**UNIVERSITÉ DE LIMOGES**

ÉCOLE DOCTORALE n°4
Sciences et Ingénierie des Systèmes, Mathématiques, Informatique

FACULTÉ DES SCIENCES ET TECHNIQUES
INSTITUT DE RECHERCHE XLIM – UMR 7252

# Thèse

pour obtenir le grade de

**DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE LIMOGES**

**Discipline : Électronique des Hautes Fréquences, Photonique et Systèmes**

présentée et soutenue par

**Christophe Louot**

le 07 février 2018

# Sources de supercontinuum pour la microspectroscopie Raman cohérente large-bande

**Thèse dirigée par Vincent Couderc et Dominique Pagnoux**

**Composition du Jury :**

| | |
|---|---|
| **Christophe FINOT**, Professeur des Universités<br>Laboratoire Interdisciplinaire Carnot de Bourgogne (ICB), Université de Bourgogne | Rapporteur |
| **Alexandre KUDLINSKI**, Professeur des Universités<br>Laboratoire de Physique des Lasers, Atomes et Molécules (PhLAM), Université de Lille 1 | Rapporteur |
| **Marc HANNA**, Chargé de Recherche au CNRS<br>Laboratoire Charles Fabry, Institut d'Optique Graduate School | Examinateur |
| **Vincent KERMENE**, Directeur de Recherche au CNRS<br>Institut de Recherche XLIM | Examinateur |
| **Vincent COUDERC**, Directeur de Recherche au CNRS<br>Institut de Recherche XLIM | Examinateur |
| **Dominique PAGNOUX**, Chargé de Recherche au CNRS<br>Institut de Recherche XLIM | Examinateur |
| **Badr M. SHALABY**, Ingénieur R&D<br>SILLTEC | Invité |

« *Apprendre sans réfléchir est vain. Réfléchir sans apprendre est dangereux.* » *Confucius*

« *L'échec est le fondement de la réussite.* » *Lao Tseu*

## Le chercheur, le crack et le cancre

La plus grande désillusion de ma carrière scientifique, je l'ai éprouvée à ses débuts. Après des études secondaires et universitaires sans difficulté, qui m'avaient insufflé quelque confiance en mes capacités, j'abordais, en doctorat de troisième cycle, la recherche. Pour la première fois, il m'était demandé de résoudre un problème, fort limité certes, mais dont personne, pas même mon directeur de thèse, ne connaissait la solution, ni la voie d'attaque précise ; l'existence même de cette solution n'était pas garantie. Situation radicalement différente de celle des exercices scolaires, dont il est convenu qu'ils ont une solution, que le prof la connaît, et dont on sait quelle partie du cours elle met en jeu... Pris au dépourvu, je dus faire la douloureuse expérience de mes limites intellectuelles. Après plusieurs mois, j'étais à deux doigts de renoncer à poursuivre une carrière scientifique si mal engagée, quand je compris enfin que je faisais l'apprentissage de ce qu'est un véritable travail de recherche, et que ce passage à vide était une initiation professionnelle.

Non que les choses aient changé beaucoup depuis. Toute nouvelle entreprise de recherche me replonge immédiatement dans cet état d'humiliante précarité mentale. À l'opposé de toutes les images d'Épinal, qui montrent la recherche scientifique comme un archétype de travail méthodique, conquête systématique et contrôlée de l'inconnu, c'est l'errance et la contingence qui y sont la règle. Précisément parce qu'il cherche ce qu'il ne connaît pas, le chercheur ne peut que passer le plus clair de son temps à explorer de fausses pistes, à suivre des intuitions erronées, à se tromper : la plupart des calculs théoriques sont incorrects, la plupart des manipulations expérimentales sont ratées — jusqu'au jour où...

Ainsi, le travail du chercheur professionnel ne ressemble-t-il en rien à celui du bon élève qu'il a sans doute été, et dont il a dû abandonner la trompeuse confiance en soi. Il lui a fallu dépouiller la peau du crack pour endosser celle du cancre : le chercheur, dans sa pratique effective, ressemble beaucoup plus au « mauvais » qu'au « bon » élève. Son seul avantage sur les laissés-pour-compte de la science scolaire est qu'il sait la nécessité et l'inéluctabilité de cette longue traversée de l'erreur, de cette confrontation avec les limites de sa propre intelligence. Pourquoi donc, à l'école, ne présentons-nous pas ainsi la science, telle qu'elle se fait ? Les élèves les plus en difficulté n'y trouveraient-ils pas quelque réconfort mental ? Peut-être même, à aller recruter les futurs chercheurs parmi les étudiants en science les moins doués, leur économiserions-nous cette douloureuse phase d'initiation qui en stérilise plus d'un.

À quand un certificat d'aptitude professionnelle à la recherche où l'on ne serait admis qu'au-dessous de la moyenne ?

Jean-Marc Lévy-Leblond, *Impasciences* [1].

# Remerciements

Je tiens avant toute chose à remercier le Directeur de l'Institut de Recherche XLIM, **Dominique BAILLARGEAT**, pour m'avoir accueilli dans son établissement et pour l'ensemble de ces échanges fructueux que l'on a pu avoir au sein du Conseil de Laboratoire où j'avais le plaisir de représenter mes collègues doctorant.e.s. Je remercie également les Directeurs successifs de l'Ecole doctorale 521, **Dominique CROS** et **Bernard JARRY**, qui bien involontairement aura rendu mon dernier Conseil de l'ED exceptionnel par son choix de restaurant, ainsi que tous les membres de ce conseil et tout le personnel du Collège Doctoral de Site.

J'exprime toute ma gratitude à **Christophe FINOT** et **Alexandre KUNDLINSKI** pour avoir accepté de rapporter cette thèse, ainsi qu'à **Marc HANNA** d'avoir accepté d'en être examinateur. Je remercie également **Vincent KERMENE** d'avoir endossé le rôle de Président du jury.

La thèse est une aventure à la fois scientifique et humaine. Au-delà de mes trois ans au laboratoire, ce diplôme clôt les huit années que j'ai passées à la FST et durant lesquelles j'ai eu plaisir à discuter avec toutes les personnes que j'ai pu rencontrer ici. Puisque je ne gagnerai certainement jamais d'Oscar, je vais profiter de cette occasion unique pour saluer toutes les personnes qui auront égayé mon parcours d'étudiant à la FST et fait de moi le doctorant que j'ai été. Ces remerciements risquant d'être longs, je conseille à toutes celles et ceux qui veulent simplement vérifier que leur nom apparait de télécharger la version PDF et de faire un *Ctrl+F*. S'ils ne le trouvent pas, je m'en excuse car c'est certainement un oubli que je les laisse compenser à l'aide du texte à trou qui se trouve à la fin de ces remerciements.

Pour commencer, je tiens à remercier chaleureusement ceux sans qui cette thèse n'aurait pas vu le jour : mes deux directeurs, **Vincent COUDERC** et **Dominique PAGNOUX**, qui m'ont accepté avec mes qualités et mes défauts. Ils ont réussi à me remobiliser quand la motivation s'atténuait et je n'aurais travaillé avec d'autres encadrants pour rien au monde. Leur duo fonctionne à merveille, Dominique était toujours là pour me montrer le verre à moitié plein quand je le voyais à moitié vide, et Vincent pour me prouver qu'il était toujours possible de remplir ce verre.

Je remercie également **Nathalie BUISSON**, la super secrétaire de l'Axe Photonique qui a toujours tout fait pour nous faciliter la vie. À vrai dire, elle est bien plus que notre secrétaire : elle est toujours disponible pour nous écouter, nous réconforter ou encore nous conseiller. Elle est une source inépuisable d'informations officielles ou croustillantes (ou de manière plus exceptionnelle, les deux à la fois) et elle est sans doute, à l'heure de bilan, celle que je regretterai le plus en

quittant le laboratoire.
Je salue amicalement tous les permanents de l'Axe Photonique que j'ai eu plaisir à côtoyer pour le travail ou pour des moments de détente autour de viennoiseries, d'une piste de bowling ou encore d'un quiz de culture générale : A**lessandro TONELLO**, **Philippe LEPROUX**, **Claire LEFORT**, **Agnès DESFARGES-BERTHLEMOT**, **Alain BARTHELEMY**, **François REYNAUD**, **Ludovic GROSSARD**, **Laurent DELAGE**, **Philippe DI BIN** et **Marc FABERT**. Je salue également les permanents du côté Phot-Fibres qui ne manquaient jamais de complimenter mes T-shirts et cravates, et que je n'aurai pas l'occasion de citer dans la suite de ces remerciements : **Philippe ROY**, **Georges HUMBERT**, **Jean-Louis AUGUSTE**.

Je remercie également les post-docs passés par le pôle Photonique et avec lesquels j'ai eu la chance de travailler, à commencer par la petite dernière **Nawel OULD MOUSSA** dont la bonne humeur est devenue légendaire dans l'équipe. Je remercie aussi le super trio qui était là à mon arrivée : **Alexis LABRUYERE**, **Badr SHALABY** et K**asia KRUPA**. Je les remercie pour leur aide permanente et pour leur accueil dans l'équipe qui étonnamment s'est fait à l'autre bout du monde, au détour d'une conférence aux États-Unis. Quelle chance j'ai eu d'avoir pu vivre cette semaine d'intégration exceptionnelle !
J'exprime également toute ma gratitude à **Hideaki KANO** de m'avoir accueilli à l'Université de Tsukuba au Japon en décembre 2015. *Domo arigato gozaimasu Kano Sensei !*
Je remercie également **Stéphane HILAIRE** de m'avoir si souvent aidé lorsque je me rendais à *LEUKOS* pour quelques soudures de fibres.

