plus cet effet de saturation observé à une telle longueur. Lorsque la longueur de fibre est une nouvelle fois réduite à 50 cm, la conversion commence encore plus tard, au-delà de 5 W. Elle croît ensuite jusqu'à atteindre une valeur d'environ 36% à 15 W de pompe pour les 3 durées testées, ce qui est bien inférieur aux cas précédents. Ces résultats présentent la longueur de la fibre comme un paramètre crucial dans le dimensionnement de notre nouvelle source laser dans l'infrarouge, et permettent de montrer encore une fois que la DRS dans les fibres creuses remplies de gaz est un outil puissant pour la conversion de fréquences, avec une efficacité proche de la limite quantique, et cela même avec des impulsions de seulement quelques picosecondes.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

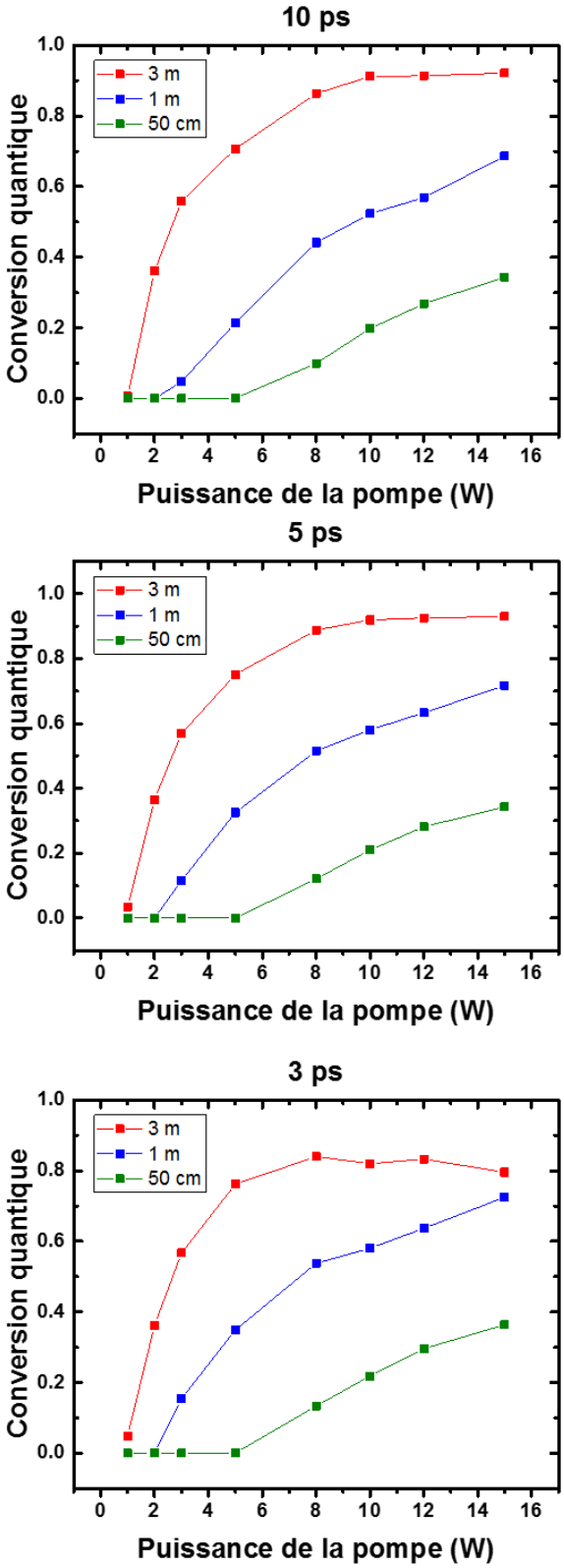


Figure 77 : Efficacités de conversion de l'énergie de la pompe vers le premier Stokes vibrationnel pour les différentes longueurs de fibre et les différentes durées d'impulsions de la pompe testées dans ce chapitre.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Passons maintenant plus en détails sur le niveau de puissance du Stokes mesuré directement en sortie de fibre par un puissance-mètre thermique. Les résultats sont présentés en *Figure 78* et montrent l'augmentation de la puissance du Stokes avec celle de la puissance de pompe, pour toutes les durées testées, c'est-à-dire de 500 fs à 10 ps. Le maximum de puissance (près de 2,4 W) est atteint pour les durées d'impulsions supérieures à 3 ps. La puissance du Stokes décroit ensuite avec la diminution de la durée des impulsions de pompe. En effet, pour les courtes durées (ici 1 ps et 500 fs) le spectre change et la puissance est dirigée sur la totalité du spectre au lieu d'une unique ligne localisée à 1800 nm. La cartographie à droite de la *Figure 78* permet de dégager une tendance pour générer le Stokes avec le plus de puissance possible : il faut naturellement augmenter la puissance de la pompe mais aussi utiliser plutôt les longues durées d'impulsions.

A 1 mètre, la puissance du Stokes ne commence à augmenter qu'à partir de 3 W, alors qu'un léger niveau de puissance apparaissait dès 1 W de pompe dans le cas des 3 mètres. Cependant, le même niveau de puissance est atteint à 15 W, c'est-à-dire près de 2,5 W (pour des impulsions de pompe de durée supérieure ou égale à 3 ps). Cette puissance décline ensuite légèrement lorsque la durée des impulsions diminue pour atteindre par exemple 1,7 W avec des impulsions de 500 fs et à 15 W de pompe. La cartographie confirme la tendance observée à 3 m : pour plus de puissance dans le Stokes il faut se placer dans le cas des plus longues impulsions de pompe et, bien sûr, des plus grandes puissances de pompe.

La même opération a été répétée pour une longueur de fibre de 50 cm. Cette fois, la génération de puissance du Stokes ne démarre que pour plus de 5 W de puissance de pompe, et la puissance maximale atteint un peu moins de 1,5 W pour les plus longues durées d'impulsions. Elle n'est par exemple que de 750 mW environ pour des impulsions de 500 fs. Enfin, une cartographie a aussi été tracée dans ce dernier cas. On voit une nette différence avec les deux cartographies précédentes en termes de niveau de puissance bien que la tendance générale reste la même. Il faut en effet toujours aller plutôt vers les grandes durées d'impulsions et les hautes puissances pour optimiser la conversion de puissance vers l'IR.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

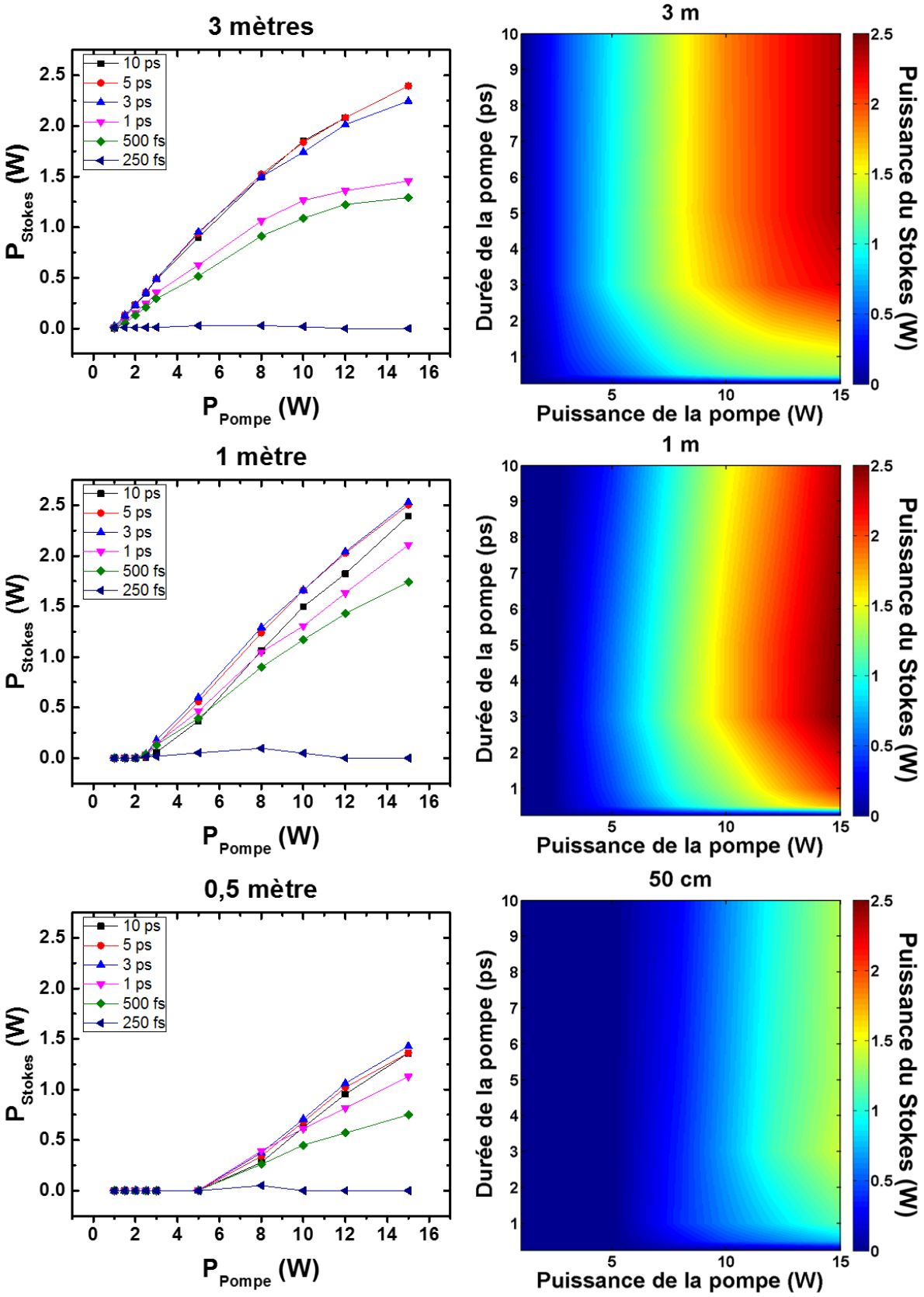


Figure 78 : (Colonne de gauche) Puissance du Stokes en fonction de la puissance de la pompe, pour différentes durées d'impulsions de pompe. (Colonne de droite) Puissance du Stokes en fonction de la puissance de la pompe et de la durée des impulsions de pompe.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Enfin, pour toutes les longueurs de fibre utilisées, la puissance mesurée à 1,8 µm pour des impulsions de 250 fs est quasiment nulle. A une telle durée d'impulsion, le spectre est trop étalé sous forme de supercontinuum, il n'y a donc pas de signal assez puissant pour être mesuré à 1,8 µm.

VI.5. Résumé

Dans ce chapitre nous avons effectué une étude plus approfondie sur la génération d'impulsions dans l'infrarouge, à 1,8 µm, par diffusion Raman stimulée dans une fibre creuse remplie de gaz pompée à 1030 nm. Les impulsions générées ont été caractérisées spectralement, temporellement ainsi qu'en puissance. Les résultats indiquent que la durée du Stokes correspond à la durée de la pompe jusqu'à une durée aussi courte que 2 ps, valeur à partir de laquelle la durée des impulsions infrarouges stagnent malgré des impulsions de pompe pouvant diminuer jusqu'à 500 fs. Ceci est dû à l'apparition de l'effet Kerr, qui devient un phénomène non-négligeable lorsque la durée des impulsions de pompe est suffisamment courte. La puissance moyenne maximale du Stokes dépasse les 2 W avant de saturer. Un tel niveau de puissance est déjà mesuré pour une longueur de fibre de seulement 1 m. Enfin, cette longueur sert aussi de paramètre de contrôle au regard de la « pureté » spectrale du Stokes. Diminuer la longueur permet en effet de retarder en puissance l'apparition de Stokes d'ordres supérieurs, les empêchant de devenir eux-mêmes une pompe pour des Stokes d'ordres encore supérieurs.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

CHAPITRE VII

Nouvelle source multi-octave à structure spectrale accordable

Ce chapitre présente la dynamique spectrale observée lorsque l'on vient exciter un gaz d'hydrogène à forte pression, confiné dans une fibre creuse, avec des impulsions ultra-courtes. Lorsque la durée de ces dernières est supérieure à une certaine valeur l'effet Raman domine et un peigne de fréquences est généré, en revanche lorsque leur durée est inférieure à celle-ci alors l'effet Kerr optique prend le dessus, résultant en la génération d'un supercontinuum. Une caractérisation spectrale est effectuée en fonction de la puissance et de la durée des impulsions de pompe. Enfin, un modèle numérique permettant de déterminer quel phénomène domine en fonction de ces conditions initiales est proposé. Les résultats présentés dans ce chapitre ouvrent la voie pour la génération de sources lasers à large spectre dont la structure serait contrôlable.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

VII.1. Panorama des sources lasers à large spectre

Les sources laser émettant sur un large spectre peuvent être séparées en deux catégories, les unes émettant un spectre continu et les autres des lignes discrètes. Chaque type de spectre peut être généré à partir de différentes techniques. Nous commençons ce chapitre par une brève présentation du paysage représentant ces sources.

VII.1.1. Supercontinuum

La génération d'un supercontinuum consiste en la conversion d'une lumière laser (monochromatique) en une structure spectrale continue (comme leur nom l'indique) au sein d'un matériau non-linéaire. Bien que des élargissements spectraux aient été observés dès 1963 [104], la première véritable démonstration d'un large supercontinuum a été réalisée en 1970 par Alfano et Shapiro [105], dans des verres et cristaux à l'aide de lasers impulsionnels picosecondes permettant de bénéficier d'énergies que les lasers continus n'étaient alors pas capables de fournir. Ces impulsions, émises à 530 nm, possédaient en effet une énergie de 5 mJ. Il faudra cependant attendre 1984 pour que ces structures spectrales se voient attribuées le nom de « supercontinuum » [106]. Les tentatives de génération de spectres plus larges se sont vite heurtées à des effets indésirables (dommages irréversibles, longueur d'interaction limitée) inhérents aux matériaux solides dans lesquels l'interaction lumière-matière avait lieu. Les recherches se sont alors dirigées vers l'utilisation de fibres optiques comme milieux actifs, afin de bénéficier à la fois d'une bonne qualité de mode et de grandes longueurs d'interaction permettant de diminuer l'énergie nécessaire à la génération de supercontinuum. Ceci a d'abord été réalisé avec des fibres à cœur solide (fibres à saut d'indice, fibres dopées) [107]–[109], puis avec des fibres à cristaux photoniques [110]–[115], en particulier grâce à leur haute non-linéarité et à leur zéro de dispersion contrôlable.

Depuis quelques années, l'utilisation de la photonique intégrée permet aussi la génération de supercontinuum [116]–[120]. L'avantage est ici une miniaturisation des sources. De plus, le faible volume modal et les hauts facteurs de qualité de ces structures permettent l'abaissement du seuil d'apparition des effets non-linéaires.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

VII.1.2. Peignes de fréquences

Contrairement aux supercontinuum, les peignes de fréquences ont un spectre discret de lignes régulièrement espacées. La génération de telles structures peut provenir de différentes techniques. Historiquement, on peut compter la génération d'harmonique d'ordre élevé (HHG : High Harmonic Generation). Cette technique consiste à exciter un gaz à faible pression avec un laser intense [121], [122] afin de générer un spectre pouvant s'étendre des UV jusqu'aux rayons X. Les oscillateurs femtosecondes à blocage de modes fonctionnant en régime stationnaire voient également leur spectre former un peigne de fréquences, dont l'espacement entre les lignes dépend directement de la longueur de la cavité [123].

D'autres techniques existent, comme la génération de peignes Kerr en photonique intégrée en excitant avec des lasers continus des micro-résonateurs [124]. Enfin, nous pouvons citer les peignes de fréquences Raman [18], [125] qui sont le sujet principal de cette thèse. Les nombreuses recherches effectuées jusqu'à présent ont permis dans les deux cas la génération de spectres très larges : plus de deux octaves pour les peignes Kerr [126] et plus de cinq pour les peignes Raman [125].

VII.1.3. Résumé

Le *Tableau 4* ci-dessous permet de dresser rapidement le panorama de ce qui a été cité dans les paragraphes précédents, afin de donner une idée plus précise des caractéristiques inhérentes à chaque type de source.

	Supercontinuums	Mode-lock (Ti:Sa)	HHG	Micro-resonateurs	Raman (ex : H_2)
Structure spectrale	Continue	Peigne	Peigne	Peigne	Peigne
Séparation $\delta\nu$	Aucune	100 MHz – 1 GHz	750 THz	100 GHz – 1 THz	125 THz, 17.6 THz
Largeur $\Delta\nu$	Jusqu'à 500 THz	~150 THz	>1000 THz	~70 THz	>1000 THz
Excitation	Pulsée ou continue	Pulsée	Pulsée	Continue	Pulsée
Tenue à la puissance	Moyenne	Haute	Haute	Faible	Haute
Gamme spectrale	UV à MIR	650 à 950 nm	DUV aux rayons X	1300 à 1800 nm	UV à IR moyen

Tableau 4 : Résumé des différentes caractéristiques optiques de chaque technologie destinée à la génération de spectres larges.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

VII.2. Montage expérimental

La plateforme nous permettant de réaliser une telle source est basé sur le laser de pompe et la fibre creuse utilisés dans les chapitres précédents. En revanche ici, la dernière partie du montage concerne la détection du spectre généré dans la fibre. Pour cela nous avons utilisé différents appareils : un spectromètre allant de 180 nm à 1100 nm (Stellarnet) et 2 analyseurs de spectre optique, le premier allant de 350 nm à 1750 nm (AQ-6315A, Ando) et le second de 1500 nm à 3400 nm (Yokogawa). Il est important d'avoir des zones spectrales de recouvrement entre les différents appareils de mesure afin de pouvoir les assembler au même niveau lors du traitement des données. Les mesures ont été réalisées de la manière suivante : pour une puissance de pompe moyenne donnée, le spectre de sortie était mesuré pour différentes durées d'impulsions de pompe. Le processus a été répété pour différentes puissances moyennes de pompe, permettant ainsi de réaliser une cartographie du spectre de sortie en fonction de ces 2 paramètres. Il est à préciser qu'il est possible de jouer sur d'autres paramètres comme la pression du gaz dans la fibre, la polarisation du faisceau de pompe et sur la fibre elle-même (structure, longueur) voire sur la longueur d'onde de pompe car l'effet Raman n'est pas résonnant, et l'espèce du gaz Raman afin de profiter d'un décalage Ω_R différent.

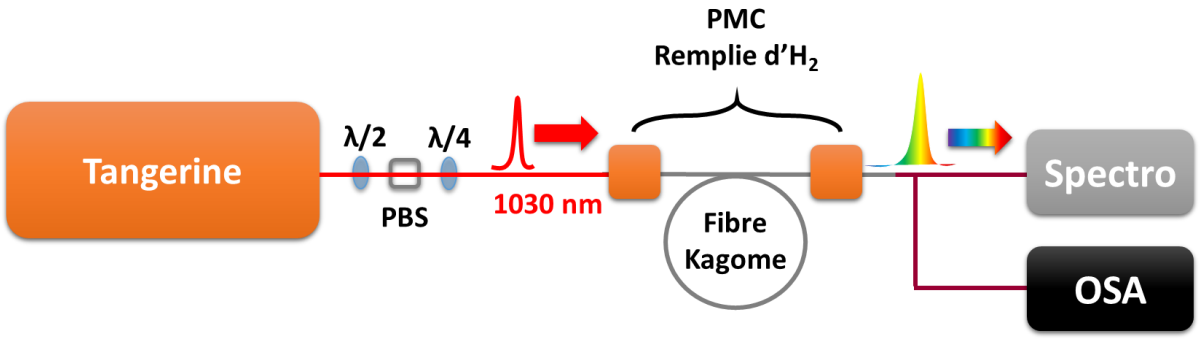


Figure 79 : Schéma du montage expérimental utilisé ici. La lumière blanche sortant de la fibre remplie de gaz, que ce soit sous forme d'un supercontinuum ou d'un peigne de fréquences, est analysée spectralement par différents appareils.

VII.3. D'un supercontinuum à un peigne de fréquences Raman

Dans un premier temps, afin d'observer quel est l'effet du changement de durée d'impulsion de pompe sur la structure du spectre généré, la lumière blanche sortant

Licence CC BY-NC-ND 3.0

de la fibre est dispersée par un réseau optique (*Figure 80*). La durée des impulsions est au départ de 10 ps, celle-ci diminue petit à petit à chaque observation jusqu'à atteindre la valeur minimale de 250 fs. La puissance moyenne des impulsions injectées dans la fibre est de 10 W dans l'exemple présenté ci-dessous montrant la lumière dispersée sur un écran par le réseau. Par ailleurs, la fibre elle-même change de couleur en fonction des conditions initiales (*Figure 81*). Cette étude est ensuite reproduite systématiquement en faisant varier les paramètres de contrôle principaux que sont ici la durée des impulsions de pompe et leur puissance moyenne. La section suivante présente ces résultats visuels.