Je me dois également de saluer **Alexandra ELBAKYAN** dont la lutte pour l'accès libre aux contenus scientifiques est d'une importance capitale. L'étude bibliographique présentée dans ce manuscrit n'aurait pu être menée sans son action remarquable.

Durant mes deux années d'enseignement, d'abord comme vacataire puis comme DCACE, j'ai eu l'occasion de rencontrer beaucoup de monde. Je remercie avant tout **Sylvie FOUCAUD** et **Anne BROUARD** pour leur excellente gestion des DCACE et **Thierry TRIGAUD**, en tant que responsable du département Physique. Je remercie également toutes celles et ceux avec qui j'ai eu la chance de travailler, à commencer par **Claire DARRAUD** , qui m'a témoigné à maintes reprises sa confiance et son plaisir, évidemment partagé, de travailler avec moi. Je remercie également **Julien BREVIER**, **Frédéric LOURADOUR**, **Johann BOUCLE**, **Pierre BLONDY**, **Sébastien FEVRIER** ou encore **Michel CAMPOVECCHIO**.
J'ai une pensée particulière pour **Claire DALMAY** qui m'a fait confiance pour la remplacer alors qu'elle attendait un heureux événement et qui a pris le temps de me préparer à ces TP dont je ne maitrisais pas grand-chose en arrivant, et pour **Jean-Michel NEBUS** qui m'a accueilli dans cette UE et m'a tout de suite accordé sa confiance. Je remercie également **Mathieu JOSSENT**, qui m'a excellemment remplacé dans mes enseignements lorsque j'étais au Japon et **Ettien KPRE** grâce à qui l'électronique de L2 n'a plus de secret pour moi, ainsi que **Thierry HAK** et **Armand PASSELERGUE**, sans qui je n'aurai jamais été au bout d'une seule séance de TP d'électronique (quel plaisir de pouvoir compter sur des garçons comme eux lorsque l'on

débute !).

Puisque je parle d'enseignement, je remercie également **Danielle ROUSSET** et **Agnès GERMOT**, qui m'ont toutes les deux embauché au tutorat en L3 et M1, et m'en ont confié la responsabilité pour le portail SI. Je garde un excellent souvenir de cette période, qui fut ma première expérience d'enseignement. J'ai eu l'occasion grâce au tutorat de nouer des relations amicales avec des chercheurs comme **Fabien REMONDIERE** ou **Jean-René DUCLERE**, que je tiens à remercier.

Mes derniers remerciements de la catégorie enseignement sont naturellement dirigés vers **Françoise COSSET**. L'UE partagée avec elle m'a appris la rigueur et m'a imposé un rythme soutenu de correction. Tout cela a été possible grâce à son inconditionnel soutien que j'avais la joie de constater quotidiennement. J'apprécie particulièrement le temps que Françoise m'aura accordé pour préparer ma soutenance, ses conseils tant en enseignement qu'en recherche et l'écoute dont elle a su faire preuve, notamment dans la modification des fascicules de TP. Merci infiniment Françoise pour tout ce que tu as fait pour moi !

J'ai croisé tellement de personne au laboratoire qu'il m'est impossible de tous les citer. J'ai une pensée pour tous ceux qui m'ont aidé durant ma thèse comme **Sébastien ROUGIER** (pour toutes les images MEB demandées) et pour toutes celles et ceux avec lesquels j'ai pu entretenir des relations amicales et notamment **Yolande VICIELI**, **Annie NICOLAS**, **Bernadette TALABOT**, **Arnaud BEAUMONT**, **Guy ENRIQUEZ**, **Clémence HELIE**, **Saloi NACHAT**, **Damien PASSERIEUX** ou encore **Damien SAUVERON**.

En dehors du laboratoire, j'ai aussi eu la chance de côtoyer des personnes d'exception, desquelles je garde en souvenir des heures de discussions à refaire le monde, que ce soit **Arlette COLOMBIER** et **Catherine QUANTY** à l'accueil, **Virginie BARTHELEMY** à la scolarité (pour son sourire, sa bonne humeur et nos trafics de valises), **Brigitte PEYTOUR** à l'administration (sans qui je n'aurai pas acquis ma souris verticale qui a créé tant de curiosité au laboratoire), **Raymond TEREINO** et **Bruno DEMAY** (toujours prêts à rendre service) ou encore **Sandrine VERDEAUX** et **Patricia ALADAME** (pour la visite hebdomadaire que j'attendais, elles qui prennent tant soin de « leurs » doctorant.e.s). Parmi les rencontres plus récentes, je tiens à remercier **Valérie LEGROS** de m'avoir associé à la création du dispositif de « lutte contre le harcèlement sexuel et les violences sexistes » de l'Université de Limoges. Cette thématique me tient particulièrement à cœur et nous avons la chance d'avoir quelqu'un comme Valérie pour s'attaquer à ces problématiques.

Et comment ne pas citer **Martine LANIQUE** ? Elle qui m'a subi pendant cinq années avant de m'abandonner lâchement pour vivre une retraite certes méritée mais qui a laissé un grand vide dans mes journées. Je n'imaginais pas un jour sans passer prendre un café à son accueil en arrivant. Sans elle, je n'aurai pas connu toute l'Histoire (ni toutes les petites histoires) de la FST.

Durant ma thèse, j'ai eu à cœur de participer au maximum aux événements de communication du laboratoire et de la FST. C'est l'occasion de remercier toutes les personnes que j'ai pu y

croiser et que je n'ai pas encore citées. Il y a tout d'abord **Annie BESSAUDOU** à XLIM pour son aide régulière dans les projets fous que j'ai pu imaginer et durant les conseils de laboratoire quand je ne comprenais rien aux acronymes utilisés. Il y a également toutes celles et ceux avec qui j'ai lancé il y a quelques années les visites des salles de TP pendant les JPO de l'Université : **Fabrice LALLOUE** et **Benoit CRESPIN**, ainsi que **Raphaël JAMIER**, qui nous a toujours aidé à préparer ses visites et m'a fait suffisamment confiance pour m'en confier la gestion. Un mot aussi sur la super **Isabelle RIGBOURG**, qui m'a toujours associé aux événements de la communication avec la plus grande des confiance, et dont le soutien pour mon nouveau projet professionnel me touche énormément.

Je remercie également tous les doctorant.e.s et post-doctorant.e.s que j'ai pu fréquenter durant toutes ces années :

- Celles et ceux qui me subissent depuis au moins la licence : **Frédérique SIMBELIE**, **Anthony DISSERAND**, **Johann SENCE**, **Pierre LECLERC** et **Xavier ROMAIN** que je ne voulais pas oublier même s'il n'a pas fait sa thèse à XLIM ;
- Celles et ceux de l'Axe Photonique pour nos aventures en déplacements et nos rires au laboratoire : **Raphaël FLORENTIN**, **Damien POMAREDE**, **Dia DARWICH**, **Rémi DU JEU**, **Colman BUCKLEY**, **Jérémy SAUCOURT**, **Maryna KUDINOVA**, **Patrick CADROAS**, **Baptiste LECONTE**, **Philippe BIREMBAUX** et toute l'équipe de GPPMM dont c'est toujours un plaisir de se moquer gentiment ;
- Mais également les deux avec qui j'ai partagé mon bureau en début de thèse, **David MOREAU** et **Erwan CAPITAINE**. David pour avoir partagé nos inquiétudes de débutants, pour m'avoir empêché de choisir un autre sujet de thèse et pour l'invention du « Keyboc ». Erwan pour avoir partagé nos connaissances sur ce vaste sujet qu'est la spectroscopie CARS, pour m'avoir donné l'occasion de réinventer mon sujet et pour la solidarité dont il a su faire preuve durant les moments difficiles de nos déplacements professionnels communs.

J'en profite pour saluer toutes celles et ceux qui ont le courage de s'accrocher à leur volonté d'épouser une carrière académique, malgré les difficultés de plus en plus pesantes sur le monde de l'Enseignement Supérieur, de la Recherche et de l'Innovation. Les postes de plus en plus difficiles à obtenir, les baisses de budgets répétées qui ne feront qu'accroitre la précarité des jeunes chercheurs et compliquer le financement de projets, auront eu raison de ma motivation. Je leur souhaite à toutes et tous de trouver le poste de MCF ou de CR qu'elles et ils méritent.