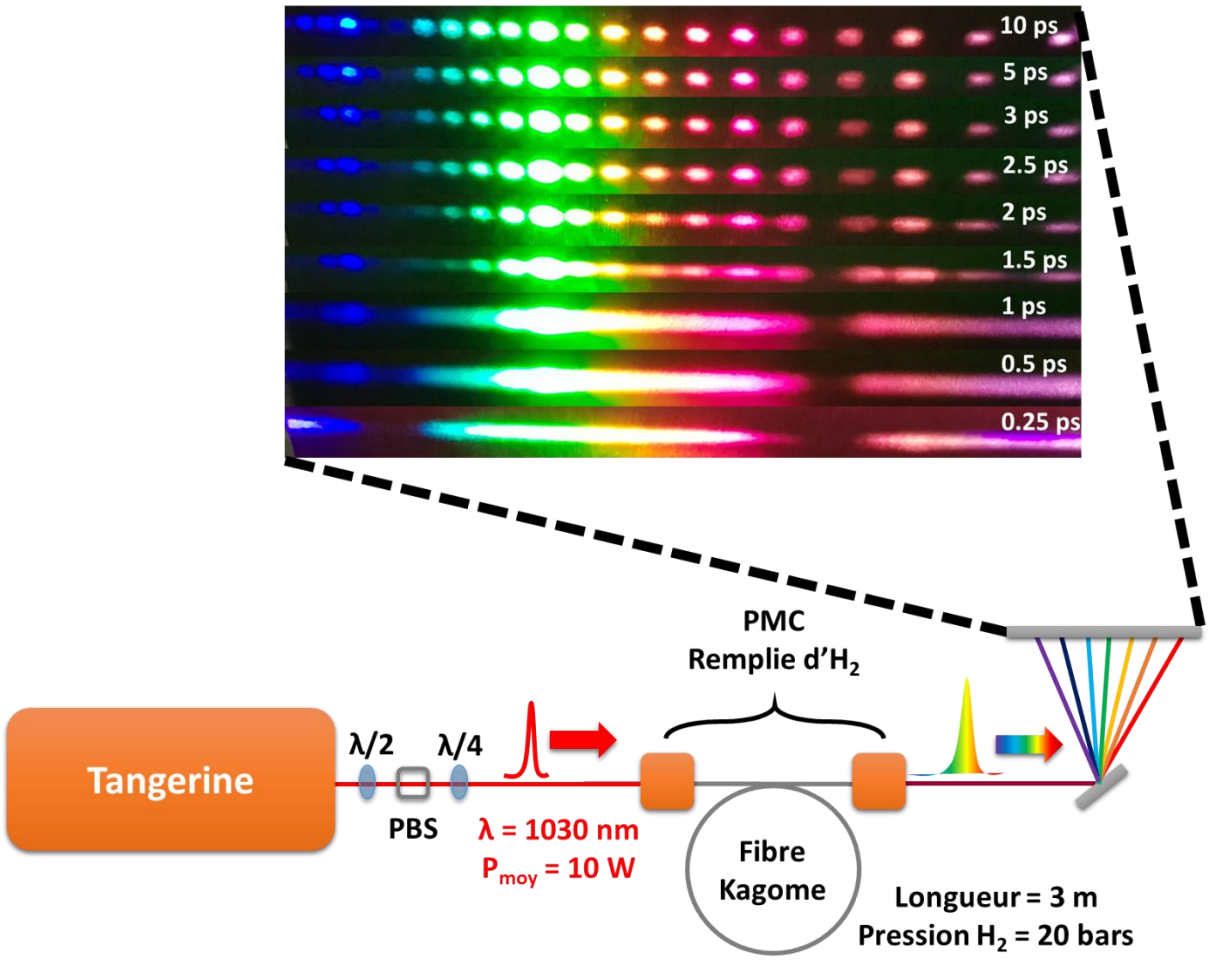


Figure 80 : (en bas) Une première étude du spectre de sortie est réalisée à l'aide d'un réseau optique placé à la sortie du milieu actif. Les différentes composantes spectrales sont alors dirigées vers un écran pour observation. (en haut) Spectre obtenu en sortie de fibre après avoir dispersé la lumière avec un réseau. Différents cas, obtenus avec différentes durées d'impulsions de pompe, sont superposés. On voit bien la transition d'un peigne de fréquences vers un supercontinuum. Dans cet exemple, la puissance injectée dans la fibre est de 10 W.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

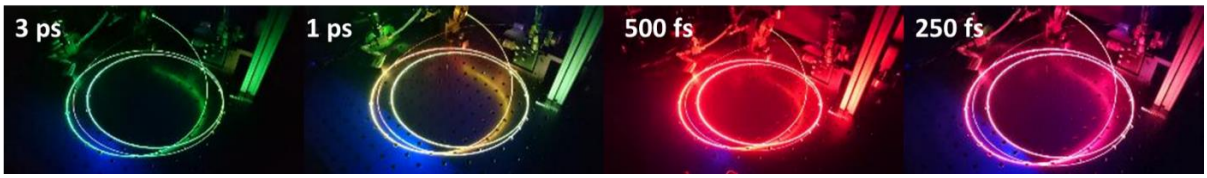


Figure 81 : Le spectre étant très dépendant des conditions expérimentales, la fibre s'illumine elle-même de couleurs différentes lorsque ces conditions changent. La puissance d'entrée dans la fibre est de 3 W.

VII.4. Caractérisation systématique du spectre généré

Dans le but d'étudier le phénomène de génération du spectre de manière plus complète, et afin d'illustrer dans quelles conditions un type de structure en particulier est privilégié entre le supercontinuum et le peigne de fréquences, le spectre généré dans la fibre creuse remplie de gaz a été mesuré pour de nombreuses valeurs du couple durée-puissance de l'impulsion de pompe. Ces mesures permettent la construction de « cartes » présentant l'évolution du spectre en fonction de ce couple. L'intérêt de cette section est double. D'un point de vue scientifique et fondamental elle permet d'identifier de quelle manière les effets Raman et Kerr interagissent et quelles conditions privilégient l'un ou l'autre. Dans une perspective plus technologique, et en vue de proposer un nouveau type de source à spectre ultra-large dont la structure serait accordable, il est important pour le potentiel futur utilisateur de savoir quels sont les paramètres qu'il doit contrôler afin de choisir le contenu spectral nécessaire à ses travaux.

VII.4.1. Etude réalisée en fonction de la durée des impulsions de pompe

La première série de cartes montre l'évolution du spectre en fonction de la durée d'impulsion de pompe et pour une puissance d'injection donnée (*Figure 82*). Ces cartes montrent tout d'abord de quelle manière le spectre s'élargit avec la puissance de pompe. Dans un premier temps toute l'énergie reste dans la pompe, puis le premier Stokes vibrationnel est généré à 1,8 µm ainsi que quelques Stokes rotationnels autour de la pompe. Enfin, au fur et à mesure que la puissance augmente les premiers Stokes ainsi générés deviennent à, leur tour, suffisamment puissants pour devenir des pompes pour la génération de Stokes d'ordres supérieurs. Si l'on se concentre sur les lignes spectrales discrètes générées par effet Raman, on constate un élargissement avec la diminution de la durée des impulsions de pompe.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

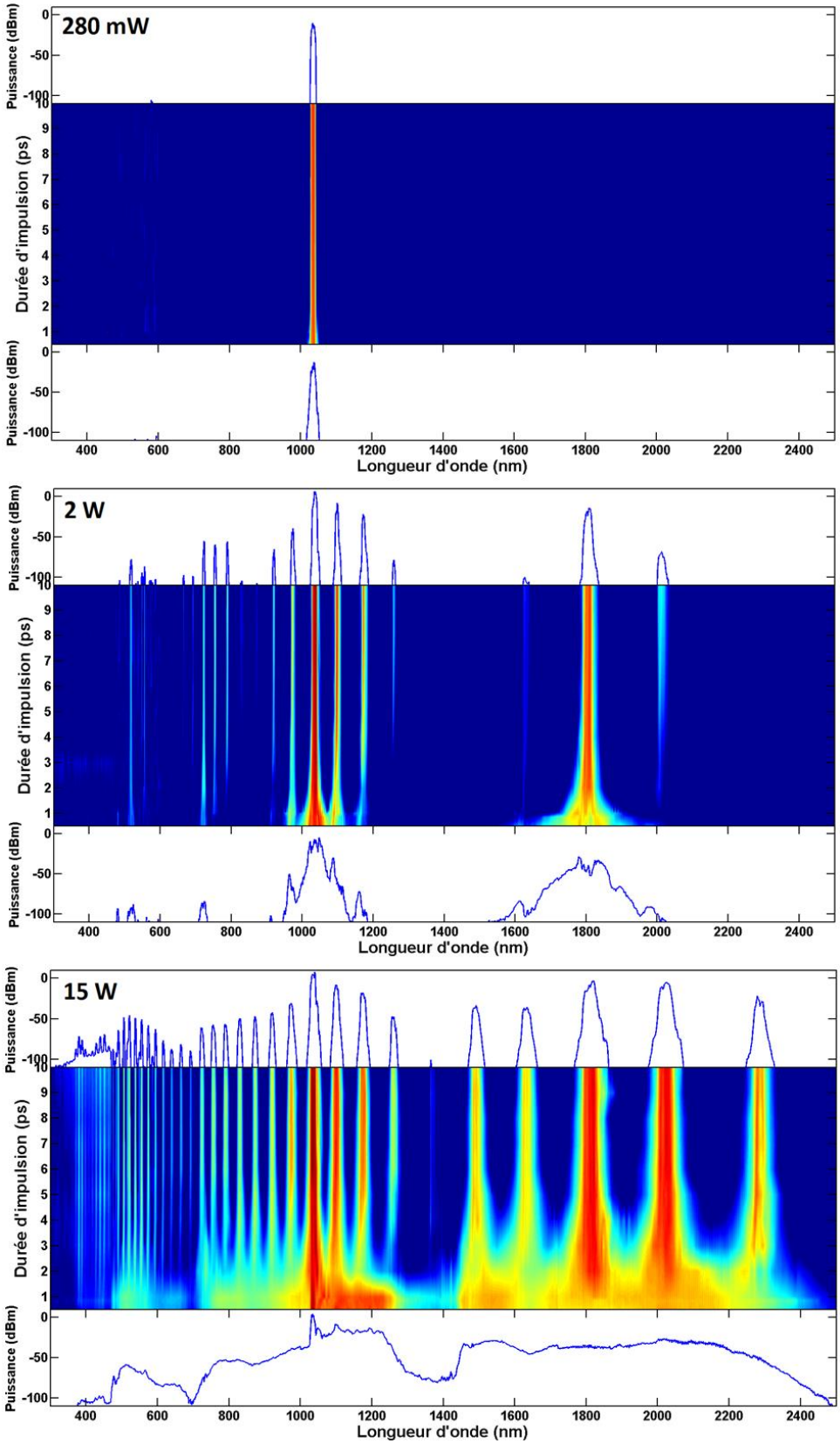


Figure 82 : Transition (au centre) d'un spectre de supercontinuum obtenu avec des impulsions de durée égale à 250 fs (en bas) vers un spectre de peigne de fréquences obtenue avec des impulsions de durée égale à 10 ps (en haut). La puissance moyenne du faisceau de pompe est de 15 W. Le spectre total s'étend sur trois octaves, de 370 nm à 2,5 µm.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Cet élargissement est alors amplifié et le peigne de fréquences Raman se transforme en un supercontinuum aux alentours d'une certaine durée des impulsions de pompe utilisées pour exciter le milieu. Cependant, cette transition d'un type de structure spectrale à l'autre n'apparait pas au même moment en fonction de la longueur d'onde (*Figure 83*), ou bien encore de la puissance. Ce phénomène n'est par ailleurs pas uniquement dû à l'élargissement individuel des lignes Raman avec la diminution de la durée des impulsions. Il y a une frontière nette entre le peigne de fréquences et le supercontinuum, ce qui implique l'émergence d'un autre phénomène : l'effet Kerr optique.

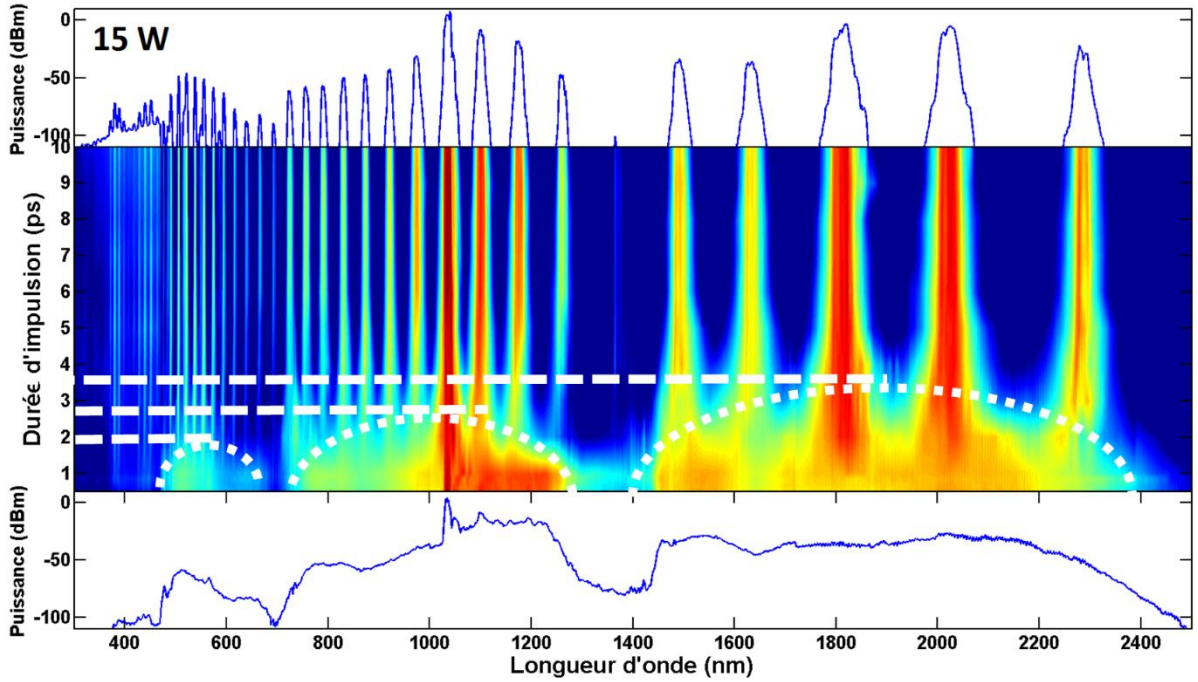


Figure 83 : Pour une puissance donnée (ici 15 W), la transition d'un peigne de fréquences vers un supercontinuum apparait à de plus grandes durées d'impulsions avec l'augmentation de la longueur d'onde. De manière qualitative, la hauteur des lobes en pointillés blancs entourant les continuums n'est pas la même en fonction de la longueur d'onde.

Cette première série de mesures illustre l'aspect accordable de la structure elle-même du spectre (continue ou discrète). Celle-ci change en fonction de la durée des impulsions de pompe, lorsque celles-ci sont courtes cela favorise un supercontinuum et lorsqu'elles sont longues un peigne de fréquences Raman. Sachant cela, il faut maintenant fixer la durée des impulsions de pompe et étudier l'effet du changement de la puissance sur le contenu spectral en sortie de milieu actif.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

VII.4.2. Etude réalisée en fonction de la puissance des impulsions de pompe

Ainsi, la seconde série présente cette fois l'évolution du spectre en fonction de la puissance d'injection dans la fibre et à une durée d'impulsion de pompe donnée (*Figure 84*). Un constat général peut-être fait sur l'ensemble des durées étudiées : plus la puissance de pompe augmente plus le spectre à la sortie de la fibre est large. Ceci est valable aussi bien pour les supercontinuum que les peignes de fréquences.

Certaines mesures, effectuées pour des durées d'impulsions particulières, montrent un autre aspect intéressant de la construction du spectre. En effet, la génération du supercontinuum démarre des lignes Raman. Si les bandes de transmission finissent par être totalement remplies lorsque la puissance utilisée est suffisante, c'est d'abord autour des lignes discrètes Raman (la pompe puis le premier Stokes vibrationnel en particulier) que le « remplissage » du spectre de transmission de la fibre commence.

Enfin sur la *Figure 84* en haut, le spectre du supercontinuum n'est pas d'intensité constante. Cette discontinuité est due aux bandes de transmission de la fibre, et donc à la structure même de celle-ci. En effet comme cela est évoqué dans le chapitre III, les bandes de transmission (et donc les bandes de coupure également) sont centrées autour de certaines fréquences en fonction de l'épaisseur des ponts de silice de la microstructure de la fibre. Ici, le supercontinuum remplit donc complètement les bandes de transmission et permet dans le même temps de distinguer les régions du spectre électromagnétique où la fibre ne guide pas.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

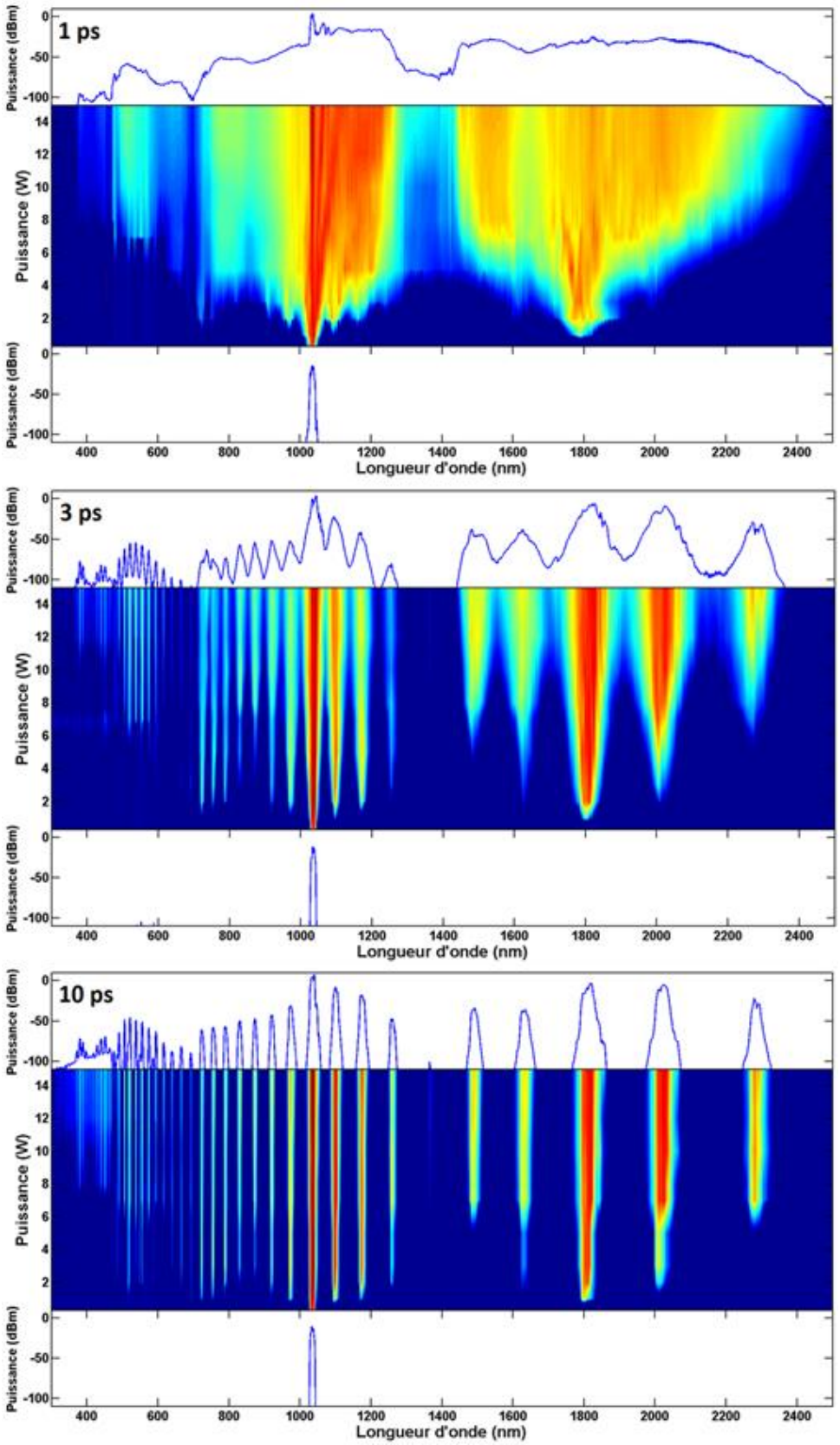


Figure 84 : Transition (au centre de chaque graphe) d'un spectre obtenu avec des impulsions de puissance égale à 300 mW (en bas) vers un spectre obtenu avec des impulsions de puissance égale à 15 W (en haut). La durée des impulsions de pompe est de 1 ps pour la carte du haut et de 10 ps pour la carte du bas.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

VII.5. Modélisation numérique

Afin de tenter de prédire quel type de structure spectrale peut être obtenu en fonction des paramètres d'entrée choisis ici (durée et puissance des impulsions de pompe), un modèle numérique est proposé. Bien qu'une modélisation rigoureuse nécessite la résolution de l'équation de Schrödinger non-linéaire généralisée, nous nous contenterons ici d'une modélisation basée sur les gains régissant les deux processus ici mis en jeu : les effets Kerr et Raman. Nous souhaitons seulement donner des lois d'échelle sur les événements observés expérimentalement. Le but est d'être capable de prédire l'effet dominant, et donc le type de spectre généré, en fonction de l'impulsion de pompe envoyée à notre milieu actif. Nous savons que la non-linéarité d'un milieu est caractérisée par sa polarisation P. Cette polarisation se divise elle-même en deux parties : la polarisation linéaire P_L et la polarisation non-linéaire P_{NL}. Si l'on considère ici simplement la seconde, on peut la séparer elle-même en deux contributions : celle de l'effet Kerr et celle de l'effet Raman (traitées ici séparément) :

$$P = P_L + P_{NL} = P_L + P_{Raman} + P_{Kerr} \tag{7.1}$$

Comme cela a déjà été évoqué dans le chapitre II, l'effet Raman est un effet de seuil. C'est seulement à partir d'une certaine puissance que ce phénomène physique a lieu. Dans notre cas cette puissance dépend de plusieurs paramètres comme la longueur de la fibre L ainsi que les dimensions transverses de son cœur creux (A_{eff}), mais aussi la durée τ des impulsions par exemple ou encore le coefficient de gain Raman en régime stationnaire g_{ss} [16] :

$$P_{seuil}(\tau) = f_{rep}\frac{A_{eff}}{8\Gamma g_{SS}L}(25 - \log[4\pi\Gamma\tau + 2\Gamma\tau])^2 \tag{7.2}$$