Pour finir, il me reste à adresser quelques messages plus personnels :

- À mes parents, mes beaux-parents et tous les membres de ma famille qui ont fait l'effort de s'intéresser à ce que je faisais, même si ça les dépassait bien souvent. Merci pour tous vos encouragements ;
- À **Gina** et **Gilbert**. Merci de m'avoir accueilli si naturellement, d'avoir toujours pris des nouvelles de moi et de m'avoir tant de fois invité à partager d'agréables moments en votre compagnie ;

- À ma super déléguée **Corinne MARTIN** et mon extraordinaire binôme **Thomas GORNET**. Mes activités à *SOS homophobie* à vos côtés, en parallèle de ma thèse ont été une véritable respiration. Je suis bien triste de devoir vous quitter ;
- À **Geoffrey POTEL**. Merci à toi de m'avoir soutenu et surtout, d'avoir toujours répondu à mes exigences, même les plus extravagantes, dans la réalisation d'affiches de thèse pour mes amis. Ton talent m'aura bien servi, mais je te promets d'apprendre à utiliser des logiciels de retouche photo pour ne plus avoir à t'embêter ;
- À **Frédéric MATIGOT**, **Pierrick MÉAUX**, **Charles BALLAGE**, **Eyande CHAINI** et **Alexis BOULAIZ**. Merci à vous cinq de m'avoir accompagné à différents moments de ma vie. Je ne serais sans doute pas arrivé où j'en suis sans votre amitié ;
- À **François DAVID**, un super mec que j'ai eu l'honneur de rencontrer à XLIM. Nos innombrables pauses café m'ont fait plus de bien que tu ne l'imagines. Et notre super duo d'enseignant restera gravé dans ma mémoire ;
- À **Benoit LESUR** et **Anaël LOHOU**, que je connais depuis bien longtemps maintenant. Ensemble depuis la SI-5, et alors que je n'aurai jamais fait de Physique sans vous, la thèse aura été l'occasion de nous retrouver.

  Anaël, cette dernière année de thèse n'aurait pas été la même sans toi, c'était un plaisir de partager tous ces moments ensemble ! Je remercie *Zodiac Data Systems* (entre autres) pour t'avoir imposé la poursuite de ta thèse à Limoges, à la suite de quoi j'ai pu te redécouvrir. J'ai eu la chance de toujours pouvoir compter sur toi, et en particulier le jour de ma soutenance, qui n'aurait pu avoir lieu sans ton aide précieuse. Tu pourras compter sur moi pour t'aider pour la fin de ta thèse.

  Benoit, je peux t'assurer que je mesure pleinement la valeur des moments que tu m'accordais systématiquement lors de tes passages à Limoges. Toutes ces discussions sur nos vies, sur nos thèses m'ont fait énormément de bien et m'ont apporté quand il le fallait le réconfort nécessaire. Ta soutenance de thèse aura été un exemple de perfection, que j'ai pris comme modèle à l'approche de la mienne. Je peux le dire maintenant, *Lesur ne fait pas qu'assurer, il rassure aussi* ;
- À **Florian PICTON**. Je te remercie sincèrement pour ta présence et ta bonne humeur, qui auront égayé ma dernière année de thèse. Tous ces moments passés avec toi et LUI n'ont été que des successions de joies, de rires et rien ne me réjouit davantage que de savoir qu'il y en aura tant d'autres. C'est comme si je te connaissais depuis toujours. Il est rare de tomber sur des mecs aussi bien alors je le remercie de t'avoir trouvé et de m'avoir permis de te rencontrer ;
- Et enfin, à **Jérémy VIZET**. Que dire de toi ? Il est parfois des *bromances* qui ne s'expliquent pas. Il y avait Tic et Tac, il y avait Rox et Rouky, il y a maintenant toi et moi. Tu es la personne qui m'inspire le plus d'admiration et dont je ne pourrais plus me passer. Tous ces moments passés avec toi resteront inoubliables, alors que l'on a partagé tous les bons et les mauvais moments de nos vies depuis ce jour de juin 2014, de l'autre côté de l'Atlantique, où l'on est devenu inséparable. Depuis, tu as rejoint Paris pour vivre de formidables aventures professionnelles et humaines. J'ai regretté chaque jour d'être si loin de toi alors que tu avais

parfois besoin d'aide et que moi, j'avais inexorablement besoin de toi. Partager mon bureau avec toi restera comme l'un de mes meilleurs souvenirs au laboratoire. Une chose est sûre, pour différentes raisons, cette thèse n'aurait jamais été soutenue si tu n'avais pas été là. Et pour tout cela, tu resteras à jamais mon ami. ≪ *Parce que c'était lui, parce que c'était moi* ≫.

Et pour finir, un très grand merci à _____ avec qui j'ai partagé tant de bons moments.

# Sommaire

**Introduction générale** **19**

**Partie I : La générération de supercontinuum appliquée à la spectroscopie Multiplex-CARS** **27**

**1 La Spectroscopie CARS** **29**
1.1 La spectroscopie Raman . . . . . 30
1.1.1 La diffusion Raman . . . . . 30
1.1.2 La Spectroscopie Raman . . . . . 31
1.2 La Spectrosopie CARS . . . . . 32
1.2.1 Principe de la spectroscopie CARS . . . . . 32
1.2.2 Analyse d'échantillons biologiques par spectroscopie CARS . . . . . 34
1.2.2.1 Bandes spectrales d'intérêt . . . . . 34
1.2.2.2 La spectroscopie Multiplex-CARS . . . . . 35
1.2.3 La problématique du fond non résonnant . . . . . 36
1.2.4 Méthode CARS évoluées pour s'affranchir du fond non résonnant . . . . . 37
1.2.4.1 Polarized-CARS . . . . . 38
1.2.4.2 Box-CARS . . . . . 39
1.2.4.3 Epi-CARS . . . . . 39
1.2.4.4 Electro-CARS . . . . . 40
1.2.4.5 CARS résolu en temps femtoseconde . . . . . 40
1.2.5 Amélioration de la résolution spectrale en régime (sub)nanoseconde . . . . . 41
1.3 Choix de la méthode spectroscopique . . . . . 42
1.4 Mise en place d'un système de spectroscopie M-CARS subnanoseconde . . . . . 43
1.4.1 Etat de l'art de la spectroscopie Multiplex-CARS nanoseconde . . . . . 43
1.4.2 Cahier des charges d'une source large-bande pour le M-CARS . . . . . 46

**2 Génération de supercontinuum** **49**
2.1 Les sources lasers pour la génération de supercontinuum . . . . . 51
2.1.1 Généralités sur les lasers . . . . . 51
2.1.1.1 Mécanismes électroniques d'absorption et d'émission . . . . . 52
2.1.1.2 Inversion de population et pompage . . . . . 53
2.1.1.3 Constitution d'une cavité laser . . . . . 55
2.1.1.4 Les différents milieux amplificateurs . . . . . 56
2.1.2 Modes de fonctionnement des lasers impulsionnels . . . . . 58
2.1.2.1 Le blocage de mode . . . . . 58
2.1.2.2 La commutation de gain ou commutation-Q . . . . . 59

2.2 Propagation de la lumière dans les fibres optiques . . . . . 63
2.2.1 Fibres optiques classiques . . . . . 64
2.2.1.1 Profil d'indice de réfraction d'une fibre optique . . . . . 64
2.2.1.2 Modes de propagation dans les fibres optiques . . . . . 65
2.2.1.3 Fibres optiques multimodes . . . . . 69
2.2.2 Phénomènes linéaires de propagation dans les fibres . . . . . 71
2.2.2.1 Atténuation . . . . . 71
2.2.2.2 Biréfringence et polarisation de la lumière dans les fibres en régime monomode . . . . . 72
2.2.2.3 Dispersion des impulsions dans les fibres optiques . . . . . 74
2.2.3 Fibres optiques microstructurées . . . . . 79
2.2.3.1 Description et nature du guidage dans les fibres microstructurées air/silice . . . . . 79
2.2.3.2 Contrôle du zéro de dispersion dans les fibres microstructurées . . . 83
2.3 Propagation non linéaire dans les fibres optiques . . . . . 85
2.3.1 Effet Kerr . . . . . 86
2.3.1.1 Modulations de phase . . . . . 86
2.3.2 Mélanges paramétriques . . . . . 87
2.3.2.1 Mélange à quatre ondes . . . . . 87
2.3.2.2 Instabilités de modulation . . . . . 88
2.3.3 Effet Raman . . . . . 88
2.3.4 Effets solitoniques . . . . . 90
2.3.4.1 Autodécalage fréquentiel de solitons . . . . . 91
2.3.4.2 Génération d'ondes dispersives . . . . . 92
2.3.4.3 Fission de solitons . . . . . 92
2.3.5 Impact du régime de dispersion de la fibre sur l'élargissement spectral . . . 93
2.4 État de l'art de la génération de supercontinuum . . . . . 94
2.4.1 Historique de l'élargissement spectral dans différents matériaux . . . . . 94
2.4.1.1 Les matériaux pour la génération de supercontinuum . . . . . 95
2.4.1.2 Élargissement spectral dans les fibres optiques . . . . . 97
2.4.2 Bilan sur la génération de supercontinuum dans les fibres optiques dans le proche infrarouge pour la spectroscopie M-CARS . . . . . 99

**Partie II : Nouvelles sources large-bandes en régime subnanoseconde 103**

**3 Élargissement spectral dans les fibres microstructurées dopées aux terres rares 105**
3.1 Les fibres optiques microstructurées . . . . . 107
3.1.1 Dopage de fibres optiques aux terres rares . . . . . 107
3.1.1.1 Intérêt du dopage aux terres rares . . . . . 107
3.1.1.2 Techniques de fabrication d'une fibre optique microstructurée à coeur dopé . . . . . 109
3.1.1.3 Utilisation de l'Ytterbium pour l'amplification à 1064 nm . . . . . 110
3.1.2 Élargissement spectral dans les fibres optiques microstructurées amplificatrices 111
3.2 Présentation des éléments constituant la source de supercontinuum . . . . . 113
3.2.1 Source laser de signal . . . . . 113
3.2.2 Diode laser de pompe . . . . . 114
3.2.3 Paramètres de la fibre microstructurée active . . . . . 115
3.2.3.1 Microstructure et taux de dopage . . . . . 115

3.2.3.2 Zéro de dispersion de la fibre . . . 116
3.3 Génération de supercontinuum dans la fibre FMAS-Yb . . . 117
3.3.1 Formation du spectre large sans amplification . . . 118
3.3.2 Impact de l'amplification sur l'élargissement spectral . . . 119
3.3.3 Étude spectral . . . 122
3.3.4 Synchronisation des composantes spectrales du supercontinuum . . . 125
3.4 Conclusion sur la mise au point d'une source de supercontinuum basée sur l'emploi d'une fibre optique microstructurée amplificatrice pour la spectroscopie M-CARS 127

**4 Elargissement spectral dans les fibres standards par diffusion Raman stimulée 129**
4.1 Effet Raman cascadé . . . 130
4.1.1 Principe de la diffusion Raman stimulée . . . 130
4.1.2 Effet de cascade Raman . . . 132
4.2 Génération de supercontinuum par cascade Raman dans une fibre optique monomode passive conventionnelle . . . 134
4.2.1 Montage expérimental . . . 134
4.2.1.1 Source laser de signal . . . 134
4.2.1.2 Description de la fibre SMF-Ge . . . 135
4.2.2 Étude spectrale du supercontinuum généré dans la fibre SMF-Ge . . . 136
4.2.3 Étude spectrotemporelle du supercontinuum généré dans la fibre SMF-Ge . 139
4.2.4 Conclusion sur l'utilisation de la fibre SMF-Ge pour l'élargissement spectral 141
4.3 Génération de supercontinuum par cascade Raman dans une fibre optique multimode passive conventionnelle . . . 144
4.3.1 Nettoyage spatial par effet Kerr . . . 144
4.3.2 Montage expérimental . . . 146
4.3.2.1 Source laser de signal . . . 146
4.3.2.2 Description de la fibre MMF-Ge . . . 146
4.3.3 Étude spectrale du supercontinuum généré dans la fibre MMF-Ge . . . 147
4.3.4 Étude spatiale du supercontinuum généré dans la fibre MMF-Ge . . . 149
4.3.5 Étude spectrotemporelle du supercontinuum généré dans la fibre MMF-Ge . 150
4.3.6 Étude temporelle du rayonnement de sortie à 1064 nm . . . 152
4.3.7 Conclusion sur l'utilisation de la fibre MMF-Ge pour l'élargissement spectral 154

**Conclusion générale et perspectives 156**

**Annexes 161**

**A Éléments de théorie sur la dispersion du matériau et la dispersion du guide 163**
A.1 Rappel de l'expression de la dispersion chromatique . . . 163
A.2 Dispersion du matériau . . . 164
A.3 Dispersion du guide . . . 164

**B Configuration électronique des lanthanides 167**

**C Génération de second harmonique dans la fibre SMF-Ge 171**
C.1 Principe de la génération de second harmonique . . . 171
C.2 Étude de la génération de second harmonique dans la fibre SMF-Ge . . . 172

**Production scientifique et bibliographie** **177**

**Production scientifique** **179**

**Bibliographie** **182**

# Introduction générale

La compréhension fine du fonctionnement cellulaire constitue un enjeu considérable pour divers domaines de la biologie, en particulier en vue de l'élucidation des mécanismes de développement de nombreuses pathologies. Pour concourir à cela, il est important de pouvoir identifier, localiser voire suivre certaines biomolécules (lipides, glucides, protéines, etc.) qui interviennent aux niveaux structurels ou fonctionnels dans les organismes vivants.

C'est pourquoi, au cours des dernières décennies, de nombreuses techniques d'imagerie cellulaire ont été développées. Cependant, le repérage de molécules spécifiques se fait la plupart du temps grâce à l'emploi de marqueurs possédant des fonctionnalités spécifiques comme les fluorophores capables d'émettre de la lumière lorsqu'ils sont excités par un rayonnement à plus courte longueur d'onde. L'inconvénient considérable de l'emploi de ces produits de contraste exogènes est qu'ils sont susceptibles de perturber l'environnement de la cellule ou son propre fonctionnement, jusqu'à être franchement nocifs pour nombre d'entre eux.

À partir de ce constat, des recherches récentes se sont focalisées sur la mise au point de techniques d'imagerie sans marquage. C'est le cas de l'imagerie ultra-sonore ou de l'imagerie par résonance magnétique qui permettent de caractériser des tissus via des mesures de densité avec de grandes profondeurs de pénétration, mais qui n'offrent pas une résolution suffisante pour des analyses à l'échelle cellulaire. Les techniques optiques d'imagerie de fluorescence endogène possèdent quant à elle une meilleure résolution, même si les courtes longueurs d'onde d'excitation, vers le bleu, ne permettent pas d'atteindre des profondeurs de pénétration importantes. Cette profondeur peut être accrue sensiblement au-delà d'une centaine de microns en microscopie de fluorescence multiphotonique (fluorescence à deux ou à trois photons) où les longueurs d'onde d'excitation se situent dans l'infrarouge. En outre, le phénomène de fluorescence multiphotonique ne pouvant se produire qu'à très forte puissance d'excitation, il n'a lieu que dans le volume focal de l'objectif du microscope, améliorant ainsi très nettement les résolutions transverse et axiale (sectionnement optique) des images. Malheureusement, aucune donnée sur la composition chimique de l'élément sous test ne peut être obtenue au-delà de la détermination de sa forme et de ses contours physiques.

Pour contourner ces limitations et identifier un plus grand nombre de molécules, à l'échelle cellulaire, sans marquage, on peut se tourner vers les techniques d'imagerie basées sur l'excitation de résonnances vibrationnelles des molécules d'intérêt. L'excitation de ces résonnances provoque des phénomènes d'absorption infrarouge ou de diffusion Raman qui peuvent être détectés par spectroscopie. La spectroscopie Raman fondée sur ce procédé consiste donc à détecter les

différentes raies dans le spectre de l'onde qui est diffusée par le milieu, ce qui permet de remonter à la constitution moléculaire de l'élément.

Lorsque l'on excite une molécule à une longueur d'onde lumineuse monochromatique $\lambda_0$ avec une puissance supérieure à un seuil dépendant de cette molécule (seuil Raman), celle-ci entre en vibration à une fréquence $\delta\nu$ qui lui est propre de sorte que l'onde optique renvoyée aura subi un décalage fréquentiel $\delta\nu$ (décalage Raman [1]) mesurable via la mesure de la longueur d'onde $\lambda$ de cette onde renvoyée :

$$\frac{\delta\nu}{c} = \frac{1}{\lambda_0} - \frac{1}{\lambda} \tag{1}$$

Cependant, la spectroscopie Raman souffre de deux inconvénients que sont une puissance d'excitation élevée et un temps d'exposition important.

Un moyen d'augmenter sensiblement les puissances détectées est de mettre en œuvre une technique de microspectroscopie Raman cohérente. Dans ce cas, l'excitation de l'échantillon est réalisée par le battement entre une onde optique à une longueur d'onde $\lambda_P$ (onde de pompe) et une onde à la longueur d'onde $\lambda_S$ (onde Stokes). Lorsque la différence de fréquence entre ces deux ondes correspond à la fréquence de résonance de liaisons moléculaires identiques dans le milieu, celles-ci sont excitées de manière cohérente. Dans ces conditions, leur interaction avec un photon à la longueur d'onde $\lambda_P$ donne naissance à un photon à la longueur d'onde $\lambda_{AS}$ telle que $\lambda_{AS} = \lambda_P - (\lambda_S - \lambda_P) = 2\lambda_P - \lambda_S$ (onde anti-Stokes). C'est la détection du rayonnement à la longueur d'onde $\lambda_{AS}$, beaucoup plus intense que la raie Raman correspondante, qui permet d'identifier les liaisons moléculaires. Cette technique est appelée « *Coherent Anti-Stokes Raman Scaterring spectroscopy* » ou spectroscopie CARS.

À ce stade, la microspectroscopie Raman cohérente classique ne peut permettre la détection que d'une seule liaison chimique, sélectionnée par l'intermédiaire du couple de longueur d'onde utilisé pour exciter l'échantillon. Pour permettre la détection simultanée d'un ensemble de liaisons chimiques, il faut remplacer l'onde Stokes monochromatique par une onde à large spectre. Associée à une onde de pompe quasi-monochromatique, cette nouvelle onde Stokes permet de créer une multitude de couples de longueurs d'onde et ainsi de détecter la multitude de liaisons chimiques correspondantes (microspectroscopie Raman cohérente large-bande ou CARS multiplex, souvent connue sous le nom de « M-CARS »). Pour une analyse efficace, l'onde Stokes doit avoir un spectre suffisamment étendu pour détecter à la fois l'essentiel des raies caractéristiques des vibrations nécessaires à identifier la nature de l'échantillon (« zone d'empreinte digitale », 800 $cm^{-1}$ – 1800 $cm^{-1}$) et d'autres raies autour de 3000 $cm^{-1}$, où l'on retrouve les signatures des liaisons Hydrogène, marqueurs de la présence de lipides et de protéines (utile pour localiser le cytoplasme ou la membrane d'une cellule biologique).