Le gain net Raman en régime transitoire utilisé ici s'écrit quant à lui [40] :

$$G_R = 2\sqrt{\Gamma\tau g_{SS}IL} = 2\sqrt{\Gamma\tau g_{SS}\frac{P_m}{A_{eff}}\frac{1}{f_{rep}\tau}L} \tag{7.3}$$

Avec I l'intensité des impulsions s'exprimant en fonction de la puissance moyenne P_m et de la fréquence de répétition du laser f_{rep}.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

La contribution de l'effet Kerr est déterminée à l'aide d'un gain net effectif ne prenant pas en compte la contribution de l'effet Raman. Ce gain net est déterminé dans [127] et s'écrit :

$$G_K = g_{K,eff} IL = \left(\frac{4\pi n_2}{\lambda} f_{coh}\right)\left(\frac{P_m}{A_{eff}} \frac{1}{f_{rep}\tau}\right) L \tag{7.4}$$

Avec n_2 l'indice non-linéaire, λ la longueur d'onde de pompe et f_{coh} une fonction de cohérence :

$$f_{coh} = \begin{cases} \frac{L_{coh}}{L} & si\ L_{coh} < L \\ 1 & si\ L_{coh} > L \end{cases} \tag{7.5}$$

L_{coh} représente la longueur de cohérence :

$$L_{coh} = \frac{2\pi}{\beta_2 (2\pi BW)^2} \tag{7.6}$$

Le rapport du gain Kerr effectif sur le gain net Raman est ainsi tracé en fonction de la puissance et de la durée des impulsions de pompe dans la *Figure 85* :

Licence CC BY-NC-ND 3.0

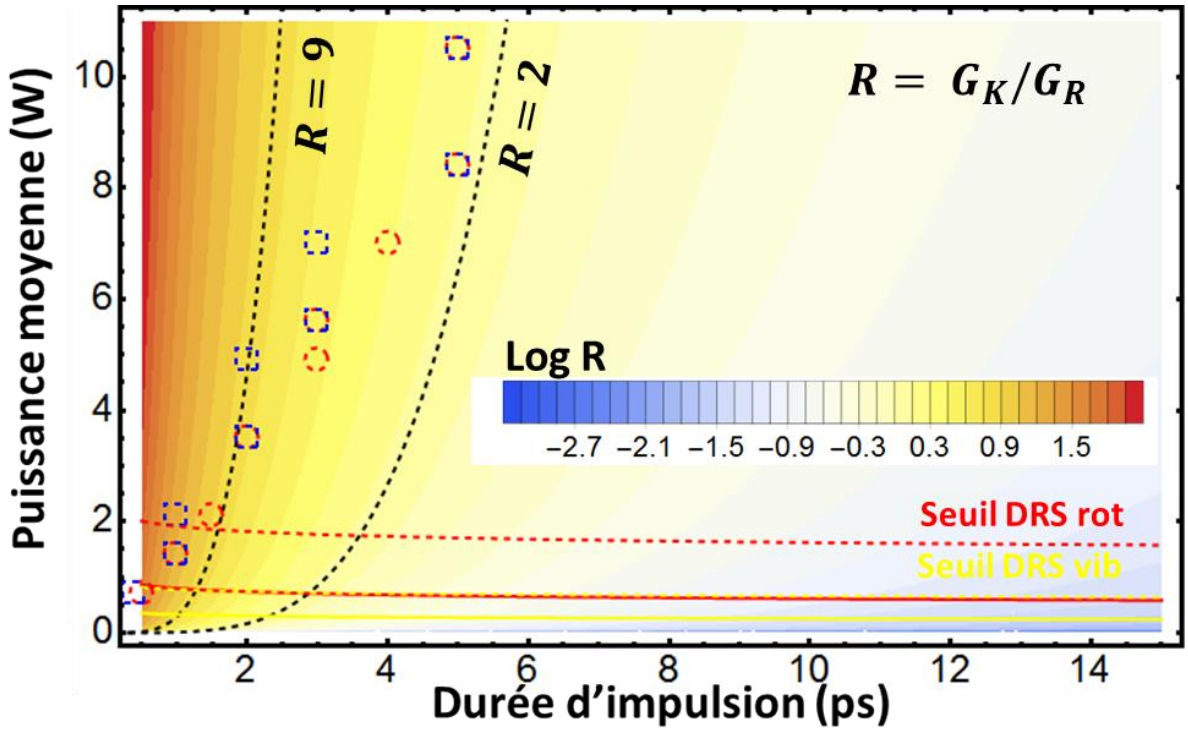


Figure 85 : Graphique montrant l'évolution de log R (rapport du gain Kerr sur le gain Raman) en fonction des paramètres d'entrée que sont la durée et la puissance des impulsions de pompe. Les zones en bleu et blanc représentent la domination de l'effet Raman où un peigne de fréquence sera généré, et celles en jaune et orange la domination de l'effet Kerr conduisant à la génération d'un supercontinuum.

Ce graphique montre que le ratio augmente vers les courtes durées d'impulsion, donc le gain Kerr prend le dessus sur le gain Raman. Ce qui est consistant avec ce qui est observé expérimentalement. Cependant ici, le gain Kerr est légèrement sous-estimé car la contribution de l'effet Raman dans le gain Kerr n'a pas été prise en compte. C'est pourquoi sur cette figure l'effet Kerr ne domine vraiment que lorsque le ratio est d'environ 9. Cela permet tout de même de se rendre compte que si le spectre désiré est un supercontinuum, alors il faut que le ratio entre gain Kerr et gain Raman soit au moins de 2.

Les courbes en pointillés présentant le rapport entre les gains Kerr et Raman sont accompagnées de points représentés par des cercles bleus et rouges. Ces points correspondent à des valeurs expérimentales représentant le seuil d'apparition de l'effet Kerr. Ce seuil est mesuré de la manière suivante : on considère la pompe (1030 nm) et son premier Stokes rotationnel (1096 nm), lorsque l'écart en puissance entre la pompe et la longueur d'onde intermédiaire (1063 nm) est de 50 dBm, alors la

Licence CC BY-NC-ND 3.0

puissance injectée dans la fibre correspondant à la mesure de ce spectre est considérée comme valeur de seuil pour l'apparition de l'effet Kerr. Ensuite, plus la puissance dans la fibre augmente, plus cet écart diminue et plus le spectre s'éloigne d'un peigne de fréquences pour ressembler à un supercontinuum. La durée d'impulsion est aussi prise en compte. Ainsi il est possible de tracer les points rouges et bleus pour différents couples de valeur puissance/durée d'impulsion. Pour comparaison, les points rouges représentent le seuil d'apparition de l'effet Kerr entre la pompe et son premier Stokes rotationnel, et les points bleus représentent la même chose mais entre le premier Stokes vibrationnel à 1800 nm et son premier Stokes rotationnel.

VII.6. Résumé

En résumé, ce chapitre présente la génération d'une source laser dont le spectre s'étend sur plusieurs octaves. La structure même de ce spectre est contrôlable en fonction de divers paramètres d'entrée (ici, la puissance et la durée des impulsions de pompe). En effet, le type de spectre généré dépend du type d'effet dominant entre l'effet Raman et l'effet Kerr dans la fibre creuse remplie de gaz d'hydrogène. Un modèle numérique basé sur l'étude des gains Kerr et Raman présente quel type de spectre est obtenu en fonction des paramètres d'entrée précédemment cités. Ce modèle permet de confirmer la génération d'un peigne de fréquences dans le cas de l'utilisation d'impulsions longues, ou d'un supercontinuum dans le cas de l'utilisation d'impulsions courtes. Il permet aussi de dimensionner la source et déterminer à l'avance quel type de spectre est attendu en fonction du couple de conditions initiales puissance/durée d'impulsion choisi.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

CHAPITRE VIII

Synthèse d'ondes optiques par voie de diffusion Raman stimulée transitoire

Le chapitre reporte, pour la première fois, sur la génération de trois types de trains d'impulsions à partir d'une fibre creuse remplie de gaz d'hydrogène moléculaire à haute pression, et pompée par des impulsions d'une durée de 10 ps. En fonction de la polarisation du faisceau de pompe, les trains générés peuvent consister en des impulsions espacées de 57 fs, ou de 8 fs ou d'une combinaison des deux, correspondant respectivement à la période de rotation et de vibration de la molécule d'hydrogène. La plus petite durée d'impulsion mesurée est de 5 fs et est limitée par la résolution de l'instrument de mesure. Ces formes d'ondes optiques résultent d'un peigne spectral Raman dont la génération est initiée du bruit quantique, et dont la cohérence est assurée par un régime fortement transitoire certifiant l'amplification d'un et un seul paquet d'onde Stokes. Ce résultat pose un jalon supplémentaire vers la synthétisation de trains d'impulsions ultra-courtes et la réalisation de générateurs de fonctions optiques, élément essentiel à la réalisation d'un processeur optique dans le contexte de l'avènement de l'ordinateur optique.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

VIII.1. Les différentes techniques de synthèses d'ondes optiques

Depuis plusieurs dizaines d'années de nombreuses techniques ont été développées en vue de réaliser une synthèse d'ondes optiques. Nous allons les évoquer ici brièvement, et ainsi y inscrire nos travaux sur la diffusion Raman stimulée dans une fibre creuse en régime transitoire.

VIII.1.1. Génération d'harmonique d'ordre élevé

La génération d'harmonique d'ordre élevé est un effet non-linéaire observé lorsqu'un milieu actif (généralement un gaz à faible pression) est pompé par un faisceau suffisamment intense (de l'ordre de 10^{14} W/cm^2 ou plus). L'amplitude de son champ électrique doit être comparable à celle du champ électrique d'un atome. De cette manière il est possible d'arracher des électrons aux atomes du milieu par effet tunnel. Ils sont ensuite accélérés par le champ du laser et peuvent revenir les impacter. Ces collisions sont sources de photons très énergétiques. De nombreuses harmoniques impaires du laser de pompe peuvent ainsi être générées allant de l'UV jusqu'aux rayons X. La première observation de ce phénomène a été réalisée en 1977 par Burnett en utilisant un laser CO_2 pour exciter un plasma [128]. La génération d'harmonique d'ordre élevé dans un gaz a été rapportée une dizaine d'années plus tard par McPherson [121] ainsi que Ferray [122]. Les spectres de lumière générés par ce processus sont particulièrement reconnaissables. En effet, bien que l'intensité des lignes spectrales décroisse en s'éloignant de la ligne de pompe, celle-ci peut former un plateau s'étalant sur plusieurs harmoniques (*Figure 86*).

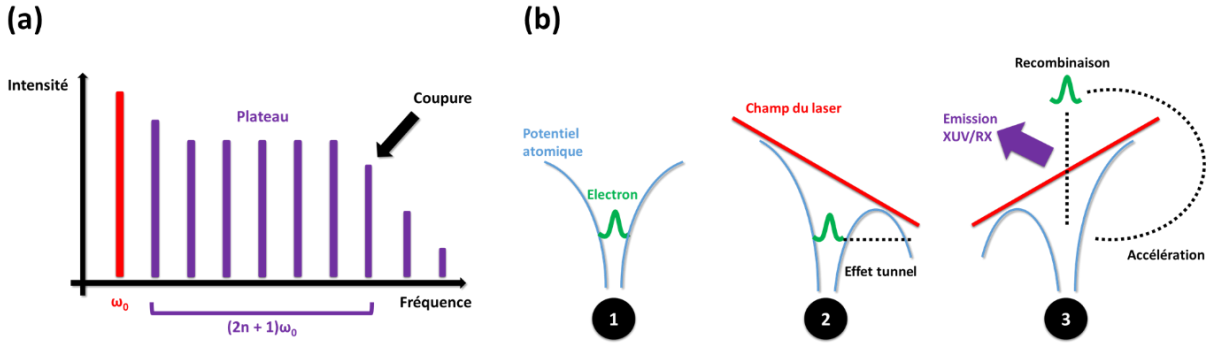


Figure 86 : (a) Spectre schématique caractéristique obtenu par HHG, reconnaissable par son plateau, (b) modèle en 3 étapes : 1) l'électron est dans son potentiel atomique, 2) le laser influe sur le potentiel atomique permettant à l'électron de fuir par effet tunnel, 3) il est accéléré par le champ du laser et émet une radiation dans l'UV ou les rayons X par recombinaison avec un atome du milieu.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Bien que cette technique permette de générer des peignes sur un large spectre, elle souffre de plusieurs inconvénients comme sa faible efficacité de conversion (typiquement de 10^{-6}) et la nécessité d'utiliser des impulsions de pompe à la fois courtes et puissantes. Aussi, le spectre générée est centré au niveau « soft-X ray » ; une gamme spectrale difficile à exploiter. Il a donc fallu se tourner vers d'autres mécanismes pour réaliser une synthèse d'ondes optiques.

VIII.1.2. Raman impulsionnel

Parmi les autres techniques utilisant des lasers impulsionnels, il en existe plusieurs exploitant l'effet Raman, notamment afin de bénéficier à la fois d'une bonne efficacité de conversion et d'un seuil d'apparition des effets non-linéaires relativement bas. La première d'entre-elles est la méthode Raman impulsionnelle, proposée par Nazarkin [129]. Il s'agissait d'exciter un milieu à l'aide d'une impulsion femtoseconde intense de durée inférieure à T_2 et de spectre au moins aussi large que la transition Raman, l'indice de réfraction du milieu étant ainsi modulé par les vibrations moléculaires engendrées. Une seconde impulsion, de faible intensité, subit alors une modulation de phase à la fréquence de transition Raman en traversant le milieu. La performance majeure de cette technique a été de générer des impulsions de 3,8 fs dans l'UV [130], mais son principal inconvénient est une très faible cohérence, et la difficulté de séparer le faisceau de l'impulsion pompe de celui de l'impulsion sonde à moduler en phase.

VIII.1.3. Modulation moléculaire

La modulation moléculaire, au contraire des méthodes décrites ci-dessus, nécessite des sources émettant des impulsions de durée supérieure à T_2. Elle a été pour la première fois proposée et démontrée par Harris [131] à l'aide de deux puissants lasers de pompe nanoseconde dont le décalage en fréquence est proche du décalage de la transition Raman. Il est ainsi possible de générer de manière adiabatique des peignes de fréquences cohérents [132]. Bien que la modulation moléculaire soit très prometteuse, elle ne souffre pas moins de certains points faibles elle aussi. En effet, elle nécessite l'utilisation de deux lasers puissants (de l'ordre du GW) et potentiellement encombrants, sans compter que la géométrie en espace libre limite la longueur d'interaction entre le gaz et la lumière.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

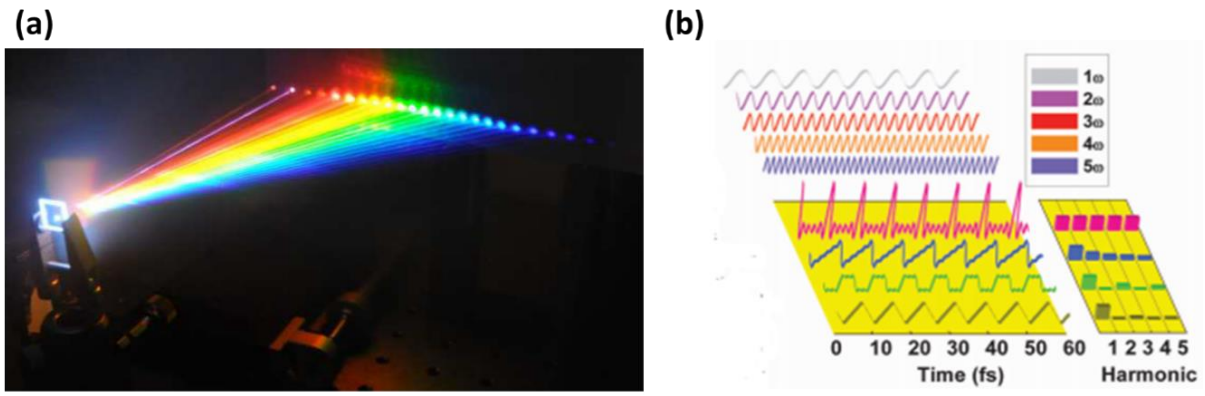


Figure 87 : (a) Peigne généré par modulation moléculaire avec des impulsions femtosecondes [133], *(b) et démonstration de synthèse d'ondes* [134]

VIII.1.4. Diffusion Raman stimulée en régime transitoire dans les fibres creuses

La dernière méthode, qui est celle utilisée dans le cadre de ces travaux de thèse, est la méthode dite « transitoire ». Elle nécessite en effet l'utilisation d'impulsions de durée comparable à T_2 afin de se placer dans le régime transitoire de la diffusion Raman stimulée. Combiné au développement des fibres creuses il a ainsi été possible de générer des peignes sur des spectres d'abord relativement étroits en utilisant une fibre PBG [14], puis de gagner en largeur spectrale en utilisant une fibre *Kagomé* [18]. La cohérence intra-impulsionnelle de ce type de peigne a été démontrée quelques années plus tard [25]. L'utilisation de fibres creuses est un atout pour cette technique car le seuil d'apparition des effets non-linéaires tel que l'effet Raman utilisé ici est fortement diminué. Il n'est pas donc pas nécessaire d'utiliser des lasers de pompe puissants. Les fibres apportent également une certaine tolérance sur la durée des impulsions de pompe nécessaire pour se placer en régime transitoire. Comme nous l'avons vu dans le chapitre II, les fibres creuses apportent un gain net Raman fort, étendant ce régime aux impulsions nanosecondes. Aussi, nous avons vu que cette performance de conversion spectrale a été étendue à des impulsions sub-picoseconde (voir chapitres VI et VII). L'extension de la DRS transitoire à des impulsions courtes est très importante dans le « filtrage temporel » des modes spatio-temporels du champ Stokes à amplifier depuis les fluctuations du vide pour s'assurer une forte cohérence du spectre généré [18], [25].

Licence CC BY-NC-ND 3.0

En résumé, en plus de simplifier la réalisation d'une synthèse d'ondes optiques par l'usage d'unique laser de pompe, relativement modeste dans ses caractéristiques, et d'une fibre creuse remplie de gaz [135], les résultats présentés dans les chapitres précédents suppose une meilleure cohérence que celle rapportée dans [18], [25] avec un laser nanoseconde.

VIII.1.5. Autres techniques en régime continu

Jusqu'ici nous nous sommes concentrés sur les méthodes utilisant des lasers impulsionnels, mais il existe aussi des moyens alternatifs de réaliser la synthèse d'ondes optiques à partir de sources continues. En photonique intégrée, il est par exemple possible de générer des peignes de fréquences en exploitant l'effet Kerr optique dans des micro-résonateurs [124]. Le problème dans ce cas est l'usure de la structure, celle-ci n'est efficace que pour quelques utilisations avant d'être trop endommagée. La puissance, typiquement largement moins que 1 W, est donc naturellement un facteur limitant. La largeur spectrale des peignes ainsi générés est également relativement étroite. Ceci limite la synthèse d'onde à des formes restreintes.

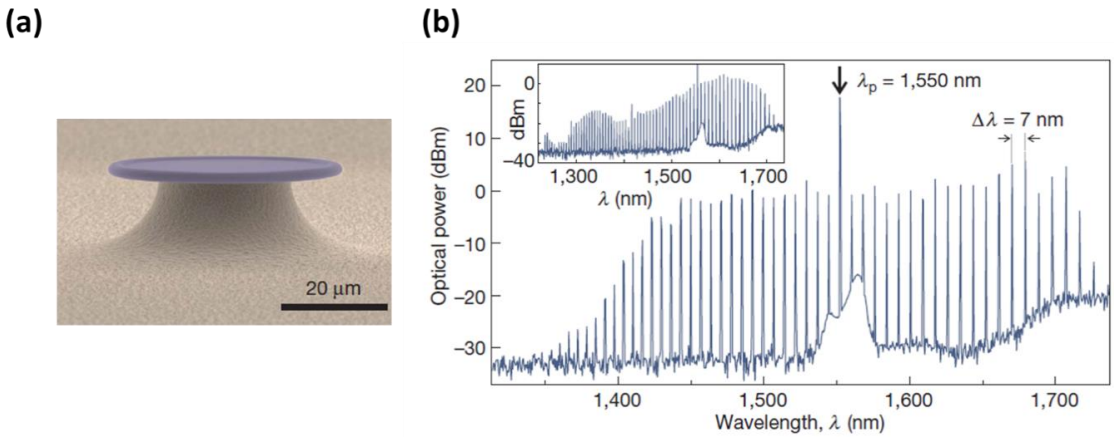


Figure 88 : (a) Exemple de micro-résonateur, (b) et le type de peignes de fréquences qu'il est capable de produire [124].

En régime continu, tout comme c'est le cas en régime impulsionnel précédemment évoqué, l'effet Raman est utilisé. Diverses méthodes, utilisant une cavité Fabry-Pérot [136]–[138] ou une fibre creuse sont étudiées. La première est celle à partir de laquelle a été observé pour la première fois la diffusion Raman stimulé avec un laser de pompe continu. Mais elle pâtit, entre autres, d'une largeur de bande limitée par la finesse de

Licence CC BY-NC-ND 3.0

la cavité, cette dernière devenant insuffisante au fur et à mesure que l'on cherche à faire résonner des ordres Stokes et Anti-Stokes supérieurs. L'efficacité de conversion est également limitée. Un moyen d'obtenir une efficacité à la limite quantique et d'obtenir un spectre large est d'utiliser des fibres creuses, ce qui est un des objectifs de notre groupe de recherche car, bien que cette thèse soit axée sur des sources impulsionnelles, des travaux similaires ont été (et le sont toujours actuellement) menés en parallèle avec des sources continues.

Enfin, des travaux au sein de notre groupe explorent la génération de peignes à base de DRS en pompant avec un laser [17], [139]. Les présents travaux s'inscrivent dans cet objectif lointain qui est la synthèse d'ondes optiques par le biais de peignes Raman excité par une pompe continue.

VIII.2. Résultats précédents

La synthèse d'ondes optiques par DRS dans des fibres creuses remplies de gaz a déjà été démontrée par le passé [87], [140]. La *Figure 89* présente le montage optique qui était alors utilisé.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

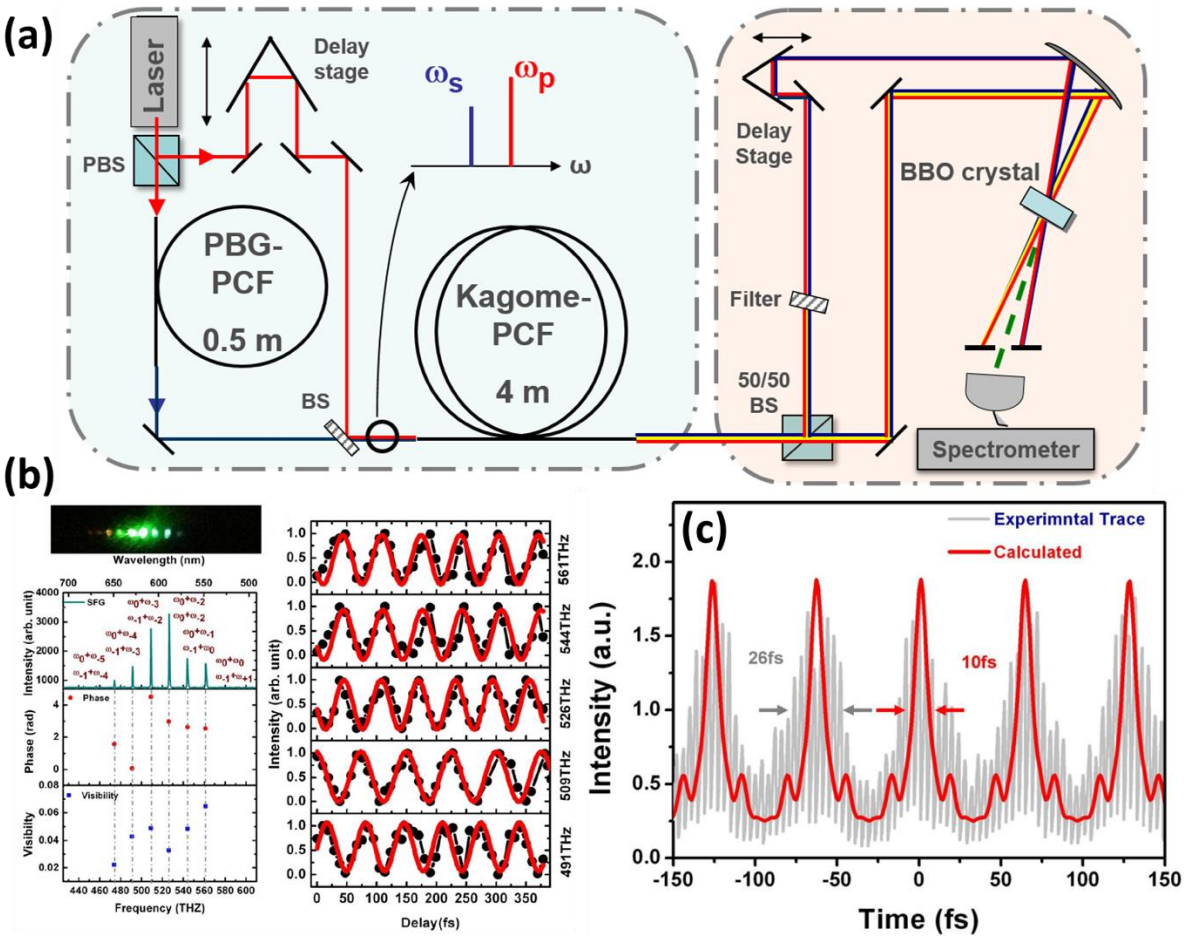


Figure 89 : (a) Schéma expérimental de la première synthèse d'ondes par effet Raman stimulé dans une fibre creuse remplie de gaz. (b) Peigne SFG dispersé sur un écran noir pour distinguer les différentes composantes avec le spectre mesuré correspondant, ainsi que la phase relative de chaque ligne et le contraste. (c) Trace d'autocorrélation expérimentale du train d'impulsions fs. (en rouge) profil reconstruit numériquement basé sur la phase du peigne et sur la supposition que toutes les lignes partagent la même intensité [87].

Le montage était composé de deux étages, la première consistait en la génération d'un peigne de fréquences (*Figure 89(a)*) et la seconde à un interféromètre permettant de démontrer la cohérence mutuelle des différentes composantes spectrales du peigne en se basant sur un processus de SFG. Enfin, un autocorrélateur permettait de caractériser le train d'impulsions ultra-courtes généré en conséquence.

Dans le premier étage, la génération du peigne est elle-même divisée en deux parties. La première consistait en la génération du premier Stokes rotationnel à 1135 nm en pompant à 1064 nm une fibre à BIP remplie d'hydrogène. Ce Stokes servait à piloter la génération du peigne de fréquences dans une fibre *Kagomé* à large bande de transmission qui avait lieu dans la partie suivante de ce premier étage. Le laser de

Licence CC BY-NC-ND 3.0

pompe est un microchip émettant à 1064 nm des impulsions de durée égale à 400 ps. Leur énergie est de 90 µJ et est partagée entre deux chemins optiques différents. Environ 12 µJ sont envoyés dans la fibre à BIP de 50 cm de long avec une efficacité de couplage de 75 %. Son diamètre est de 7,5 µm et sa bande de transmission s'étale de 1000 à 1200 nm avec des pertes à 75 dB/km à 1064 nm. C'est ici que le premier Stokes rotationnel est généré, par DRS dans le régime transitoire [15]. Ceci est réalisé de manière favorable grâce à une bande de transmission étroite et centrée autour de la pompe et du Stokes. La seconde partie du faisceau, d'énergie environ égale à 75 µJ, est envoyée en parallèle directement dans la seconde fibre (la fibre *Kagomé* déjà évoquée ci-dessus) tout en étant recombinée spatialement et temporellement avec le faisceau du premier Stokes généré dans la fibre à BIP. La fibre [59], [141] a ici une longueur de 4 mètres et un diamètre interne de 34 µm. Sa bande de transmission va de 700 à 1700 nm, avec des pertes pouvant atteindre 250 dB/km. Les deux fibres sont remplies d'hydrogène à une pression de 10 bars et leurs chambres sont reliées pour obtenir une pression uniforme.

Le contenu spectro-temporel d'une onde Stokes émise spontanément par un milieu Raman peut être amplifié, en régime transitoire, à partir d'un mode spatio-temporel provenant du bruit quantique jusqu'au niveau macroscopique en une impulsion à durée limitée par transformée de Fourier ayant une phase bien déterminée [25], [40], [142]–[144]. L'expression du champ Stokes E_S à la sortie du milieu est déterminée à partir de l'équation (2.63) décrite dans le chapitre II pour devenir :

$$E_S(\rho, L, \tau) = \alpha_P^* E_P(r, z, t) p(\Delta\beta, z, t) e^{i\theta} + \varepsilon \tag{8.1}$$

avec une phase propre θ et une enveloppe déterminée par la polarisation moléculaire et le champ du laser. ε représente un terme aléatoire résiduel provenant de l'amplification d'autres modes spatio-temporels.

Une fois l'impulsion du Stokes générée, son champ E_S ainsi que celui de la pompe E_L pilotent la cohérence moléculaire Q du milieu Raman constitué par la seconde fibre où a lieu la génération du peigne via la relation :

Licence CC BY-NC-ND 3.0

$$\partial_\tau Q \propto E_L^* E_S \tag{8.2}$$

Celle-ci module à son tour les champs de la pompe et du Stokes à la fréquence Raman, résultant en un champ électrique total (pompe et totalité des lignes Raman) de la forme :

$$E = \sum_{n=-N}^{N} E_N \exp[-i(\omega_P + n\Omega_R)t + i\beta_n z + in\theta] \tag{8.3}$$

avec n les ordres Stokes (entiers négatifs) et Anti-Stokes (entiers positifs) et β_n la constante de propagation pour la ligne Raman d'ordre n. On constate que la phase θ est disséminée à travers toutes les composantes spectrales du peigne. Cette propriété est cruciale en vue de la synthèse de train d'impulsions ultra-courtes, nécessitant la génération de larges peignes de fréquences dont les composantes sont en phase.

L'étape suivante du montage optique consiste justement en la mesure de cohérence mutuelle entre les différentes composantes spectrales du peigne, via un processus de génération de fréquence somme (SFG) [145]. Le peigne, une fois généré dans la fibre *Kagomé*, est ensuite séparé en deux faisceaux. Une partie passe à travers un filtre passe-bande pour ne garder que la pompe et le premier Stokes. Ceux-ci passent ensuite par un délai motorisé (permettant un contrôle fin). Ce faisceau est alors focalisé dans un cristal de BBO (β-borate de baryum) de 300 µm d'épaisseur pour réaliser un mélange de fréquences avec l'autre partie du faisceau provenant directement de la fibre *Kagomé*. Un nouveau peigne de fréquences est issu de la génération de fréquence somme ainsi réalisée entre les deux faisceaux focalisés dans le cristal non-linéaire. L'intensité et la phase de chaque composante du peigne sont enregistrées. La *Figure 89(b)* montre la lumière du peigne de SFG dispersée sur un écran noir et le spectre correspondant. La phase et le contraste sont déduits de l'intensité de chaque ligne spectrale en fonction du délai imposé entre les deux branches de l'interféromètre. La période des oscillations mesurées est de 17,6 THz sur un délai d'environ 400 fs. Cela prouve la cohérence mutuelle des différentes lignes Raman du peigne de fréquences généré dans la première étape du montage.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Cette cohérence mutuelle concerne cependant une seule et unique impulsion, et ne se « propage » pas d'une impulsion à une autre [18], [25], [142]. Le champ d'une ligne Raman donnée d'ordre n possède une amplitude A_n et une phase ϕ_n qui lui sont propres :

$$E_n(t) = A_n e^{i\omega_n t} e^{i\phi_n} \tag{8.4}$$

La fréquence de chaque ligne étant $\omega_n = \omega_0 \pm n\Omega_R$, avec Ω_R correspondant ici au décalage Raman rotationnel dans l'hydrogène. $\phi_n = \beta_n z + n\theta$ où θ est la phase intra-pulse du Stokes amplifié depuis le bruit quantique. Dans le processus de SFG, chaque composante m du peigne résultant est le fruit du mélange de deux composantes du peigne d'origine. Certaines proviennent du mélange de la pompe avec les différentes lignes Raman et d'autres du mélange du premier Stokes avec ces dernières. L'intensité du signal généré par SFG est donc :

$$\begin{aligned} \langle I_m(\tau)\rangle \propto\ & \langle \left| A_0 A_m e^{i(\Omega_R\tau + \phi_0 - \phi_1 + \phi_m - \phi_{m+1})} + A_{-1}A_{m+1} \right|^2 \rangle \\ & = \langle A_0^2 A_m^2 + A_{-1}^2 A_{m+1}^2 + 2A_0 A_m A_{-1} A_{m+1} \cos(\Omega_R\tau + \phi_0 - \phi_{-1} \\ & + \phi_m - \phi_{m+1}) \rangle \end{aligned} \tag{8.5}$$

On rappelle que la phase ϕ_n d'une ligne Raman d'ordre n est égale à $\beta_n z + n\theta$. Nous obtenons ainsi $\Delta\phi_m = \phi_0 - \phi_{-1} + \phi_m - \phi_{m+1} = (\beta_0 - \beta_{-1} + \beta_m - \beta_{m+1})z$. Le terme de phase aléatoire θ est ainsi absent. Ainsi, l'intensité moyenne d'une ligne m provenant du spectre de SFG :

$$\langle I_m(\tau)\rangle \propto (1 + V_m \cos(\Omega_R\tau + \Delta\phi_m)) \tag{8.6}$$

est un signal modulé à la fréquence Raman Ω_R, ayant une phase et une visibilité déterminées par la dispersion de la fibre et la puissance des différentes lignes mises en jeu lors du mélange de fréquences. La phase ϕ_n de chaque ligne du peigne valant $\beta_n z + n\theta + \varepsilon_n$, la phase mesurée pour le signal SFG est :

$$\Delta\phi_m = (\beta_0 - \beta_{-1} + \beta_m - \beta_{m+1})z + \varepsilon \tag{8.7}$$

où ε est la somme décorrélée de la part aléatoire de la phase des différentes lignes du peigne. Puisque les résultats montrent que la cohérence est bien présente, il en a été

Licence CC BY-NC-ND 3.0

déduit que le bruit de phase induit par la dispersion de la fibre était négligeable d'une impulsion à l'autre. Le bruit de phase provenant des TSM d'ordres supérieurs ε est suffisamment faible pour affirmer que l'amplification est bien celle d'un TSM dominant, et le ratio par rapport aux autres TSM est élevé. En conséquence, $\Delta\phi_m = 0$.

Finalement, un autocorrélateur a permis la mesure et la caractérisation d'un train d'impulsions ultra-courtes. Celui-ci est la conséquence de la génération d'un peigne de fréquence Raman ultra-large par DRS dans le régime transitoire. La *Figure 89(c)* montre le train d'impulsions en question.

La période entre les impulsions est de 57 fs, ce qui correspond à la séparation en fréquence entre les différentes lignes du peigne (c'est-à-dire 17,6 THz, la fréquence de résonance Raman rotationnelle dans l'hydrogène). La durée des impulsions est estimée à 26 fs, bien que dans des conditions expérimentales idéales celle-ci pourrait être réduite à une dizaine de femtosecondes. Il est à noter qu'une telle trace a pu être mesurée sur une période de plusieurs heures, démontrant ainsi la stabilité du montage malgré les hautes énergies mises en jeu et la gigue temporelle du laser de pompe.

Nous proposons ici une nouvelle méthode pour synthétiser un train d'impulsions ultra-courtes par effet Raman dans une fibre creuse. La source laser, en particulier, est très différente de celle du montage que nous venons juste de décrire. Les durées d'impulsions accessibles sont bien plus courtes (domaines fs et ps) et la puissance moyenne bien plus élevée. Ainsi, nous n'utiliserons pas de « seed » basé sur l'ajout d'une fibre à BIP pour bénéficier d'un fort gain.

VIII.3. Génération d'un peigne de fréquence ultra-large et cohérent par diffusion Raman stimulée à partir d'impulsions ultra-courtes

Le montage optique utilisé dans cette section (*Figure 90*) est proche de celui décrit dans le chapitre précédent, et utilise la même fibre. Seule la dernière partie concernant la détection est modifiée. En effet, la différence ici est qu'un dispositif FROG (Frequency-Resolved Optical Gating) (FC-700 custom, Femtoeasy) a été implémenté afin d'améliorer la détection du train d'impulsions femtosecondes synthétisé par effet Raman stimulé dans la fibre creuse. L'autre caractéristique de ce dispositif expérimental est la présence d'un filtre acousto-optique dispersif programmable

Licence CC BY-NC-ND 3.0

(AOPDF) (Dazzler, Fastlite) pour contrôler la phase et l'amplitude des composants du peigne généré, et en retour synthétiser des formes d'ondes arbitraires. Cependant, les résultats présentés ici ont été collectés sans l'activation de ce filtre.

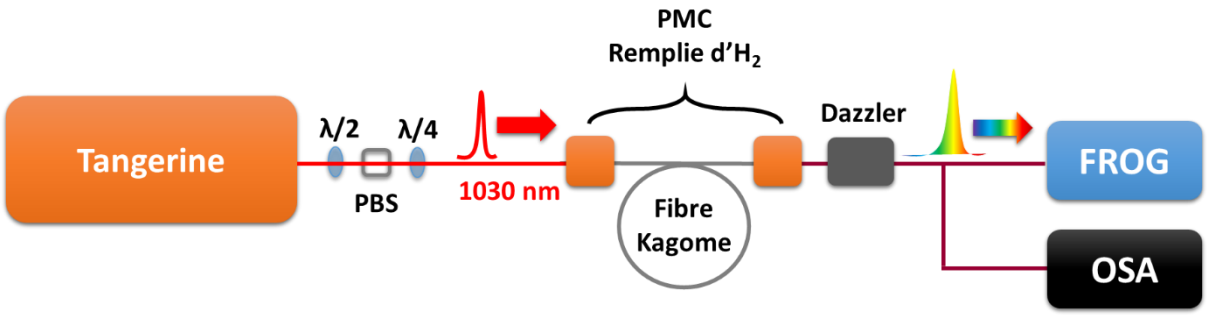


Figure 90 : Schéma du montage expérimental de la synthèse d'ondes optiques, avec notamment le FROG pour la détection du train d'impulsions femtosecondes.

Tout comme dans le chapitre précédent, nous sommes ici capables de générer un peigne de fréquences Raman sur 3 octaves, de l'UV à l'infrarouge, par diffusion Raman stimulée dans la fibre creuse remplie d'hydrogène avec des impulsions très courtes. La *Figure 91* présente un exemple typique obtenu avec des impulsions de 15 W de puissance moyenne et 10 ps de durée. Le gain stationnaire G_{ss} correspondant à ces conditions de pompage est donc supérieur à 60000 pour excitation de la transition vibrationnelle et de > 15000 pour la transition rotationnelle. Par conséquent le produit $G_{ss}\Gamma\tau$ reste supérieur à 600 et à 150 pour la transition vibrationnelle et rotationnelle respectivement. En utilisant les résultats de la Figure 21 (voir chapitre II), nous pouvons déduire que l'amplitude du second mode spatio-temporel du champ Stokes vibrationnel émis spontanément est seulement 5×10^{-5} l'amplitude du mode dominant. Ceci assure que le champ du Stokes vibrationnel amplifié est un paquet d'onde avec un seul vecteur d'onde et une seule phase déterministe (i.e. état quantique pur). En retour, le peigne Raman induit devait montrer une forte cohérence (i.e. les composantes spectrales sont en fort accord de phase). Pour la transition rotationnelle, le calcul du ratio entre les deux modes spatio-temporels les plus dominants donne 0.1. Même si ce ratio est beaucoup plus faible que celui trouvé pour le cas vibrationnel, il reste suffisamment faible pour une amplification « monomodale » dans la DRS des lignes rotationnelles. En conclusion, nous pouvons déduire que ce spectre devrait être

Licence CC BY-NC-ND 3.0

cohérent est donc susceptible d'être temporellement synthétisable. Le paragraphe suivant explore ce point.

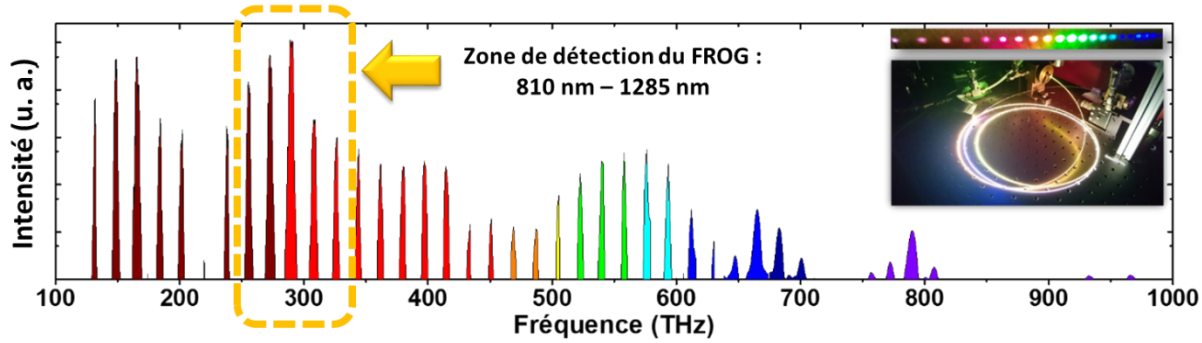


Figure 91 : Exemple de peigne Raman ultra-large généré par diffusion Raman stimulée dans une fibre à cœur creux remplie d'hydrogène. Celui-ci s'étend sur 3 octaves. La zone entourée de pointillés jaunes représente la zone de travail du FROG. En insert en haut à droite : fibre rayonnant la lumière blanche et spectre correspondant dispersé par un réseau et visible grâce à un écran noir.

VIII.4. Profil temporel du peigne de fréquences : synthèse d'ondes

Afin de corroborer la cohérence des peignes Raman générés, nous procédons à mesurer les profiles temporels associés. Le dispositif pour cette mesure (FROG) est cependant limité à une gamme de longueurs d'onde qui s'étale seulement de 810 nm à 1285 nm. Par conséquent, nous n'utiliserons qu'une partie du peigne de fréquences généré pour la réalisation de la synthèse d'ondes optiques. Au niveau spectral, il ne détecte ainsi que la pompe et les premiers Stokes et Anti-Stokes rotationnels qui l'entourent.

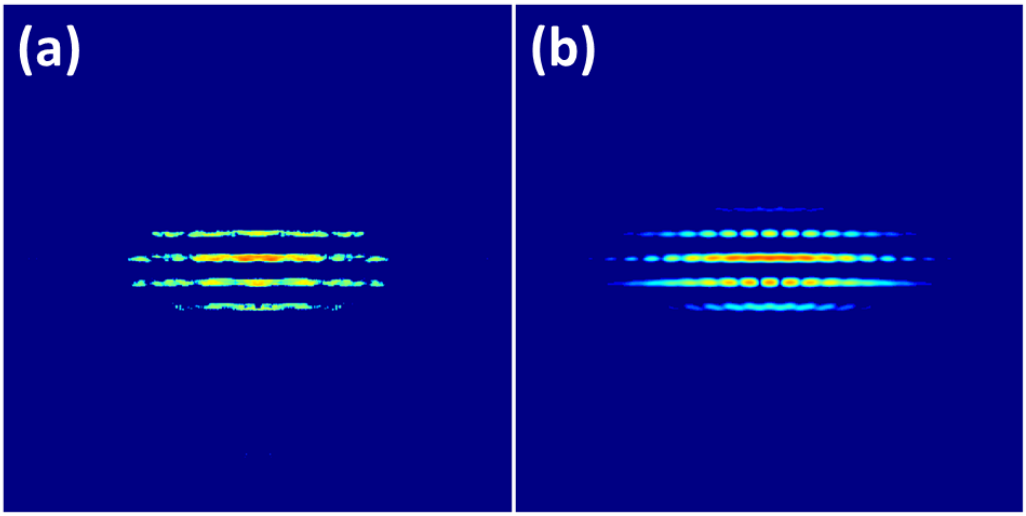


Figure 92 : Exemple typique de spectrogramme FROG mesuré (a) et retrouvé (b).