Ce spectre large-bande est la plupart du temps engendré dans un milieu non-linéaire pompé à forte puissance par une onde monochromatique. La combinaison des effets non linéaires de diverses natures qui interviennent dans ce milieu engendre un élargissement spectral qui peut aboutir à la création d'un « supercontinuum », c'est-à-dire à une onde lumineuse à très large

1. Le décalage Raman est en général défini comme étant le rapport $\delta\nu$/c exprimé en $cm^{-1}$.

spectre. L'un des milieux favoris pour engendrer un supercontinuum est une fibre optique, qui confine strictement les ondes mises en jeu (condition nécessaire au développement d'effets non linéaires substantiels) sur de très grandes longueurs d'interaction. Si la fibre est monomode aux longueurs d'onde du supercontinuum émergeant de la fibre, celui-ci présente alors les caractéristiques de cohérence spatiale et de directivité d'un faisceau laser tout en étant très large bande.

La nature dispersive de la fibre, due à la dispersion du matériau qui la constitue et au phénomène de guidage, provoque un étalement temporel des composantes spectrales du continuum. Cette dispersion chromatique est qualifiée de normale ou d'anormale suivant que les grandes longueurs d'onde voyagent respectivement plus vite ou moins vite que les courtes. Le régime de dispersion dans lequel se propage une onde polychromatique dépend de la longueur d'onde et des caractéristiques optogéométriques de la fibre. Il a une très grande influence sur la nature des effets non linéaires qui vont intervenir et donc sur la manière dont le supercontinuum va se construire ce qui, au final, va déterminer les caractéristiques spectrales du faisceau émergent.

Pour la spectroscopie M-CARS, il est nécessaire de disposer d'une source monochromatique puissante pour délivrer l'onde de pompe CARS et d'une source de continuum à très large bande, à spectre le plus plat possible sur toute cette bande, et à forte densité spectrale de puissance. Comme le développement de continuums requiert de fortes puissances, on va privilégier l'élargissement spectral d'impulsions brèves à forte puissance crête. La pompe qui doit elle-même être puissante sera aussi préférentiellement de type impulsionnel. Cette approche nécessite alors une synchronisation sur l'échantillon des impulsions de pompe et des impulsions du continuum. Pour permettre cela, et ne pas pâtir des effets de gigue différentielle entre deux sources d'impulsions indépendantes, on utilisera généralement la même source impulsionnelle pour la pompe et pour générer le continuum.

L'**objectif principal** de cette thèse a été de chercher à mettre au point des sources de continuums basées sur des élargissements spectraux dans des fibres optiques, optimisées pour l'application à la spectroscopie M-CARS. Je me suis donc intéressé à la forme du spectre mais aussi à sa largeur et à sa densité de puissance par unité de spectre.

Ce manuscrit est divisé en deux parties, chacune composée de deux chapitres.

La **première partie** est consacrée aux rappels théoriques et à un état de l'art sur la génération de supercontinuum pour la microspectroscopie Raman cohérente large-bande.

Dans le **Chapitre 1**, je rappellerai les principes généraux sur lesquels sont fondées la spectroscopie Raman et la spectroscopie Raman cohérente. Une étude bibliographique des systèmes de spectroscopie Raman cohérente large-bande me permettra de fixer un cahier des charges pour la source de supercontinuum à concevoir.

En vue de préparer l'étude de la génération de supercontinuum dans une fibre excitée par un faisceau laser impulsionnel, le **Chapitre 2** rappellera quelques notions de base sur le fonctionnement des lasers et sur la propagation d'une onde dans une fibre optique, conventionnelle ou microstructurée. Dans un deuxième temps, je passerai en revue les principaux effets non linéaires d'ordre trois responsables de l'élargissement spectral dans les fibres.

La **seconde partie** relate les travaux, de nature essentiellement expérimentale, que j'ai effectués durant ma thèse pour la mise au point de ces nouvelles sources de supercontinuum dédiées à la microspectroscopie Raman cohérente large-bande.

Le **Chapitre 3** décrit une première source de supercontinuum basée sur l'utilisation d'une fibre microstructurée à gros cœur, dopée aux ions ytterbium, dans laquelle on maintient un fort niveau de puissance à la fréquence de l'onde injectée, tout au long de la fibre, en la réamplifiant au cours de sa propagation. Je mettrai l'accent sur l'apport de cette amplification, par des comparaisons avec les performances obtenues dans la fibre sans amplification.

Enfin, le **Chapitre 4** est consacré à la conception de deux nouvelles sources de supercontinuum à base de fibres dans lesquelles est exploité le phénomène de saturation du gain Raman. Cette étude m'a permis d'engendrer des spectres continus dans des fibres optiques en régime de dispersion normale. La première source utilise une simple fibre optique conventionnelle monomode. La seconde est fondée sur un élargissement spectral produit dans une fibre optique multimode à gradient d'indice. Dans une telle fibre à gros cœur, on peut injecter une puissance bien supérieure et donc extraire une densité spectrale de puissance dans tout le faisceau émergent nettement plus élevée que dans le faisceau sortant d'une fibre monomode. Mais le fait que la lumière soit spatialement distribuée dans un grand nombre de grains de speckle affecte gravement la brillance et ne permet pas, in fine, d'améliorer les performances en vue d'application à la spectroscopie M-CARS. Pour contourner ce problème, j'ai étudié l'apport d'un nettoyage spatial du faisceau par effet Kerr auto-induit dans la fibre, réalisé simultanément avec l'élargissement spectral. Les résultats de cette étude sont rapportés dans la dernière partie de ce manuscrit.

# Partie I

# La générération de supercontinuum appliquée à la spectroscopie Multiplex-CARS

# Chapitre 1

# La Spectroscopie CARS


**Introduction** ..... **29**
**1.1 La spectroscopie Raman** ..... **30**
**1.1.1 La diffusion Raman** ..... **30**
**1.1.2 La Spectroscopie Raman** ..... **31**
**1.2 La Spectrosopie CARS** ..... **32**
**1.2.1 Principe de la spectroscopie CARS** ..... **32**
**1.2.2 Analyse d'échantillons biologiques par spectroscopie CARS** ..... **34**
**1.2.2.1 Bandes spectrales d'intérêt** ..... **34**
**1.2.2.2 La spectroscopie Multiplex-CARS** ..... **35**
**1.2.3 La problématique du fond non résonnant** ..... **36**
**1.2.4 Méthode CARS évoluées pour s'affranchir du fond non résonnant** ..... **37**
**1.2.4.1 Polarized-CARS** ..... **38**
**1.2.4.2 Box-CARS** ..... **39**
**1.2.4.3 Epi-CARS** ..... **39**
**1.2.4.4 Electro-CARS** ..... **40**
**1.2.4.5 CARS résolu en temps femtoseconde** ..... **40**
**1.2.5 Amélioration de la résolution spectrale en régime (sub)nanoseconde** ..... **41**
**1.3 Choix de la méthode spectroscopique** ..... **42**
**1.4 Mise en place d'un système de spectroscopie M-CARS subnanoseconde** ..... **43**
**1.4.1 Etat de l'art de la spectroscopie Multiplex-CARS nanoseconde** ..... **43**
**1.4.2 Cahier des charges d'une source large-bande pour le M-CARS** ..... **46**


## Introduction

La spectroscopie est définie comme l'ensemble des méthodes d'analyse du spectre de rayonnements émis, absorbés ou renvoyés par un milieu, permettant d'accéder à la composition chimique ou à la structure de ce milieu. Les techniques de spectroscopie sont très utilisées dans de nombreux domaines comme l'astronomie, la chimie, la physique nucléaire et la

biophysique. Suivant les applications visées, les plages de fréquences exploitées peuvent varier des radiofréquences jusqu'aux rayons gamma.

Le principe de la spectroscopie réside dans l'observation des propriétés optoélectroniques de l'échantillon analysé modifiées par une interaction avec une onde excitatrice. Ces modifications sont variables selon la nature de l'échantillon, qu'il soit organique ou non organique, et selon la nature de l'onde utilisée, principalement pour un champ continu ou impulsionnel, et permettent d'identifier les composés chimiques présents dans l'échantillon.

Les méthodes de spectroscopie d'absorption consistent simplement à identifier les spectres des rayonnements absorbés par le milieu analysé : spectroscopie infrarouge [2], proche infrarouge [3], spectroscopie UV–visible [4] ou spectroscopie par absorption des rayons X [5].

Dans d'autres cas, on s'attache à mesurer l'émission provoquée par l'excitation des électrons d'une molécule sous l'effet de l'absorption d'un photon (spectroscopie de fluorescence [6]). Enfin, on peut chercher à caractériser le milieu analysé par la mesure du décalage de fréquence subi par un rayonnement excitateur comme c'est le cas en spectroscopie Brillouin [7] ou en spectroscopie Raman [8].