Licence CC BY-NC-ND 3.0

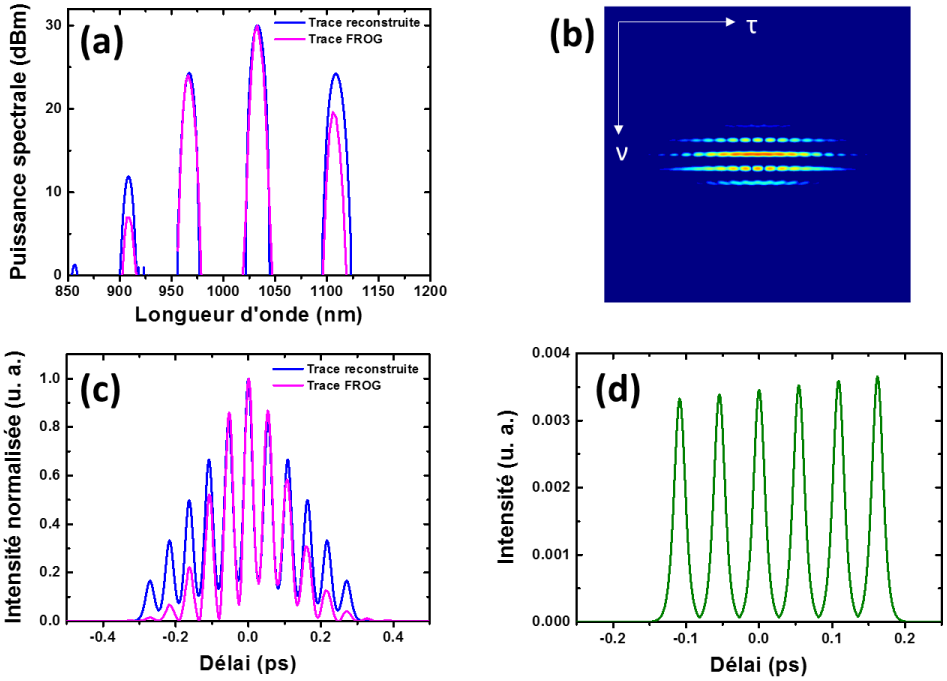


Figure 93 : (a) Spectre en sortie de fibre reconstruit par le FROG (magenta) et reconstruit par notre programme (bleu), (b) spectrogramme FROG, (c) trace d'autocorrélation du FROG (magenta) et trace d'autocorrélation reconstruite par notre programme (bleu), (d) trace temporelle donnée par notre programme et représentant le train d'impulsion qu'il est supposé d'obtenir dans ces conditions.

Les *Figure 92* et *Figure 93* présentent des résultats typiques des mesures spectro-temporelles. La *Figure 92* montre un spectrogramme mesuré (*Figure 92(a)*) et retrouvé (*Figure 92(b)*). On retrouve dans cet exemple les composantes spectrales discrètes détectées (lignes horizontales), ainsi que leur étendue temporelle. La *Figure 93* décline les mesures en montrant séparément le spectre détecté, la trace d'autocorrélation mesurée et le profile temporel reconstruit ainsi que le spectrogramme retrouvé. Dans cet exemple la durée des impulsions est de 10 ps et la puissance moyenne injectée dans le milieu Raman est de 8 W.

Les *Figure 93(a)* et *(b)*, montrent respectivement le spectre et le spectrogramme FROG mesurés. Nous pouvons voir justement les lignes Raman détectées dans cet exemple par le FROG. On observe quatre lignes : la pompe (1030 nm) accompagnée de part et d'autre par le premier Stokes rotationnel (1101 nm) et les deux premiers Anti-Stokes rotationnels (970 et 920 nm). La trace en magenta provient du FROG tandis que celle en bleu provient d'un programme réalisé par nos soins pour corroborer nos observations expérimentales. En *Figure 93(c)* se trouve la trace d'autocorrélation correspondant à ce spectre, le code couleur restant le même que pour le spectre. Un

Licence CC BY-NC-ND 3.0

train d'impulsions femtosecondes d'une durée d'environ 18 fs et d'une période de 57 fs est détecté. Cette période temporelle est la contrepartie de la période spectrale (ici 17,6 THz) des lignes du peigne Raman. Enfin, la *Figure 93(d)* présente le train d'impulsions reconstruit à partir des traces spectrales et temporelles bleues reconstruites par le programme. En superposant au mieux les traces bleues aux traces expérimentales magenta, on obtient les impulsions ultra-courtes présentées dans cette dernière figure.

Les sections suivantes vont ensuite montrer que ce train d'impulsions varie en fonction des conditions d'excitation du milieu Raman, en particulier la polarisation. Il convient de préciser ici que puisque nous utilisons ici une source laser impulsionnelle, le train d'impulsions ultra-courtes généré est circonscrit temporellement à l'enveloppe d'une impulsion plus large de durée plus ou moins proche de la durée des impulsions de pompe.

VIII.4.1. Structuration du spectre et du train d'impulsions par la polarisation

Des mesures de trains d'impulsions ultra-courtes ont été effectuées de manière plus systématique, en fonction de plusieurs paramètres sur lesquels il est possible de jouer comme la puissance, la durée des impulsions, ou bien encore la polarisation des impulsions de pompe. Ainsi, cette première section dédiée à la caractérisation du train dans diverses conditions commence avec le choix de la polarisation du faisceau de pompe injecté dans la fibre. Dans un premier temps celle-ci est linéaire. La *Figure 94* montre la trace d'autocorrélation ainsi que la trace temporelle résultant de la génération d'un peigne de fréquences Raman purement vibrationnel, généré justement à partir d'un faisceau de pompe polarisé linéairement. Le peigne Raman ainsi généré, dont une mesure effectuée à l'aide des analyseurs de spectre optique présentés dans les chapitres précédents est affichée en insert, voit ses lignes écartées de 125 THz. Cet écart est caractéristique de la première transition Raman vibrationnelle dans l'hydrogène (se référer à la section II.3 du chapitre II). Au niveau temporel, un tel peigne résulte en la génération d'un train d'impulsions ultra-courtes de période égale à 8 fs. La durée des impulsions est en dessous de la limite de 4 fs du FROG.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

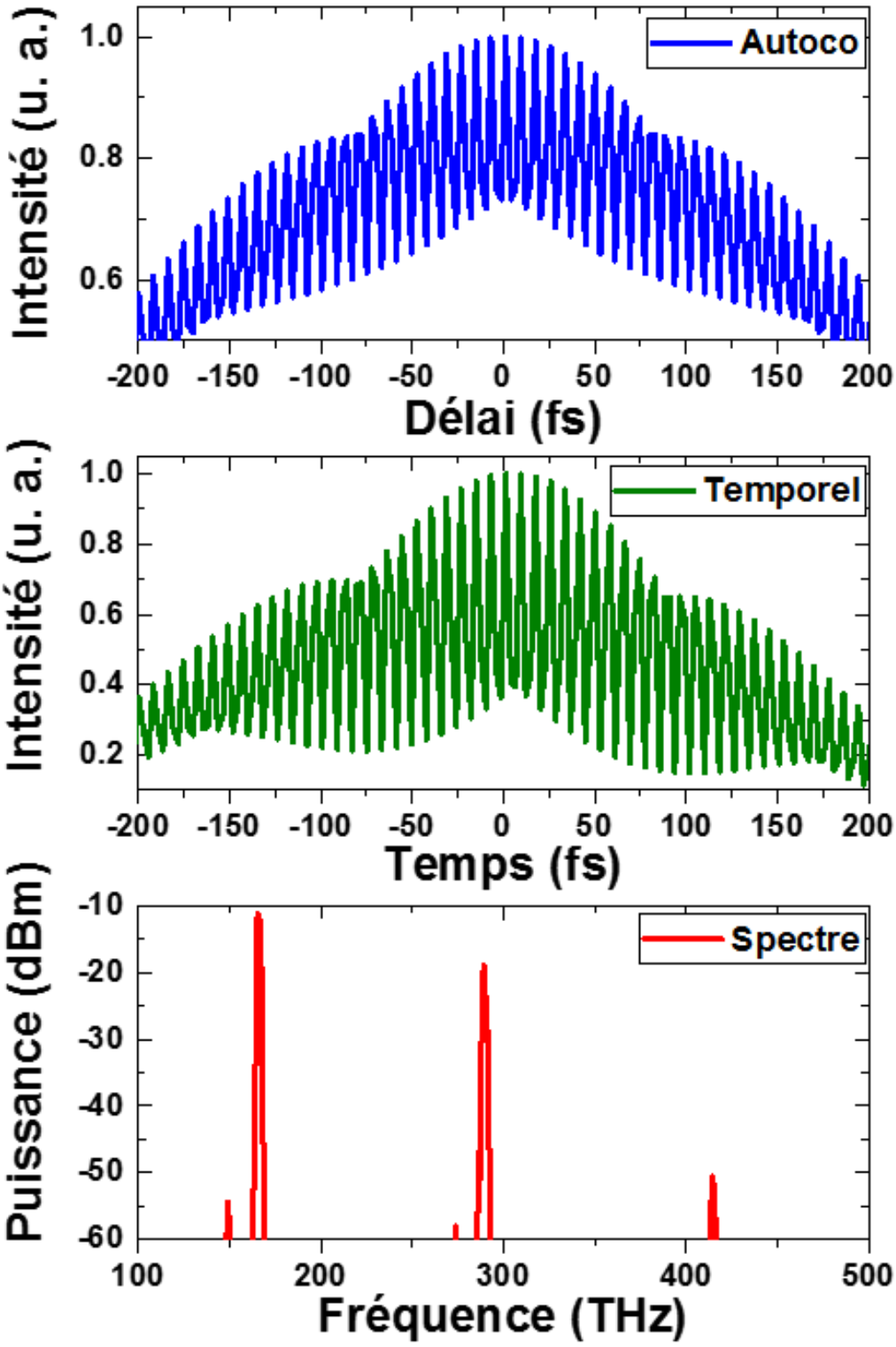


Figure 94 : Exemple de train d'impulsions femtosecondes obtenu dans le cas d'une polarisation linéaire du faisceau de pompe. En bleu : trace d'autoccorélation. En vert : trace temporelle. L'espacement inter-impulsions est de 8 fs. La durée des impulsions du train a été mesurée inférieure à 5 ps. En rouge : spectre correspondant en sortie de fibre possédant un espacement de 125 THz entre chaque ligne.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Une condition majeure est toutefois impérative : les différentes composantes spectrales doivent partager une relation de phase. En d'autres termes elles doivent être cohérentes. Cet aspect a déjà été évoqué dans le chapitre II et plus haut, et une figure de mérite déterminant l'efficacité du filtrage des modes spatio-temporels provenant du bruit quantique a été introduite. Pour le confort du lecteur nous rappelons son expression ci-dessous :

$$FOM = \frac{\Gamma\tau}{gz} \tag{8.8}$$

Plus faible est la valeur de FOM mieux est le filtrage spatio-temporel. Dans les conditions expérimentales de cette mesure, la durée d'impulsion de pompe τ est de 10 ps, le déphasage Γ de près de 1 GHz, et la puissance moyenne injectée dans la fibre est de 4,1 W. Le coefficient de gain Raman vibrationnel pour l'hydrogène sous une pression de 20 bars est d'environ 1 cm/GW. On rappelle également que la longueur de la fibre est de 3 mètres et que son rayon fait 29 µm. Dans l'exemple de la *Figure 94*, le gain net Raman est ainsi de 18 620 et le facteur de mérite de $5{,}37.10^{-7}$.

La *Figure 95* montre cette fois la trace d'autocorrélation et la trace temporelle résultant de la génération d'un peigne de fréquences Raman purement rotationnel, obtenu à l'aide d'un faisceau de pompe polarisé circulairement. L'espacement entre les lignes est ainsi de 17,6 THz, pour un équivalent de 57 fs d'espacement temporel entre les impulsions. Dans le cas de cette nouvelle figure, la mesure de la durée des impulsions donne une valeur de 18 fs.

Pour ce nouveau cas, la durée d'impulsion de pompe ainsi que le déphasage ne changent pas. Le coefficient de gain Raman rotationnel de l'hydrogène sous une pression de 20 bars est de 0,32 cm/GW. La puissance étant de 8,7 W le gain devient alors égal à 12 650, résultant en un facteur de mérite de $7{,}908.10^{-7}$.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

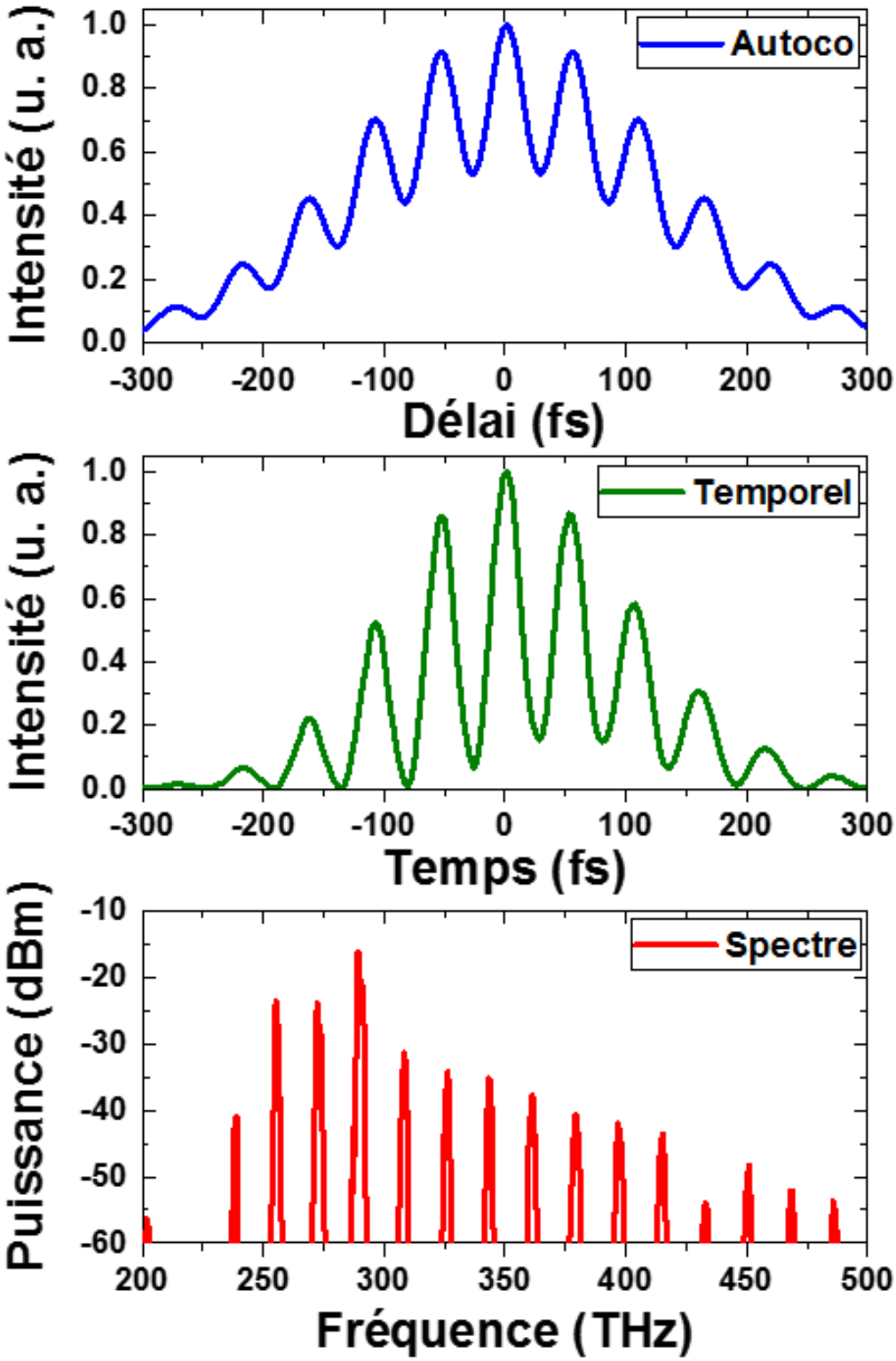


Figure 95 : Exemple de train d'impulsions femtosecondes obtenu dans le cas d'une polarisation circulaire du faisceau de pompe. En bleu : trace d'autoccorélation. En vert : trace temporelle. L'espacement inter-impulsions est de 57 fs. La durée des impulsions du train a été mesurée à 15 ps. En rouge : spectre correspondant en sortie de fibre possédant un espacement de 17,6 THz entre chaque ligne.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Nous venons ainsi de voir comment la polarisation permettait de transformer le train d'impulsions ultra-courtes, en termes de durée d'impulsions et de période de répétition notamment. Il est également important de déterminer comment ce train se comporte en modifiant d'autres paramètres comme la puissance des impulsions de pompe.

VIII.4.2. Structuration du spectre et du train d'impulsions par la puissance

Dans cette section nous reprenons les deux exemples de polarisation que nous venons de voir. Pour chacun d'eux la puissance varie afin d'étudier l'effet de ce paramètre sur la genèse du train d'impulsions. La *Figure 96* commence par présenter les spectrogrammes FROG mesurés à différentes puissances (de 1,7 à 8,7 W) dans le cas d'une polarisation circulaire. Seule la pompe est visible à basse puissance, mais au fur et à mesure que celle-ci augmente des lignes Raman rotationnelles apparaissent de part et d'autre de la pompe. Ce sont finalement 5 lignes (2 Anti-Stokes, la pompe et 2 Stokes) que le FROG détecte au total, pour une puissance de 8,7 W dans la fibre.

Jouer sur la puissance des impulsions de pompe a une incidence sur la visibilité (autrement dit le contraste) du train d'impulsions généré et mesuré en sortie de fibre. A ce propos, des traces d'autocorrélation et des traces temporelles ont été mesurées avec le FROG pour différentes puissances mais pour une même durée d'impulsion de pompe de 10 ps. Bien que la source laser soit capable d'émettre des impulsions d'une durée accordable entre 10 ps et 250 fs, le choix a été fait ici d'utiliser des impulsions de 10 ps car nous avons également vu dans le chapitre II (section II.5) que plus le produit gain/durée d'impulsion était élevé, plus un mode dominait par rapport aux autres. Il convient donc ici d'utiliser les impulsions les plus longues que la source laser puisse nous délivrer. De plus, comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent, utiliser des impulsions de plus courte durée peut résulter en la domination de l'effet Kerr sur l'effet Raman, ce qui a pour conséquence de remplacer la génération d'un peigne de fréquences par un supercontinuum. Les spectrogrammes FROG sont présentés en *Figure 96* pour une polarisation circulaire du faisceau de pompe entrant dans la fibre. On constate la génération de lignes concentrées autour de la pompe qui représentent les premiers ordres de Stokes rotationnels. La *Figure 97* présente les traces

Licence CC BY-NC-ND 3.0

d'autocorrélation et temporelles correspondantes. A basse puissance, on y voit tout d'abord une trace d'autocorrélation de forme purement Gaussienne représentant la durée maximale que le FROG est capable d'afficher (285 fs). Le signal est en effet suffisant pour détecter une impulsion (ici de 10 ps mais le FROG ne peut afficher qu'une fenêtre de 285 fs), mais on ne distingue encore aucun train d'impulsion au sein de cette enveloppe. La puissance des impulsions injectées dans la fibre est alors augmentée petit à petit. Un train d'impulsions apparait dans le même temps, et son contraste augmente avec la puissance jusqu'à une valeur de 8,7 W.

Cette expérience a été répétée lors d'une autre campagne de mesure, mais cette fois avec une polarisation linéaire du faisceau de pompe (*Figure 98* et *Figure 99*). De nouveaux spectrogrammes FROG montrent ainsi que les lignes spectrales générées ne sont plus les mêmes, celles-ci sont en effet beaucoup plus éloignées de la pompe que dans l'exemple de la polarisation circulaire que nous venons juste de voir. Il s'agit des lignes vibrationnelles (les premiers Stokes et Anti-Stokes). A partir d'une puissance de 5,3 W, des lignes Raman rotationnelles sont générées autour de chacune d'elles. Si l'on compare maintenant ces spectrogrammes aux traces d'autocorrélation et temporelle correspondantes on observe que, dans un premier temps, lorsque seules les lignes vibrationnelles sont présentes, un train d'impulsions d'une durée inférieure à 5 fs (limite de résolution du FROG) et d'une période de 8 fs (correspondant aux 125 THz de période spectrale) est généré. Par la suite, l'apparition de lignes rotationnelles coïncide avec une modulation supplémentaire venant s'ajouter au train d'impulsions ultra-courtes. Il s'agit à nouveau de la modulation due aux lignes Raman rotationnelles qui, bien que la polarisation soit favorable aux lignes vibrationnelles, finit tout de même par apparaitre à partir d'une certaine puissance.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

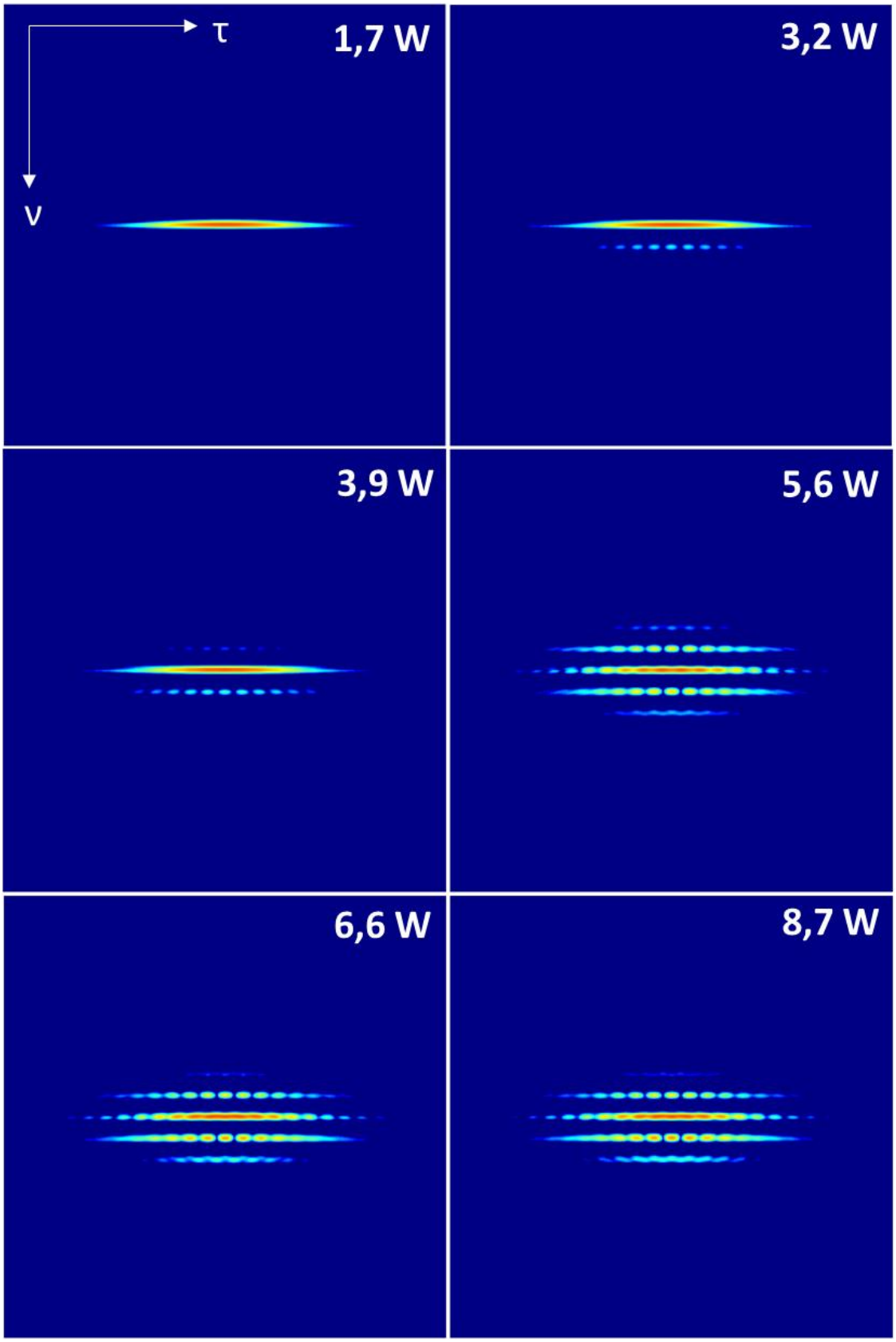


Figure 96 : Spectrogrammes FROG mesurés à différentes puissances, pour une polarisation circulaire des impulsions de pompe.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

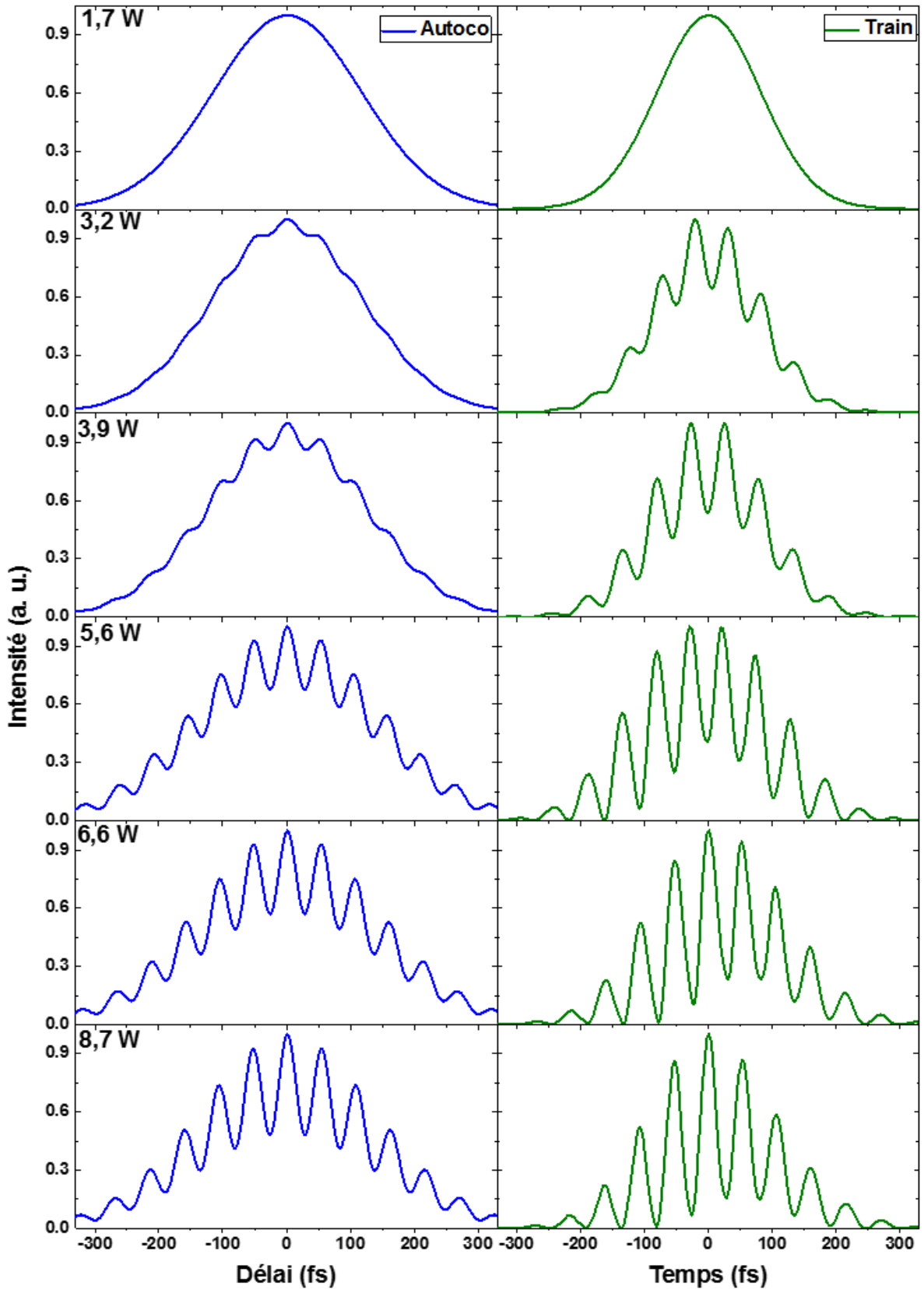


Figure 97 : Traces d'autocorrélation (en bleu) et traces temporelles correspondantes (en vert), pour différentes puissances moyennes de pompe avec une polarisation circulaire. Le contraste augmente avec la puissance.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

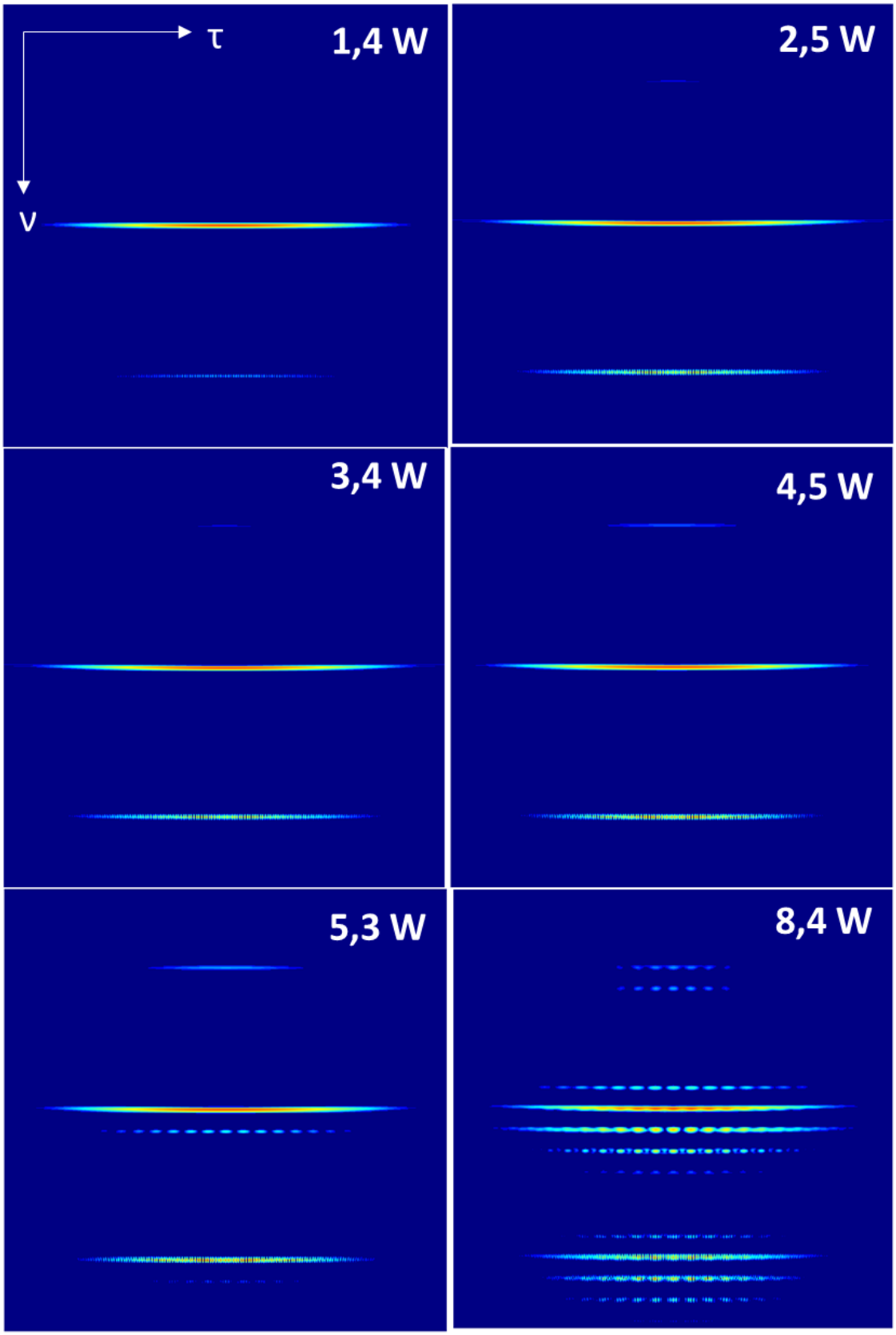


Figure 98 : Spectrogrammes FROG mesurés à différentes puissances, pour une polarisation linéaire des impulsions de pompe.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

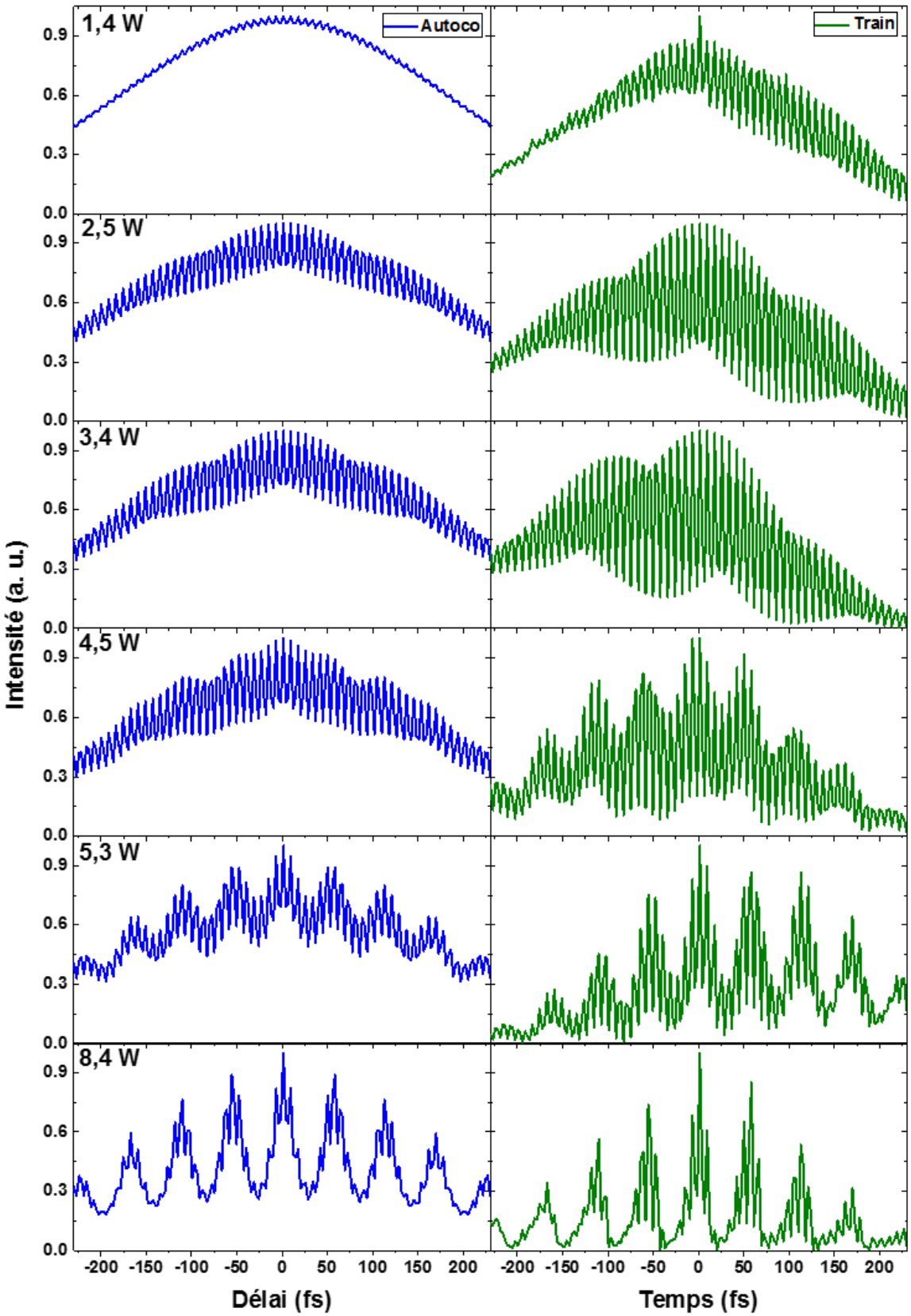


Figure 99 : Traces d'autocorrélation (en bleu) et traces temporelles correspondantes (en vert), pour différentes puissances moyennes de pompe avec une polarisation linéaire. Le contraste augmente avec la puissance mais deux trains se superposent.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Le nouveau montage optique présenté dans ce chapitre permet donc de générer des trains d'impulsions ultra-courtes en se basant sur la DRS dans les fibres creuses remplies de gaz. Ces trains d'impulsions, présentés dans différentes conditions expérimentales de polarisation et de puissance, sont semblables au premier train qui avait pu être généré et que nous avons présenté en section I.2. La différence ici est que nous avons pu y parvenir en utilisant des impulsions plus courtes d'un facteur 40 (10 ps au lieu de 400 ps).

VIII.5. Résumé

Cet ultime chapitre aura vu la réalisation d'une synthèse d'ondes optiques par effet Raman stimulé dans une fibre creuse. La cohérence est ici apportée par le fait de travailler dans un régime fortement transitoire. La forte versatilité de cette technique (en termes de contenu spectral et conséquemment de structure temporelle) permet d'effectuer une « sélection » du train d'impulsion désiré. En effet, ici jouer sur la polarisation a pour effet de modifier les lignes Raman générées, et donc leur écart spectral. Ainsi la période temporelle elle-même du train d'impulsion change. Choisir une polarisation circulaire optimise la génération des lignes Raman rotationnelles, plus nombreuses et resserrées, diminuant alors l'intervalle spectral entre deux lignes successives et augmentant la période entre deux impulsions dans le domaine temporel. Choisir une polarisation linéaire optimise la génération des lignes Raman vibrationnelles. Ces lignes sont plus éloignées, resserrant ainsi l'écart temporel entre deux impulsions du train.

La modification d'autres paramètres que ceux testés ici peut être envisagée pour obtenir de nouveaux trains d'impulsions, comme l'espèce de gaz utilisée pour remplir la fibre. Cela aura pour effet de changer les niveaux d'énergies accessibles pour les molécules, en comparaison aux niveaux accessibles pour les molécules d'hydrogène. De nouveaux niveaux d'énergie vont correspondre à de nouvelles lignes Raman et à de nouveaux écarts entre elles, donc à des trains d'impulsions ultra-courtes de période et de durées différentes à ceux obtenus avec l'hydrogène. Enfin, en comparaison avec la molécule choisis dans cette thèse, le gain de toute autre molécule sera plus faible, mais cela peut être en partie compensé avec l'augmentation en puissance de la source.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Si cette puissance devient trop élevée pour la fibre, il est possible d'en choisir une avec un cœur plus large et de compenser avec l'utilisation d'une plus grande longueur pour conserver un gain net équivalent.

L'étape suivante de ces travaux consistera à utiliser le filtre acousto-optique programmable évoqué lors de la présentation du montage, afin de contrôler l'intensité et la phase de plusieurs lignes Raman et ainsi modifier la forme des impulsions du train. Le but étant d'essayer de s'approcher de la génération d'impulsions de formes triangulaires ou en créneaux, des impulsions de formes dites « universelles », qu'il est déjà possible d'obtenir à l'aide de générateurs de fonctions électroniques. Nous voudrions en effet transposer ces propriétés dans le domaine optique (où les fréquences sont beaucoup plus élevées, de l'ordre des THz) afin de proposer un générateur de fonctions optiques. Un tel outil serait un élément indispensable à la création d'un processeur optique, en vue de l'avènement de l'ordinateur photonique. Le processeur d'un tel appareil fonctionnerait beaucoup plus vite qu'un processeur électronique « classique » GHz.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Conclusion générale et perspectives

Comme nous l'avons vu tout au long de ce mémoire, les différents résultats présentés au cours des chapitres viennent répondre (ou tout du moins viennent poser des jalons supplémentaires) aux objectifs présentés en introduction. Grâce à la diffusion Raman stimulée réalisée en régime transitoire dans des fibres creuses remplies de gaz, il a en effet été possible de proposer des solutions dans plusieurs domaines applicatifs. Après avoir mis en lumière la richesse et l'étendue des propriétés de l'effet Raman et des fibres creuses dans les chapitre II et III, nous avons ainsi pu obtenir plusieurs avancées, chapitre par chapitre.

Ainsi, dans le chapitre IV nous avons étudié la cohérence inter-impulsionnelle d'impulsions Stokes et évoqué la possibilité de réaliser une nouvelle source laser à blocage de modes Raman, à partir d'un laser de pompe ayant une cadence suffisante. En effet, la cohérence du milieu survit plus longtemps que la durée de relaxation moléculaire T_2. Grâce à un outil numérique, nous avons pu également déterminer les niveaux de cohérence et de différence de population qu'il est possible d'atteindre dans un milieu Raman donné, en fonction de paramètres tels que le gain ou encore la durée d'impulsion.

Dans le chapitre V nous avons pu montrer et étudier expérimentalement, pour la première fois à notre connaissance, la transition entre les régimes spontané et transitoire de la DRS. Ceci a également permis de déterminer que l'énergie de seuil nécessaire à la DRS au sein d'une fibre creuse est le même que dans une configuration en espace libre. Ce résultat était d'importance pour le chapitre suivant.

Le chapitre VI a proposé la réalisation d'une source infrarouge basée sur l'effet Raman et la conversion d'impulsions ultra-courtes de 1 µm vers 1,8 µm. Ce résultat a combiné la maîtrise des propriétés des fibres creuses, notamment en termes de transmission, afin de centrer une bande sur chaque ligne spectrale d'intérêt (pompe et premier Stokes vibrationnel dans l'hydrogène), et la versatilité de l'effet Raman. Il n'est en effet pas nécessaire de pomper à une longueur d'onde précise le milieu Raman pour réaliser

Licence CC BY-NC-ND 3.0

de la DRS. Ainsi, en pompant avec notre source à 1 µm, il est possible de générer un rayonnement directement dans l'infrarouge à 1,8 µm et de transposer, dans un certain cadre, les propriétés des impulsions de pompe à une longueur d'onde plus élevée.

Au cours du chapitre VII, un spectre large de 3 octaves, dont la structure peut varier d'un peigne de fréquences à un supercontinuum en fonction des conditions expérimentales, a pu être généré, ce qui permet d'adresser un grand nombre de longueurs d'onde. Nous avons donc pour la première fois pu observer que la génération d'un peigne de fréquences Raman est limitée à l'utilisation d'impulsions suffisamment longues pour éviter l'effet Kerr de devenir prépondérant devant l'effet Raman. Cet effet Kerr peut cependant être bénéfique dans le cas où un spectre continu est recherché, au contraire d'un spectre de lignes discrètes. Une source ultra-large à structure spectrale accordable a ainsi été démontrée et dimensionnée en termes de durée d'impulsion et de puissance d'injection dans la fibre.