Dans ce chapitre, nous nous intéresserons à l'une des méthodes les plus répandues, la spectroscopie Raman. Cette méthode présente un fort intérêt dans la mesure où elle repose sur la seule vibration de la matière et ne nécessite pas l'utilisation de produits chimiques. Cependant, elle engendre comme nous le verrons dans la prochaine section de faibles densités de puissance. Un moyen de dépasser cette limitation est d'utiliser la spectroscopie Raman cohérente, également appelée spectroscopie CARS. Nous passerons donc en revue cette autre méthode de spectroscopie et quelques-unes de ses déclinaisons. En particulier, nous dresserons le cahier des charges à respecter pour la création d'une source lumineuse adaptée à la spectroscopie Multiplex-CARS.

## 1.1 La spectroscopie Raman

### 1.1.1 La diffusion Raman

L'excitation d'une liaison moléculaire de fréquence de vibration $\Omega_{vib}$ par une onde lumineuse de pompe à la fréquence $\omega_P$ entraine d'une part la vibration de la liaison à la fréquence $\Omega_{vib}$ et d'autre part, selon le principe de conservation de l'énergie, une modification de fréquence de la lumière (Figure 1.1). Ainsi, après avoir rencontré l'échantillon, la lumière est diffusée de façon omnidirectionnelle à une fréquence modifiée $\omega_S$, caractéristique de la vibration moléculaire engendrée telle que :

$$\omega_S = \omega_P - \Omega_{vib} \tag{1.1}$$

Ce phénomène d'interaction onde-matière porte le nom de diffusion Raman, du nom du physicien indien Chandrashekhara Venkata Râman qui l'a découvert en 1928 [9].

Dans la mesure où chaque liaison moléculaire possède sa propre fréquence de vibration,

l'analyse des fréquences diffusées permet de connaître les liaisons chimiques présentes dans l'échantillon [10].

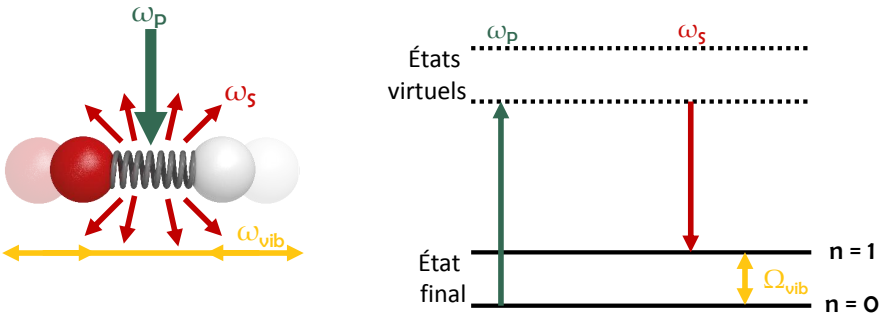



**Figure 1.1** – Schémas descriptifs de la diffusion Raman : (a) illustration du phénomène de diffusion Raman spontanée ; (b) Schéma énergétique de la diffusion Raman. A noter qu'en absorbant l'énergie apportée par la pompe, l'électron passe dans un état d'énergie dit virtuel puisqu'il ne s'agit pas d'un état électronique.

### 1.1.2 La Spectroscopie Raman

Pendant très longtemps, le champ de la spectroscopie a été dominé par des méthodes telles que la spectroscopie de fluorescence, réputée très sensible. Cependant, ces techniques nécessitent souvent l'emploi de marqueurs. Ceux-ci sont à la fois nocifs pour le corps humain et difficiles à greffer sur les cellules biologiques. De son côté, la spectroscopie Raman qui exploite simplement la mise en vibration des liaisons moléculaires à identifier ne nécessite pas l'emploi de tels marqueurs. C'est pourquoi, dès que la maturité de la technique l'a permis à la fin des années 1980, la spectroscopie Raman a été de plus en plus utilisée dans le domaine de l'analyse biomédicale [8, 11].

La spectroscopie Raman présente cependant un certain nombre d'inconvénients. Le plus important est dû au caractère incohérent de la diffusion Raman qui fait que l'onde Raman est diffusée de manière omnidirectionnelle : pour cette raison, la détection du signal est difficile à cause des niveaux de puissance particulièrement faibles reçus sur les détecteurs.

Pour augmenter le niveau de puissance Raman émis, il est nécessaire d'augmenter la puissance d'excitation laser ou d'allonger le temps d'exposition [12, 13]. Ces besoins peuvent alors très vite poser problème dans le cas de l'étude d'échantillons biologiques, fragiles par nature, et qu'une exposition trop longue ou à haute puissance pourrait détruire. Dans le but de pallier ces problèmes, d'autres techniques basées sur la diffusion Raman cohérente ont été mises en œuvre. C'est le cas de la spectroscopie CARS (« Coherent Anti-Stokes Raman Scattering »), que nous allons maintenant décrire.

## 1.2 La Spectrosopie CARS

### 1.2.1 Principe de la spectroscopie CARS

La diffusion Raman cohérente résulte de l'excitation de l'échantillon par une onde de battement composée d'une onde pompe de fréquence $\omega_P$ et d'une onde Stokes de fréquence $\omega_S$, de telle sorte que la différence de ces deux fréquences corresponde à la fréquence de vibration d'une liaison moléculaire particulière $\Omega_{vib}$, définie telle que :

$$\Omega_{vib} = \omega_P - \omega_S \tag{1.2}$$

Le résultat de cette excitation est la vibration, en phase, de toutes les liaisons moléculaires identiques de vibration $\Omega_{vib}$.

Une onde sonde (« probe ») est alors utilisée dans le but de provoquer l'émission d'une onde CARS de fréquence $\omega_{CARS}$ caractéristique de la vibration de la liaison, telle que :

$$\omega_{CARS} = \omega_P - \omega_S + \omega_{Pr} = \Omega_{vib} + \omega_{Pr} \tag{1.3}$$

Contrairement à la diffusion Raman, le phénomène à l'origine de l'onde CARS est de nature cohérente (toutes les vibrations dans l'échantillon excité oscillent en phase). La densité de puissance du signal CARS est proportionnelle au carré de la concentration des liaisons absorbantes quand elle est simplement proportionnelle à cette concentration dans le cas du processus Raman spontané. L'onde engendrée est directive et la puissance résultante est beaucoup plus importante en spectroscopie CARS qu'en spectroscopie Raman comme le montre la Figure 1.2. L'efficacité de conversion peut être améliorée dans un rapport $10^5$.

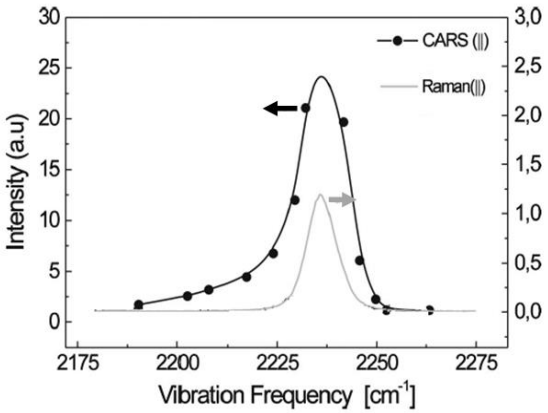



**Figure 1.2** – Comparaison des réponses CARS et Raman de la liaison CN d'une molécule d'octylcyanobiphényle (souvent appelée 8CB) pour des polarisations des ondes mises en jeu parallèles au moment dipolaire de la molécule (d'après [14]).

Le plus souvent, on se place dans le cas dégénéré, pour lequel les deux photons pompe et sonde sont identiques (Figure 1.3). La fréquence de l'onde CARS devient alors :

$$\omega_{CARS} = \Omega_{vib} + \omega_P = 2\omega_P - \omega_S \tag{1.4}$$

Le processus de génération de l'onde CARS apparait donc comme un processus de mélange à quatre ondes [15], dégénéré lorsque $\omega_P = \omega_{Pr}$.

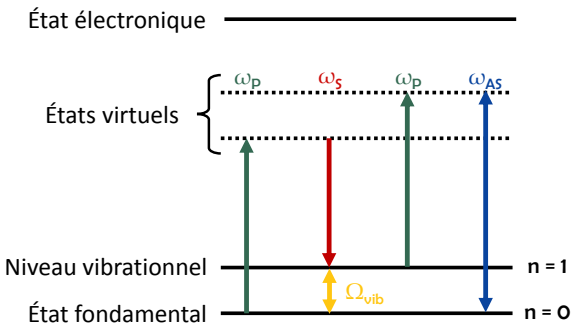



**Figure 1.3** – Schéma énergétique du phénomène CARS dégénéré.

La première démonstration de ce processus, présenté comme un mélange à quatre ondes, a été réalisée par P. D. Maker et R. W. Terhune en 1965 [16]. Cette étude démontre la possibilité d'étudier le spectre Raman d'une molécule par un processus cohérent. Ce n'est que dix ans plus tard, en 1974, que le nom CARS est attribué à ce processus par R. F. Begley et coll., dans une étude sur les avantages de la spectroscopie CARS par rapport à la spectroscopie Raman incohérente [17]. La stimulation simultanée de cycles de benzène par des impulsions issues d'un laser Nd:YAG nanosecondes doublé à 532 nm et des impulsions nanosecondes issues d'un laser accordable leur ont permis de mettre en évidence les avantages de la spectroscopie CARS, parmi lesquels l'amélioration de l'efficacité de conversion de l'ordre de $10^5$ signalées plus haut, ou encore une discrimination spectrale et spatiale sans utilisation de marqueurs (contrairement à la fluorescence).