Enfin le chapitre VIII a démontré la possibilité de synthétiser des trains d'impulsions ultra-courtes via la génération de peignes de fréquences Raman cohérents. Un tel résultat avait été obtenu auparavant à partir d'impulsions nanosecondes afin de bénéficier de plus hautes énergies. La nouveauté ici repose sur l'utilisation d'impulsions de pompe ultra-courtes (de 10 ps à 250 fs) mais disposant tout de même de suffisamment d'énergie pour générer un effet Raman stimulé qui, rappelons-le, est un effet de seuil. La continuité de ce travail va constituer à utiliser un filtre acousto-optique programmable (Dazzler, Fastlite) afin de pouvoir jouer sur l'intensité et la phase des lignes d'un peigne de fréquences Raman. Le but étant de changer la forme du train d'impulsions ultra-courtes généré pour si possible parvenir à des formes d'ondes universelles.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Bibliographie

[1] C. V. Raman et K. S. Krishnan, « A New Type of Secondary Radiation », *Nature*, vol. 121, nº 3048, p. 501‑502, mars 1928, doi: 10.1038/121501c0.

[2] A. Smekal, « Zur Quantentheorie der Dispersion », *Die Naturwissenschaften*, vol. 11, nº 43, p. 873‑875, oct. 1923, doi: 10.1007/BF01576902.

[3] G. Eckhardt, R. W. Hellwarth, F. J. McClung, S. E. Schwarz, D. Weiner, et E. J. Woodbury, « Stimulated Raman Scattering From Organic Liquids », *Physical Review Letters*, vol. 9, nº 11, p. 455‑457, déc. 1962, doi: 10.1103/PhysRevLett.9.455.

[4] D. Colladon, « Ueber die im Wasser hervorzubringenden Töne », *Annalen der Physik und Chemie*, vol. 130, nº 9, p. 130‑136, 1841, doi: 10.1002/andp.18411300914.

[5] M. W. Jones et K. C. Kao, « Spectrophotometric studies of ultra low loss optical glasses II: double beam method », *Journal of Physics E: Scientific Instruments*, vol. 2, nº 4, p. 331‑335, avr. 1969, doi: 10.1088/0022-3735/2/4/307.

[6] T. Miya, Y. Terunuma, T. Hosaka, et T. Miyashita, « Ultimate low-loss single-mode fibre at 1.55 µm », *Electronics Letters*, vol. 15, nº 4, p. 106, 1979, doi: 10.1049/el:19790077.

[7] T. H. Maiman, « Stimulated Optical Radiation in Ruby », *Nature*, vol. 187, nº 4736, p. 493‑494, août 1960, doi: 10.1038/187493a0.

[8] Y. Tamura *et al.*, « Lowest-Ever 0.1419-dB/km Loss Optical Fiber », in *Optical Fiber Communication Conference Postdeadline Papers*, Los Angeles, California, 2017, p. Th5D.1, doi: 10.1364/OFC.2017.Th5D.1.

[9] O. Humbach, H. Fabian, U. Grzesik, U. Haken, et W. Heitmann, « Analysis of OH absorption bands in synthetic silica », *Journal of Non-Crystalline Solids*, vol. 203, p. 19‑26, août 1996, doi: 10.1016/0022-3093(96)00329-8.

[10] E. Saucedo Casas et V. P. Minkovich, « A microscopic bright-field image technique for the measurement of averaged index profiles of quasi-axially symmetric large-mode-area microstructured fibers », *Laser Physics*, vol. 18, nº 3, p. 357‑362, mars 2008, doi: 10.1134/S1054660X08030286.

[11] B. Debord, F. Amrani, L. Vincetti, F. Gérôme, et F. Benabid, « Hollow-Core Fiber Technology: The Rising of “Gas Photonics” », *Fibers*, vol. 7, nº 2, p. 16, févr. 2019, doi: 10.3390/fib7020016.

[12] M. D. Duncan, R. Mahon, L. L. Tankersley, et J. Reintjes, « Transient stimulated Raman amplification in hydrogen », *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 5, nº 1, p. 37, janv. 1988, doi: 10.1364/JOSAB.5.000037.

[13] P. Rabinowitz, A. Kaldor, R. Brickman, et W. Schmidt, « Waveguide H_2 Raman laser », *Applied Optics*, vol. 15, nº 9, p. 2005, sept. 1976, doi: 10.1364/AO.15.002005.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

[14] F. Benabid, J. C. Knight, G. Antonopoulos, et P. St. J. Russell, « Stimulated Raman Scattering in Hydrogen-Filled Hollow-Core Photonic Crystal Fiber », *Science*, nº 5592, p. 399, 2002.

[15] F. Benabid, G. Bouwmans, J. c. Knight, P. St. J. Russell, et F. Couny, « Ultrahigh efficiency laser wavelength conversion in a gas-filled hollow core photonic Crystal fiber by pure stimulated rotational Raman scattering in molecular hydrogen », *Physical Review Letters*, vol. 93, nº 12, p. 123903/1‑4, sept. 2004, doi: 10.1103/PhysRevLett.93.123903.

[16] F. Benabid, G. Antonopoulos, J. C. Knight, et P. St. J. Russell, « Stokes Amplification Regimes in Quasi-cw Pumped Hydrogen-Filled Hollow-Core Photonic Crystal Fiber », *Physical Review Letters*, vol. 95, nº 21, nov. 2005, doi: 10.1103/PhysRevLett.95.213903.

[17] F. Couny, F. Benabid, et P. S. Light, « Subwatt Threshold cw Raman Fiber-Gas Laser Based on H 2 -Filled Hollow-Core Photonic Crystal Fiber », *Physical Review Letters*, vol. 99, nº 14, oct. 2007, doi: 10.1103/PhysRevLett.99.143903.

[18] F. Couny, F. Benabid, P. J. Roberts, P. S. Light, et M. G. Raymer, « Generation and Photonic Guidance of Multi-Octave Optical-Frequency Combs », *Science*, vol. 318, nº 5853, p. 1118‑1121, nov. 2007, doi: 10.1126/science.1149091.

[19] R. J. Glauber, « One hundreds year of light quanta », p. 24.

[20] J. L. Hall, « Defining and measuring optical frequencies: the optical clock opportunity - and more », p. 32.

[21] T. W. Hänsch, « Passion for precision », p. 25.

[22] A. Benoît *et al.*, « Over-five octaves wide Raman combs in high-power picosecond-laser pumped H_2-filled inhibited coupling Kagome fiber », *Optics Express*, vol. 23, nº 11, p. 14002, juin 2015, doi: 10.1364/OE.23.014002.

[23] P. Hosseini, A. Abdolvand, et P. St.J. Russell, « Generation of spectral clusters in a mixture of noble and Raman-active gases », *Optics Letters*, vol. 41, nº 23, p. 5543, déc. 2016, doi: 10.1364/OL.41.005543.

[24] A. Benoit *et al.*, « Parametric four-wave mixing sidebands in strongly driven Raman molecular D2-filled HC-PCF », in *2017 Conference on Lasers and Electro-Optics Europe & European Quantum Electronics Conference (CLEO/Europe-EQEC)*, Munich, Germany, 2017, p. 1‑1, doi: 10.1109/CLEOE-EQEC.2017.8087016.

[25] Y. Y. Wang, C. Wu, F. Couny, M. G. Raymer, et F. Benabid, « Quantum-Fluctuation-Initiated Coherence in Multioctave Raman Optical Frequency Combs », *Physical Review Letters*, vol. 105, nº 12, sept. 2010, doi: 10.1103/PhysRevLett.105.123603.

[26] A. Benoit, « Sources laser fibrées hybrides de haute puissance: Amplification et conversion de fréquences », Université de Limoges, 2015.

[27] F. Couny, « Photonic solutions towards optical waveform synthesis », University of Bath, 2008.

[28] R. W. Boyd, *Nonlinear optics*, 3rd ed. Amsterdam ; Boston: Academic Press, 2008.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

[29] N. Bloembergen, « The Stimulated Raman Effect », *American Journal of Physics*, vol. 35, nº 11, p. 989‑1023, nov. 1967, doi: 10.1119/1.1973774.

[30] Y. R. Shen, *Principles of Nonlinear Optics*. 1984.

[31] C. Delsart, *Lasers et optique non linéaire: Cours, exercices et problèmes corrigés*. Paris: Ellipses, 2008.

[32] Y. R. Shen et N. Bloembergen, « Theory of Stimulated Brillouin and Raman Scattering », *Physical Review*, vol. 137, nº 6A, p. A1787‑A1805, mars 1965, doi: 10.1103/PhysRev.137.A1787.

[33] L. S. Meng, « Continuous-wave Raman laser in H2 : semi-classical theory and diode-pumping experiments », PhD Thesis, Montana State University, Bozeman, Montana, 2002.

[34] A. Yariv, *Quantum electronics*, 3rd ed. New York: Wiley, 1989.

[35] G. Boyd, W. Johnston, et I. Kaminow, « Optimization of the stimulated Raman scattering threshold », *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 5, nº 4, p. 203‑206, avr. 1969, doi: 10.1109/JQE.1969.1075751.

[36] P. Rabinowitz, A. Stein, R. Brickman, et A. Kaldor, « Stimulated rotational Raman scattering from para-H_2 pumped by a CO_2 TEA laser », *Optics Letters*, vol. 3, nº 4, p. 147, oct. 1978, doi: 10.1364/OL.3.000147.

[37] A. Penzkofer, A. Laubereau, et W. Kaiser, « High Intensity Raman Interactions », p. 86, 1979.

[38] R. l. Carman, F. Shimizu, C. s. Wang, et N. Bloembergen, « Theory of Stokes pulse shapes in transient stimulated Raman scattering », *Physical Review A (General Physics)*, vol. 2, nº 1, p. 60‑72, juill. 1970.

[39] S. A. Akhmanov, K. N. Drabovich, A. P. Sukhorukov, et A. S. Chirkin, « Stimulated Raman scattering in a field of ultrashort light pulses », *Soviet Physics JETP*, vol. 32, nº 2, p. 266‑273, févr. 1971, doi: 10.1070/QE1982v012n01ABEH005421.

[40] M. G. Raymer et J. Mostowski, « Stimulated Raman scattering: Unified treatment of spontaneous initiation and spatial propagation », *Physical Review A*, vol. 24, nº 4, p. 1980‑1993, oct. 1981, doi: 10.1103/PhysRevA.24.1980.

[41] M. G. Raymer et I. A. Walmsley, « III The Quantum Coherence Properties of Stimulated Raman Scattering », in *Progress in Optics*, vol. 28, Elsevier, 1990, p. 181‑270.

[42] Y. Wang, « Quantum-fluctuation-initiated coherent Raman comb in hydrogen-filled hollow-core photonic crystal fibre », University of Bath, 2011.

[43] M. G. Raymer, K. Rzażewski, et J. Mostowski, « Pulse-energy statistics in stimulated Raman scattering », *Optics Letters*, vol. 7, nº 2, p. 71, févr. 1982, doi: 10.1364/OL.7.000071.

[44] M. G. Raymer, Z. W. Li, et I. A. Walmsley, « Temporal quantum fluctuations in stimulated Raman scattering: Coherent-modes description », *Physical Review Letters*, vol. 63, nº 15, p. 1586‑1589, oct. 1989, doi: 10.1103/PhysRevLett.63.1586.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

[45] A. Farkas, « Orthohydrogen, Parahydrogen and Heavy Hydrogen », *Nature*, vol. 135, nº 3416, p. 601‑602, avr. 1935, doi: 10.1038/135601a0.

[46] W. K. Bischel et M. J. Dyer, « Temperature dependence of the Raman linewidth and line shift for the Q(1) and Q(0) transitions in normal and para- H 2 », *Physical Review A*, vol. 33, nº 5, p. 3113‑3123, mai 1986, doi: 10.1103/PhysRevA.33.3113.

[47] G. C. Herring, M. J. Dyer, et W. K. Bischel, « Temperature and density dependence of the linewidths and line shifts of the rotational Raman lines in N 2 and H 2 », *Physical Review A*, vol. 34, nº 3, p. 1944‑1951, sept. 1986, doi: 10.1103/PhysRevA.34.1944.

[48] W. K. Bischel et M. J. Dyer, « Wavelength dependence of the absolute Raman gain coefficient for the Q(1) transition in H_2 », *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 3, nº 5, p. 677, mai 1986, doi: 10.1364/JOSAB.3.000677.

[49] R. W. Minck, R. W. Terhune, et C. C. Wang, « Nonlinear Optics », *Applied Optics*, vol. 5, nº 10, p. 1595, oct. 1966, doi: 10.1364/AO.5.001595.

[50] E. Yablonovitch, « Inhibited Spontaneous Emission in Solid-State Physics and Electronics », *Physical Review Letters*, vol. 58, nº 20, p. 2059‑2062, mai 1987, doi: 10.1103/PhysRevLett.58.2059.

[51] S. John, « Strong localization of photons in certain disordered dielectric superlattices », *Physical Review Letters*, vol. 58, nº 23, p. 2486‑2489, juin 1987, doi: 10.1103/PhysRevLett.58.2486.

[52] P. Russell, « Photonic Crystal Fibers », *Science*, vol. 299, nº 5605, p. 358‑362, janv. 2003, doi: 10.1126/science.1079280.

[53] D. M. Atkin, T. J. Shepherd, T. A. Birks, P. St. J. Russell, et P. J. Roberts, « Full 2-D photonic bandgaps in silica/air structures », *Electronics Letters*, vol. 31, nº 22, p. 1941‑1943, oct. 1995, doi: 10.1049/el:19951306.

[54] R. F. Cregan *et al.*, « Single-Mode Photonic Band Gap Guidance of Light in Air », *Science, New Series*, vol. 285, nº 5433, p. 1537‑1539, 1999.

[55] N. Venkataraman *et al.*, « Low Loss (13 dB/km) Air Core Photonic Band-Gap Fibre », in *2002 28TH European Conference on Optical Communication*, 2002, vol. 5, p. 1‑2.

[56] P. J. Roberts *et al.*, « Ultimate low loss of hollow-core photonic crystal fibres », *Optics Express*, vol. 13, nº 1, p. 236, 2005, doi: 10.1364/OPEX.13.000236.

[57] F. Couny, F. Benabid, P. J. Roberts, M. T. Burnett, et S. A. Maier, « Identification of Bloch-modes in hollow-core photonic crystal fiber cladding », *Optics Express*, vol. 15, nº 2, p. 325, janv. 2007, doi: 10.1364/OE.15.000325.

[58] F. Benabid et P. J. Roberts, « Linear and nonlinear optical properties of hollow core photonic crystal fiber », *Journal of Modern Optics*, vol. 58, nº 2, p. 87‑124, janv. 2011, doi: 10.1080/09500340.2010.543706.

[59] Y. Y. Wang, N. V. Wheeler, F. Couny, P. J. Roberts, et F. Benabid, « Low loss broadband transmission in hypocycloid-core Kagome hollow-core photonic crystal fiber », *Optics Letters*, vol. 36, nº 5, p. 669, mars 2011, doi: 10.1364/OL.36.000669.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

[60] M. Maurel *et al.*, « Optimized inhibited-coupling Kagome fibers at Yb-Nd:Yag (85 dB/km) and Ti:Sa (30 dB/km) ranges », *Optics Letters*, vol. 43, nº 7, p. 1598, avr. 2018, doi: 10.1364/OL.43.001598.

[61] F. Couny, F. Benabid, et P. S. Light, « Large-pitch kagome-structured hollow-core photonic crystal fiber », *Optics Letters*, vol. 31, nº 24, p. 3574, déc. 2006, doi: 10.1364/OL.31.003574.

[62] J. von Neumann et E. P. Wigner, « Über das Verhalten von Eigenwerten bei adiabatischen Prozessen », in *The Collected Works of Eugene Paul Wigner*, A. S. Wightman, Éd. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 1993, p. 294‑297.

[63] F. Capasso, C. Sirtori, J. Faist, D. L. Sivco, S.-N. G. Chu, et A. Y. Cho, « Observation of an electronic bound state above a potential well », *Nature*, vol. 358, nº 6387, p. 565‑567, août 1992, doi: 10.1038/358565a0.

[64] C. W. Hsu, B. Zhen, A. D. Stone, J. D. Joannopoulos, et M. Soljačić, « Bound states in the continuum », *Nature Reviews Materials*, vol. 1, nº 9, sept. 2016, doi: 10.1038/natrevmats.2016.48.

[65] B. Debord *et al.*, « Hypocycloid-shaped hollow-core photonic crystal fiber Part I: arc curvature effect on confinement loss », *Optics Express*, vol. 21, nº 23, p. 28597‑28608, nov. 2013, doi: 10.1364/OE.21.028597.

[66] A. D. Pryamikov, A. S. Biriukov, A. F. Kosolapov, V. G. Plotnichenko, S. L. Semjonov, et E. M. Dianov, « Demonstration of a waveguide regime for a silica hollow - core microstructured optical fiber with a negative curvature of the core boundary in the spectral region > 35 µm », *Optics Express*, vol. 19, nº 2, p. 1441, janv. 2011, doi: 10.1364/OE.19.001441.

[67] F. Yu, W. J. Wadsworth, et J. C. Knight, « Low loss silica hollow core fibers for 3–4 µm spectral region », *Optics Express*, vol. 20, nº 10, p. 11153, mai 2012, doi: 10.1364/OE.20.011153.

[68] A. N. Kolyadin, A. F. Kosolapov, A. D. Pryamikov, A. S. Biriukov, V. G. Plotnichenko, et E. M. Dianov, « Light transmission in negative curvature hollow core fiber in extremely high material loss region », *Optics Express*, vol. 21, nº 8, p. 9514, avr. 2013, doi: 10.1364/OE.21.009514.

[69] Z. Wang, W. Belardi, F. Yu, W. J. Wadsworth, et J. C. Knight, « Efficient diode-pumped mid-infrared emission from acetylene-filled hollow-core fiber », *Optics Express*, vol. 22, nº 18, p. 21872, sept. 2014, doi: 10.1364/OE.22.021872.

[70] P. Uebel *et al.*, « Broadband robustly single-mode hollow-core PCF by resonant filtering of higher-order modes », *Optics Letters*, vol. 41, nº 9, p. 1961, mai 2016, doi: 10.1364/OL.41.001961.

[71] M. Michieletto, J. K. Lyngsø, C. Jakobsen, J. Lægsgaard, O. Bang, et T. T. Alkeskjold, « Hollow-core fibers for high power pulse delivery », *Optics Express*, vol. 24, nº 7, p. 7103, avr. 2016, doi: 10.1364/OE.24.007103.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

[72] J. R. Hayes *et al.*, « Antiresonant Hollow Core Fiber With an Octave Spanning Bandwidth for Short Haul Data Communications », *Journal of Lightwave Technology*, vol. 35, nº 3, p. 437‑442, févr. 2017, doi: 10.1109/JLT.2016.2638205.

[73] B. Debord *et al.*, « Ultralow transmission loss in inhibited-coupling guiding hollow fibers », *Optica*, vol. 4, nº 2, p. 209, févr. 2017, doi: 10.1364/OPTICA.4.000209.

[74] M. Chafer *et al.*, « 1-km Hollow-Core Fiber With Loss at the Silica Rayleigh Limit in the Green Spectral Region », *IEEE Photonics Technology Letters*, vol. 31, nº 9, p. 685‑688, mai 2019, doi: 10.1109/LPT.2019.2904341.

[75] S. Gao *et al.*, « Hollow-core conjoined-tube negative-curvature fibre with ultralow loss », *Nature Communications*, vol. 9, nº 1, déc. 2018, doi: 10.1038/s41467-018-05225-1.

[76] T. D. Bradley *et al.*, « Record Low-Loss 1.3dB/km Data Transmitting Antiresonant Hollow Core Fibre », in *2018 European Conference on Optical Communication (ECOC)*, Rome, 2018, p. 1‑3, doi: 10.1109/ECOC.2018.8535324.

[77] F. Poletti, « Nested antiresonant nodeless hollow core fiber », *Optics Express*, vol. 22, nº 20, p. 23807, oct. 2014, doi: 10.1364/OE.22.023807.

[78] E. N. Fokoua, F. Poletti, et D. J. Richardson, « Analysis of light scattering from surface roughness in hollow-core photonic bandgap fibers », *Optics Express*, vol. 20, nº 19, p. 20980, sept. 2012, doi: 10.1364/OE.20.020980.

[79] F. Amrani, F. Delahaye, B. Debord, L. L. Alves, F. Gerome, et F. Benabid, « Gas mixture for deep-UV plasma emission in a hollow-core photonic crystal fiber », *Optics Letters*, vol. 42, nº 17, p. 3363, sept. 2017, doi: 10.1364/OL.42.003363.

[80] S. Okaba *et al.*, « Lamb-Dicke spectroscopy of atoms in a hollow-core photonic crystal fibre », *Nature Communications*, vol. 5, nº 1, déc. 2014, doi: 10.1038/ncomms5096.

[81] T. Balciunas *et al.*, « A strong-field driver in the single-cycle regime based on self-compression in a kagome fibre », *Nature Communications*, vol. 6, nº 1, déc. 2015, doi: 10.1038/ncomms7117.

[82] B. Debord *et al.*, « Multi-meter fiber-delivery and pulse self-compression of milli-Joule femtosecond laser and fiber-aided laser-micromachining », *Optics Express*, vol. 22, nº 9, p. 10735, mai 2014, doi: 10.1364/OE.22.010735.

[83] B. Debord, F. Gérôme, P.-M. Paul, A. Husakou, et F. Benabid, « 2.6 mJ energy and 81 GW peak power femtosecond laser-pulse delivery and spectral broadening in inhibited coupling Kagome fiber », in *CLEO: 2015*, San Jose, California, 2015, p. STh4L.7, doi: 10.1364/CLEO_SI.2015.STh4L.7.

[84] S. Hädrich *et al.*, « Scalability of components for kW-level average power few-cycle lasers », *Applied Optics*, vol. 55, nº 7, p. 1636, mars 2016, doi: 10.1364/AO.55.001636.

[85] D. T. Smithey, M. Belsley, K. Wedding, et M. G. Raymer, « Near quantum-limited phase memory in a Raman amplifier », *Physical Review Letters*, vol. 67, nº 18, p. 2446‑2449, oct. 1991, doi: 10.1103/PhysRevLett.67.2446.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

[86] Y. Wang, F. Couny, B. Mangan, et F. Benabid, « Ultra-Long-Lived Molecular Coherence in H^2Filled Hollow-Core Photonic Crystal Fiber », in *Conference on Lasers and Electro-Optics 2010*, San Jose, CA, 2010, p. QTuG1, doi: 10.1364/QELS.2010.QTuG1.

[87] M. Alharbi, « CW Stimulated Raman Scattering Generation and Phase-Locking of Raman Comb using Hypocycloid-shaped Kagome HC-PCF », University of Bath, 2014.

[88] V. P. Kalosha et J. Herrmann, « Ultrawide spectral broadening and compression of single extremely short pulses in the visible, uv-vuv, and middle infrared by high-order stimulated Raman scattering », *Physical Review A*, vol. 68, nº 2, août 2003, doi: 10.1103/PhysRevA.68.023812.

[89] F. Couny, F. Benabid, P. J. Roberts, P. S. Light, et M. G. Raymer, « Generation and Photonic Guidance of Multi-Octave Optical-Frequency Combs », *Science*, nº 5853, p. 1118, 2007.

[90] H. Pires, M. Baudisch, D. Sanchez, M. Hemmer, et J. Biegert, « Ultrashort pulse generation in the mid-IR », *Progress in Quantum Electronics*, vol. 43, p. 1‑30, sept. 2015, doi: 10.1016/j.pquantelec.2015.07.001.

[91] F. K. Tittel, D. Richter, et A. Fried, « Mid-Infrared Laser Applications in Spectroscopy », in *Solid-State Mid-Infrared Laser Sources*, vol. 89, I. T. Sorokina et K. L. Vodopyanov, Éd. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 2003, p. 458‑529.

[92] J. Faist, F. Capasso, D. L. Sivco, C. Sirtori, A. L. Hutchinson, et A. Y. Cho, « Quantum Cascade Laser », *Science*, vol. 264, nº 5158, p. 553‑556, avr. 1994, doi: 10.1126/science.264.5158.553.

[93] A. Bismuto, S. Riedi, B. Hinkov, M. Beck, et J. Faist, « Sb-free quantum cascade lasers in the 3–4 µm spectral range », *Semiconductor Science and Technology*, vol. 27, nº 4, p. 045013, avr. 2012, doi: 10.1088/0268-1242/27/4/045013.

[94] P. E. Powers, C. L. Tang, R. J. Ellingson, et W. S. Pelouch, « Recent advances of the Ti:sapphire-pumped high-repetition-rate femtosecond optical parametric oscillator », *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 10, nº 11, p. 2162, nov. 1993, doi: 10.1364/JOSAB.10.002162.

[95] V. Ramaiah-Badarla, A. Esteban-Martin, et M. Ebrahim-Zadeh, « Self-phase-locked degenerate femtosecond optical parametric oscillator based on BiB_3O_6: Self-phase-locked degenerate femtosecond optical parametric oscillator based on BiB_3O_6 », *Laser & Photonics Reviews*, vol. 7, nº 5, p. L55‑L60, sept. 2013, doi: 10.1002/lpor.201300058.

[96] A. Esteban-Martin, O. Kokabee, K. Moutzouris, et M. Ebrahim-Zadeh, « High-harmonic-repetition-rate, 1 GHz femtosecond optical parametric oscillator pumped by a 76 MHz Ti:sapphire laser », *Optics Letters*, vol. 34, nº 4, p. 428, févr. 2009, doi: 10.1364/OL.34.000428.

[97] C. McGowan, D. T. Reid, M. Ebrahimzadeh, et W. Sibbett, « Femtosecond pulses tunable beyond 4 pm from a KTA-based optical parametric oscillator », *Optics Communications*, p. 5, 1997.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

[98] R. F. Wu, K. S. Lai, H. Wong, W.-J. Xie, Y. Lim, et E. Lau, « Multiwatt mid-IR output from a Nd:YALO laser pumped intracavity KTA OPO », *Optics Express*, vol. 8, nº 13, p. 694, juin 2001, doi: 10.1364/OE.8.000694.

[99] V. Petrov et F. Noack, « Tunable femtosecond optical parametric amplifier in the mid-infrared with narrow-band seeding », *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 12, nº 11, p. 2214, nov. 1995, doi: 10.1364/JOSAB.12.002214.

[100] G. R. Holtom, R. A. Crowell, et X. S. Xie, « High-repetition-rate femtosecond optical parametric oscillator–amplifier system near 3 µm », *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 12, nº 9, p. 1723, sept. 1995, doi: 10.1364/JOSAB.12.001723.

[101] S. Chaitanya Kumar *et al.*, « High-power femtosecond mid-infrared optical parametric oscillator at 7 µm based on CdSiP_2 », *Optics Letters*, vol. 40, nº 7, p. 1398, avr. 2015, doi: 10.1364/OL.40.001398.

[102] J. J. Pigeon, S. Ya. Tochitsky, et C. Joshi, « High-power, mid-infrared, picosecond pulses generated by compression of a CO_2 laser beat-wave in GaAs », *Optics Letters*, vol. 40, nº 24, p. 5730, déc. 2015, doi: 10.1364/OL.40.005730.

[103] A. Benoît, E. Ilinova, B. Beaudou, B. Debord, F. Gérôme, et F. Benabid, « Spectral–temporal dynamics of high power Raman picosecond pulse using H_2-filled Kagome HC-PCF », *Optics Letters*, vol. 42, nº 19, p. 3896, oct. 2017, doi: 10.1364/OL.42.003896.

[104] B. P. Stoicheff, « Characteristics of stimulated raman radiation generated by coherent light », *Physics Letters*, vol. 7, nº 3, p. 186‑188, nov. 1963, doi: 10.1016/0031-9163(63)90377-9.

[105] R. R. Alfano et S. L. Shapiro, « Observation of Self-Phase Modulation and Small-Scale Filaments in Crystals and Glasses », *Physical Review Letters*, vol. 24, nº 11, p. 592‑594, mars 1970, doi: 10.1103/PhysRevLett.24.592.

[106] R. R. Alfano, Éd., *The supercontinuum laser source: fundamentals with updated references*, 2nd ed. New York: Springer, 2006.

[107] C. Lin et R. H. Stolen, « New nanosecond continuum for excited-state spectroscopy », *Applied Physics Letters*, vol. 28, nº 4, p. 216‑218, févr. 1976, doi: 10.1063/1.88702.

[108] C. Lin, V. T. Nguyen, et W. G. French, « Wideband near-i.r. continuum (0.7–2.1 µm) generated in low-loss optical fibres », *Electronics Letters*, vol. 14, nº 25, p. 822, 1978, doi: 10.1049/el:19780556.

[109] Y. Fujii, B. S. Kawasaki, K. O. Hill, et D. C. Johnson, « Sum-frequency light generation in optical fibers », *Optics Letters*, vol. 5, nº 2, p. 48, févr. 1980, doi: 10.1364/OL.5.000048.

[110] J. K. Ranka, R. S. Windeler, et A. J. Stentz, « Visible continuum generation in air–silica microstructure optical fibers with anomalous dispersion at 800 nm », *Optics Letters*, vol. 25, nº 1, p. 25, janv. 2000, doi: 10.1364/OL.25.000025.

[111] A. V. Husakou et J. Herrmann, « Supercontinuum Generation of Higher-Order Solitons by Fission in Photonic Crystal Fibers », *Physical Review Letters*, vol. 87, nº 20, oct. 2001, doi: 10.1103/PhysRevLett.87.203901.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

[112] W. J. Wadsworth, A. Ortigosa-Blanch, J. C. Knight, T. A. Birks, T.-P. M. Man, et P. St. J. Russell, « Supercontinuum generation in photonic crystal fibers and optical fiber tapers: a novel light source », *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 19, nº 9, p. 2148, sept. 2002, doi: 10.1364/JOSAB.19.002148.

[113] A. L. Gaeta, « Nonlinear propagation and continuum generation in microstructured optical fibers », *Optics Letters*, vol. 27, nº 11, p. 924, juin 2002, doi: 10.1364/OL.27.000924.

[114] G. Genty, M. Lehtonen, H. Ludvigsen, et M. Kaivola, « Enhanced bandwidth of supercontinuum generated in microstructured fibers », *Optics Express*, vol. 12, nº 15, p. 3471, juill. 2004, doi: 10.1364/OPEX.12.003471.

[115] J. M. Dudley, G. Genty, et S. Coen, « Supercontinuum generation in photonic crystal fiber », *Reviews of Modern Physics*, vol. 78, nº 4, p. 1135‑1184, oct. 2006, doi: 10.1103/RevModPhys.78.1135.

[116] D. Y. Oh, D. Sell, H. Lee, K. Y. Yang, S. A. Diddams, et K. J. Vahala, « Supercontinuum generation in an on-chip silica waveguide », *Optics Letters*, vol. 39, nº 4, p. 1046, févr. 2014, doi: 10.1364/OL.39.001046.

[117] H. Zhao *et al.*, « Visible-to-near-infrared octave spanning supercontinuum generation in a silicon nitride waveguide », *Optics Letters*, vol. 40, nº 10, p. 2177, mai 2015, doi: 10.1364/OL.40.002177.

[118] M. A. Ettabib *et al.*, « Broadband telecom to mid-infrared supercontinuum generation in a dispersion-engineered silicon germanium waveguide », *Optics Letters*, vol. 40, nº 17, p. 4118, sept. 2015, doi: 10.1364/OL.40.004118.

[119] R. K. W. Lau, M. R. E. Lamont, A. G. Griffith, Y. Okawachi, M. Lipson, et A. L. Gaeta, « Octave-spanning mid-infrared supercontinuum generation in silicon nanowaveguides », *Optics Letters*, vol. 39, nº 15, p. 4518, août 2014, doi: 10.1364/OL.39.004518.

[120] J. P. Epping *et al.*, « On-chip visible-to-infrared supercontinuum generation with more than 495 THz spectral bandwidth », *Optics Express*, vol. 23, nº 15, p. 19596, juill. 2015, doi: 10.1364/OE.23.019596.

[121] A. McPherson *et al.*, « Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases », *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 4, nº 4, p. 595, avr. 1987, doi: 10.1364/JOSAB.4.000595.

[122] M. Ferray, A. L'Huillier, X. F. Li, L. A. Lompre, G. Mainfray, et C. Manus, « Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases », *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, vol. 21, nº 3, p. L31‑L35, févr. 1988, doi: 10.1088/0953-4075/21/3/001.

[123] P. Deslandes, M. Perrin, J. Saby, D. Sangla, F. Salin, et E. Freysz, « Picosecond to femtosecond pulses from high power self mode–locked ytterbium rod-type fiber laser », *Optics Express*, vol. 21, nº 9, p. 10731, mai 2013, doi: 10.1364/OE.21.010731.

[124] P. Del'Haye, A. Schliesser, O. Arcizet, T. Wilken, R. Holzwarth, et T. J. Kippenberg, « Optical frequency comb generation from a monolithic microresonator », *Nature*, vol. 450, nº 7173, p. 1214‑1217, déc. 2007, doi: 10.1038/nature06401.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

[125] A. Benoît *et al.*, « Over-five octaves wide Raman combs in high-power picosecond-laser pumped H(2)-filled inhibited coupling Kagome fiber », *Optics Express*, vol. 23, nº 11, p. 14002‑14009, juin 2015, doi: 10.1364/OE.23.014002.

[126] W. Liang *et al.*, « Miniature multioctave light source based on a monolithic microcavity », *Optica*, vol. 2, nº 1, p. 40, janv. 2015, doi: 10.1364/OPTICA.2.000040.

[127] G. P. Agrawal, *Nonlinear Fiber Optics*. Elsevier, 1995.

[128] N. H. Burnett, H. A. Baldis, M. C. Richardson, et G. D. Enright, « Harmonic generation in CO_2 laser target interaction », *Applied Physics Letters*, vol. 31, nº 3, p. 172‑174, août 1977, doi: 10.1063/1.89628.

[129] A. Nazarkin, G. Korn, M. Wittmann, et T. Elsaesser, « Generation of Multiple Phase-Locked Stokes and Anti-Stokes Components in an Impulsively Excited Raman Medium », *Physical Review Letters*, vol. 83, nº 13, p. 2560‑2563, sept. 1999, doi: 10.1103/PhysRevLett.83.2560.

[130] N. Zhavoronkov et G. Korn, « Generation of Single Intense Short Optical Pulses by Ultrafast Molecular Phase Modulation », *Physical Review Letters*, vol. 88, nº 20, mai 2002, doi: 10.1103/PhysRevLett.88.203901.

[131] S. E. Harris et A. V. Sokolov, « Subfemtosecond Pulse Generation by Molecular Modulation », *Physical Review Letters*, vol. 81, nº 14, p. 2894‑2897, oct. 1998, doi: 10.1103/PhysRevLett.81.2894.

[132] A. V. Sokolov et S. E. Harris, « Ultrashort pulse generation by molecular modulation », *Journal of Optics B: Quantum and Semiclassical Optics*, vol. 5, nº 1, p. R1‑R26, févr. 2003, doi: 10.1088/1464-4266/5/1/201.

[133] M. Zhi, K. Wang, X. Hua, B. D. Strycker, et A. V. Sokolov, « Shaper-assisted phase optimization of a broad "holey" spectrum », *Optics Express*, vol. 19, nº 23, p. 23400, nov. 2011, doi: 10.1364/OE.19.023400.

[134] H.-S. Chan *et al.*, « Synthesis and Measurement of Ultrafast Waveforms from Five Discrete Optical Harmonics », *Science*, vol. 331, nº 6021, p. 1165‑1168, mars 2011, doi: 10.1126/science.1198397.

[135] M. Alharbi, B. Debord, M. Dontabactouny, F. Gérôme, et F. Benabid, « 17.6 THz waveform synthesis by phase-locked Raman sidebands generation in HC-PCF », in *CLEO: 2014*, San Jose, California, 2014, p. SF2N.6, doi: 10.1364/CLEO_SI.2014.SF2N.6.

[136] S. Zaitsu, C. Eshima, K. Ihara, et T. Imasaka, « Generation of a continuous-wave pulse train at a repetition rate of 176THz », *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 24, nº 5, p. 1037, mai 2007, doi: 10.1364/JOSAB.24.001037.

[137] S. Zaitsu, H. Izaki, et T. Imasaka, « Phase-Matched Raman-Resonant Four-Wave Mixing in a Dispersion-Compensated High-Finesse Optical Cavity », *Physical Review Letters*, vol. 100, nº 7, févr. 2008, doi: 10.1103/PhysRevLett.100.073901.

[138] S. Zaitsu, H. Izaki, et T. Imasaka, « Fourier synthesis of continuous-wave Raman sidebands generated through an intracavity Raman-resonant four-wave mixing », in

Licence CC BY-NC-ND 3.0

CLEO/Europe - EQEC 2009 - European Conference on Lasers and Electro-Optics and the European Quantum Electronics Conference, Munich, Germany, 2009, p. 1‑1, doi: 10.1109/CLEOE-EQEC.2009.5196568.

[139] M. Alharbi, A. Husakou, M. Chafer, B. Debord, F. Gérôme, et F. Benabid, « Raman gas self-organizing into deep nano-trap lattice », *Nature Communications*, vol. 7, nº 1, déc. 2016, doi: 10.1038/ncomms12779.

[140] M. Ziemienczuk, « Coherent Gas-Laser Interactions via Stimulated Raman Scattering in Hollow-Core Photonic Crystal Fibers », Fakultät der Universität Erlangen-Nürnberg, 2012.

[141] T. D. Bradley *et al.*, « Optical Properties of Low Loss (70dB/km) Hypocycloid-Core Kagome Hollow Core Photonic Crystal Fiber for Rb and Cs Based Optical Applications », *Journal of Lightwave Technology*, vol. 31, nº 16, p. 2752‑2755, août 2013, doi: 10.1109/JLT.2013.2273126.

[142] C. Wu, M. G. Raymer, Y. Y. Wang, et F. Benabid, « Quantum theory of phase correlations in optical frequency combs generated by stimulated Raman scattering », *Physical Review A*, vol. 82, nº 5, nov. 2010, doi: 10.1103/PhysRevA.82.053834.

[143] M. Belsley, D. T. Smithey, K. Wedding, et M. G. Raymer, « Observation of extreme sensitivity to induced molecular coherence in stimulated Raman scattering », *Physical Review A*, vol. 48, nº 2, p. 1514‑1525, août 1993, doi: 10.1103/PhysRevA.48.1514.

[144] M. G. Raymer, « Quantum state entanglement and readout of collective atomic-ensemble modes and optical wave packets by stimulated Raman scattering », *Journal of Modern Optics*, vol. 51, nº 12, p. 1739‑1759, août 2004, doi: 10.1080/09500340408232488.

[145] T. Suzuki, N. Sawayama, et M. Katsuragawa, « Spectral phase measurements for broad Raman sidebands by using spectral interferometry », *Optics Letters*, vol. 33, nº 23, p. 2809, déc. 2008, doi: 10.1364/OL.33.002809.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Contributions scientifiques

Communications à des conférences internationales à comité de lecture

D. Kergoustin, M. Alharbi, B. Debord, F. Gérôme et F. Benabid
"*Pulse-to-pulse coherence between Stokes pulses generated by stimulated Raman scattering in the transient regime*"
CLEO Europe 2017, Munich

A. Benoît, D. Kergoustin, M. Chafer, B. Beaudou, B. Debord, F. Gérôme et F. Benabid
"*Parametric four-wave mixing sidebands in strongly driven Raman molecular D_2-filled HC-PCF*"
CLEO Europe 2017, Munich

D. Kergoustin, F. Amrani, B. Debord, F. Gérôme et F. Benabid
"Infrared ultra-short pulses generation using Stimulated Raman Scattering in gas-filled HC-PCF"
CLEO Europe 2019, Munich

D. Kergoustin, F. Amrani, B. Debord, F. Gérôme et F. Benabid
"Multi-octave light source with tunable spectral profile: from supercontinuum to Raman comb spectral structure"
CLEO Europe 2019, Munich

Communications à des conférences nationales à comité de lecture

D. Kergoustin, M. Alharbi, B. Debord, F. Gérôme et F. Benabid
"*Cohérence entre impulsions Stokes consécutives générées par diffusion Raman stimulée dans le régime transitoire*"
JNOG 2017, Limoges

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Sources optiques infrarouges impulsionnelles ultra-courtes et spectralement ultra-larges générées par effet Raman dans les fibres creuses

Les fibres à cœur creux à gaine à cristaux photoniques (HC-PCF) remplies de gaz à haute pression s'avèrent être un outil efficace pour générer, par effet Raman stimulé (SRS), de larges peignes de fréquences. Ces derniers se montrent cohérents grâce au régime fortement transitoire de la SRS permettant l'amplification, depuis le niveau quantique jusqu'au niveau macroscopique, d'un unique mode spatio-temporel. Il en résulte la génération d'ondes Stokes avec une phase bien déterminée. Ces travaux de thèse ont notamment pour but d'étudier comment cette cohérence survit dans le temps, entre deux impulsions consécutives, afin d'évaluer la possibilité d'obtenir un nouveau mécanisme de verrouillage de modes. L'accent est également porté sur la versatilité de la technologie des fibres creuses remplies de gaz en proposant de nouvelles sources lasers originales. Ces sources exploitent des phénomènes non-linéaires comme l'effet Raman ou l'effet Kerr pour générer des rayonnements aussi bien sur un large spectre qu'à une longueur d'onde précise dans l'infrarouge. Enfin, la synthèse d'un train d'impulsions ultra-courtes est réalisée. La période de ce dernier est égale à l'inverse du décalage fréquentiel entre les lignes du peigne. Ce résultat est donc l'illustration parfaite de la cohérence des peignes de fréquences Raman ultra-larges ainsi générés, et est une étape de plus vers l'apparition d'un générateur de fonctions optiques. Un tel générateur serait un élément indispensable pour le processeur d'un ordinateur photonique.

Mots-clés : **Fibres creuses, diffusion Raman stimulée, peignes de fréquences, synthèse d'ondes, infrarouge**

Ultra-broad and ultra-short pulsed infrared optical sources generated by Stimulated Raman Scattering in HC-PCF

Gas-filled Hollow-Core Photonic Crystal Fibers (HC-PCF) are efficient tools regarding ultra-wide and coherent optical frequency combs by Stimulated Raman Scattering (SRS). Coherence is reached thanks to highly transient regime as it allows amplification, from quantum to macroscopic level, of a unique spatial and temporal mode (TSM). This results in the generation of Stokes waves with a well-determined phase. The present work details on which time scale coherence can subsist, between two consecutive pulses. The possibility of making a new kind of mode-lock is studied. Then the extreme versatility of gas-filled HC-PCF is illustrated by presenting different kind of new laser sources, exploiting different nonlinear phenomena as Raman and optical Kerr effects. Both ultra-broad and infrared sources are proposed. Then, ultra-short optical wave synthesis is performed. The repetition rate of these pulses is equivalent to the frequency shift of first rotational Raman transition in hydrogen, perfectly showing that ultra-wide Raman frequency combs are coherent. This result is a new step regarding an all-optical waveform generator. Such a device would be of major importance in a future photonic computer.

Keywords: **Hollow-core fibers, Stimulated Raman Scattering, frequency combs, wave synthesis, infrared**