Un exemple de dispositif de spectroscopie CARS est proposé en Figure 1.4. L'échantillon à analyser doit être excité simultanément par l'onde pompe et l'onde Stokes, issues des deux sources lasers à gauche du schéma. Ces deux ondes doivent être superposées et synchrones sur l'échantillon. L'onde CARS résultante est ensuite collectée par un objectif et envoyée vers un spectromètre.

Puisque le processus CARS renseigne sur les niveaux vibrationnels et rotationnels des molécules d'un milieu, il est possible de remonter à la distribution de population de ces états et ainsi mesurer la température du milieu de façon précise et non invasive [18]. Pendant longtemps, la spectroscopie CARS a été réduite à une telle utilisation pour la thermométrie, notamment sur des gaz [19, 20, 21].

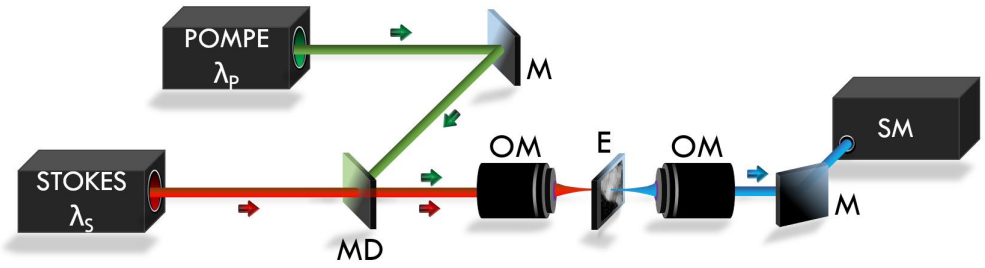



**Figure 1.4** – Schéma d'un dispositif de spectroscopie CARS. M : Miroir ; MD : Miroir dichroïque ; OM : Objectif de microscope ; E : Echantillon ; SM : Spectromètre.

En 1982, M. D. Duncan et coll. réalisent un premier microscope CARS à partir de deux sources lasers picosecondes distinctes [22]. En 1999, A. Zumbusch et coll. appliquent pour la première fois le processus CARS à un échantillon biologique, en fabriquant un microscope CARS utilisant des impulsions femtosecondes dans le proche infrarouge issues d'un laser Ti:saphir [23]. Depuis, la spectroscopie CARS a été largement utilisée sur des échantillons biologiques [15, 24, 25]. Ainsi, la microspectroscopie CARS a permis d'étudier la composition chimique de cellules à l'échelle moléculaire [26, 27, 28, 29], d'imager différents organes *ex vivo* [30, 31, 32] et on cherche désormais à réaliser des images CARS d'organes *in vivo* [33, 34].

### 1.2.2 Analyse d'échantillons biologiques par spectroscopie CARS

#### 1.2.2.1 Bandes spectrales d'intérêt

Les spectres mesurés sont classiquement tracés en fonction du décalage Raman, exprimé en nombre d'onde (en $cm^{-1}$), qui est lié à la longueur d'onde de pompe $\lambda_P$ et à la longueur d'onde Stokes $\lambda_S$ (exprimées en nm) selon la relation :

$$\Delta\omega(cm^{-1}) = \frac{10^7}{\lambda_P} - \frac{10^7}{\lambda_S} \tag{1.5}$$

Chaque liaison chimique est caractérisée par une fréquence de vibration qui lui est propre. Pour les milieux biologiques, l'essentiel des raies caractéristiques des vibrations nécessaires à identifier la nature de l'échantillon analysé se trouve dans une bande de décalage Raman comprise entre 800 $cm^{-1}$ et 1800 $cm^{-1}$ que l'on appelle « zone d'empreinte digitale » (Figure 1.5). A noter qu'il est également pertinent de mesurer des décalages autour de 3000 $cm^{-1}$, qui sont dans le domaine de signature des liaisons Hydrogène, et qui peuvent être des marqueurs de la présence de lipides et de protéines, permettant de localiser respectivement le cytoplasme et la membrane cellulaire.

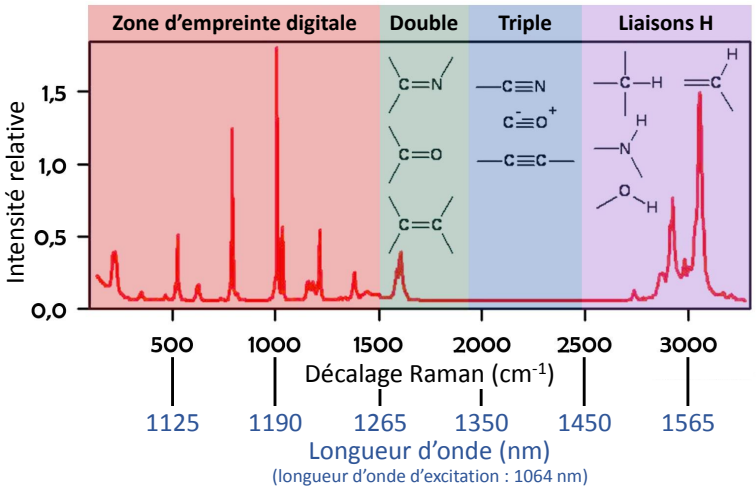



**Figure 1.5** – Définition des zones d'intérêt en spectroscopie par le décalage Raman et par la longueur d'onde Stokes nécessaire associée à une longueur d'onde de pompe de 1064 nm.

### 1.2.2.2 La spectroscopie Multiplex-CARS

La spectroscopie CARS, utilisant des sources pompe et Stokes monochromatiques, ne cible qu'une seule fréquence de vibration, ne permettant ainsi l'identification que d'une seule liaison moléculaire. Le principe du Multiplex-CARS, souvent noté M-CARS, est similaire à celui de la spectroscopie CARS (Figure 1.3) mais l'onde Stokes est une onde à spectre large-bande (Figure 1.6). L'utilisation d'un tel spectre comme onde Stokes nécessite de synchroniser l'onde pompe/sonde avec chacune des composantes de ce spectre large-bande. Dans ces conditions, il devient possible, en une seule mesure, d'analyser l'ensemble des liaisons chimiques présentes dans l'échantillon par l'utilisation simultanée de l'ensemble des couples de longueurs d'onde (pompe-Stokes) disponibles.

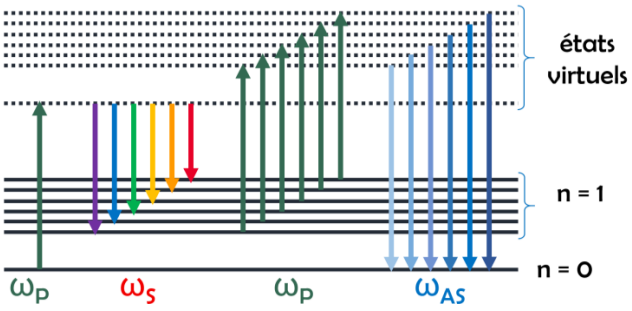



**Figure 1.6** – Schéma énergétique du Multiplex-CARS.

S. A. Akhmanov et coll. ont été les premiers à démontrer la spectroscopie M-CARS en 1974, en utilisant les battements d'une pompe issue d'un laser Nd:YAG (à la longueur d'onde de 1064 nm) et d'une radiation accordable (large-bande ou bande étroite) provenant d'un oscillateur paramétrique optique (OPO) [35]. Ce premier système a permis de mesurer la vibration d'ions carbonate de formule $CO_3^{2-}$ et a surtout ouvert la voie à une multitude de systèmes dans lesquels l'onde Stokes large-bande est une onde polychromatique de type « supercontinuum

(SC) » [36, 37, 38]. Le SC est la plupart du temps obtenu par d'intenses effets non linéaires développés au sein d'une fibre à cristal photonique (PCF, de l'Anglais « photonic crystal fiber ») et décrits dans le Chapitre 2. Dans ce cas, une seule et même source laser est utilisée pour générer à la fois l'onde Stokes à travers la fibre optique et l'onde pompe/sonde. Il est à noter que cette dernière doit alors passer à travers une ligne à retard pour compenser le chemin optique du premier faisceau), permettant ainsi une meilleure synchronisation des deux ondes [39]. Un état de l'art de la spectroscopie Multiplex-CARS est proposé dans la section 1.4.

### 1.2.3 La problématique du fond non résonnant

Le processus CARS est un phénomène lié la susceptibilité[1] non linéaire électronique d'ordre trois $\chi^{(3)}$ du milieu sondé. L'excitation de l'échantillon par les ondes pompe et Stokes, d'amplitudes respectives $E_P$ et $E_S$, induit une polarisation telle que :

$$P^{(3)}(\omega_{AS}) = \varepsilon_0 \chi^{(3)} E_P^2(\omega_P) E_S(\omega_S) \tag{1.6}$$

où $\varepsilon_0$ représente la permittivité diélectrique du vide.

La polarisation est en réalité constituée :
- d'une partie résonnante $P_R^{(3)}(\omega_{AS})$, fonction de la réponse Raman de l'échantillon et qui est spécifique d'un mode vibrationnel $\Omega_{vib}$ (Figure 1.7a) ;
- d'une partie non résonnante $P_{NR}^{(3)}(\omega_{AS})$, d'origine électronique (Figures 1.7b) et par définition non résonnante d'un point de vue vibrationnel puisqu'elle n'est pas liée à la vibration moléculaire $\Omega_{vib}$.

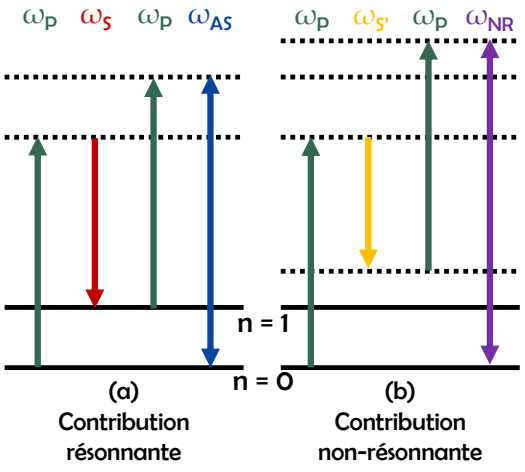



**Figure 1.7** – Diagrammes d'énergie du processus CARS : (a) CARS résonnant ; (b) CARS non résonnant par contribution électronique.

1. La susceptibilité d'ordre $j$, notée $\chi^{(j)}$, est une grandeur caractérisant la polarisation créée par un champ électrique induit ou appliqué à un milieu matériel. Lorsque $j = 1$, on parle de susceptibilité linéaire. Elle est alors directement liée à l'indice de réfraction du matériau. Lorsque que $j > 1$, elle traduit la possibilité d'apparition des effets non linéaires d'ordre $j$. Cette notion sera présentée plus en détail dans la section 2.3 du Chapitre 2.

La polarisation du troisième ordre résultant de l'interaction entre les champs optiques incidents pompe et Stokes s'écrit alors comme la somme d'une polarisation résonnante et d'une polarisation non résonnante telle que :

$$P^{(3)}(\omega_{AS}) = P_R^{(3)}(\omega_{AS}) + P_{NR}^{(3)}(\omega_{AS}) = \varepsilon_0 \chi_R^{(3)} E_P^2(\omega_P) E_S(\omega_S) + \varepsilon_0 \chi_{NR}^{(3)} E_P^2(\omega_P) E_S(\omega_S) \quad (1.7)$$

La susceptibilité $\chi^{(3)}$ peut ainsi être vue comme la somme de deux contributions, l'une résonnante (R) et l'autre non résonnante (NR), et peut s'écrire telle que :

$$\chi^{(3)} = \chi_R^{(3)} + \chi_{NR}^{(3)} \quad (1.8)$$

L'existence du bruit de fond non résonnant, provenant des contributions électroniques de la susceptibilité non linéaire d'ordre trois de l'échantillon analysé ou du solvant dans lequel il se trouve, entraîne par rapport au processus Raman une réduction considérable du rapport signal à bruit (ou « Signal to Noise Ratio (SNR) »), malgré une amélioration sensible du niveau de signal.

Dans le but de s'affranchir au mieux de ce fond non résonnant, il existe différentes déclinaisons de la spectroscopie CARS. Nous présentons ici les plus importantes.

### 1.2.4 Méthode CARS évoluées pour s'affranchir du fond non résonnant

Différentes méthodes de spectroscopie CARS ont été développées dans l'objectif de s'affranchir du fond non résonnant. Parmi ces méthodes, les plus répandues sont le Polarized-CARS, le Box-CARS, l'Epi-CARS et plus récemment l'Electro-CARS (Figure 1.8). Cette section en présente une description succincte.

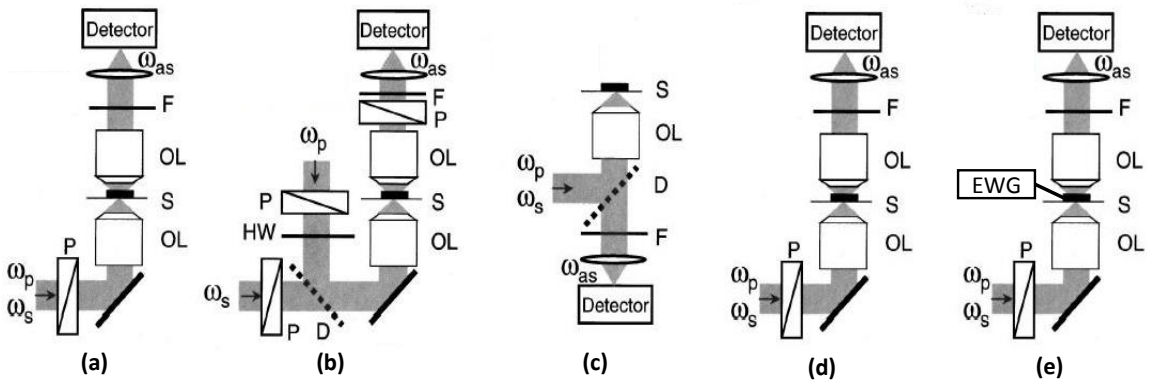



**Figure 1.8** – Schémas de différentes configurations CARS (d'après Ref. [40]) : (a) CARS ; (b) P-CARS ou Box-CARS : les faisceaux pompe et Stokes sont polarisés ; (c) Epi-CARS : détection par l'arrière ; (e) Electro-CARS : un champ électrique est appliqué à l'échantillon. P : polariseur ; D : miroir dichroïque ; OL : objectif de microscope ; F : filtre ; HW : lame demi-onde ; S : échantillon ; EWG : générateur d'onde électrique.

#### 1.2.4.1 Polarized-CARS

Les travaux de J.-L. Oudar et coll. en 1979 ont montré que les deux contributions (résonnante et non résonnante) du signal CARS étaient linéairement polarisées dans des directions différentes si les faisceaux Stokes et pompe étaient eux-mêmes linéairement polarisés dans des directions différentes [41]. Dès lors, l'utilisation d'un analyseur de polarisation avant détection, perpendiculairement à la polarisation de la contribution non résonnante, permet la complète suppression du fond non résonnant [42] (Figure 1.9). Cette technique est connue sous le nom de CARS polarisé ou Polarized-CARS en Anglais (souvent nommé P-CARS).

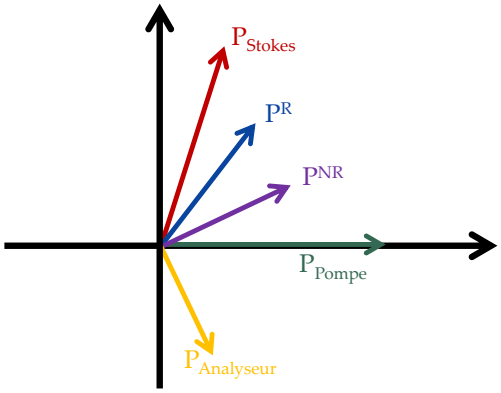



**Figure 1.9** – Illustration de la configuration des polarisations de champs pour la suppression du bruit de fond non résonnant. $P_{Stokes}$ : polarisation de l'onde Stokes ; $P_{Pompe}$ : polarisation de l'onde pompe ; $P_R$ : polarisation de la composante résonnante ; $P_{NR}$ : polarisation de la composante non résonnante ; $P_{analyseur}$ : direction de transmission de l'analyseur placé en amont du détecteur, perpendiculairement à $P_{NR}$ pour la supprimer. Les angles ont tous été choisis arbitrairement.

Malgré une réduction significative de l'intensité du signal CARS due au fait qu'une partie de la contribution résonnante est supprimée par l'analyseur, le SNR est augmenté. La Figure 1.10 met en évidence la meilleure sensibilité obtenue avec le P-CARS comparé au simple processus CARS (rapport signal à bruit augmenté d'un facteur 10), lors d'une étude réalisée par Cheng et coll. en 2001 [43].

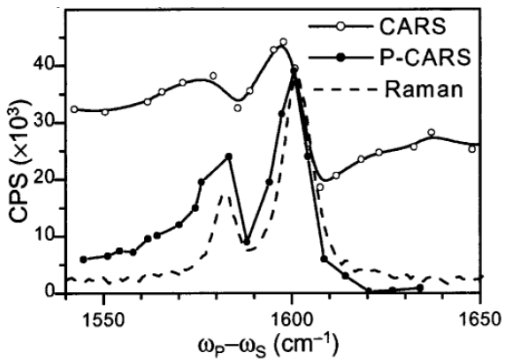



**Figure 1.10** – Comparaison des spectres Raman, CARS et P-CARS du polystyrène [43].

#### 1.2.4.2 Box-CARS

La méthode CARS présentée en section 1.2.1 utilise une configuration colinéaire des vecteurs d'onde $k_i$ des quatre ondes mises en jeu (Figure 1.11a). Cette configuration est à la fois la plus simple à mettre en place et celle qui donne les plus grandes intensités de signal [44]. Cependant, cette méthode ne permet pas la suppression du fond non résonnant et permet au mieux d'obtenir une résolution spatiale de l'ordre de $\lambda/3$ [36].

Une possibilité pour supprimer le fond non résonnant est d'adapter les phases des quatre ondes mises en jeu dans le processus CARS, en configuration non colinéaire [45]. Les Figures 1.11b et 1.11c représentent chacune une alternative offrant une meilleure résolution spatiale, respectivement le Box-CARS et le Folded Box-CARS [46]. Ces configurations permettent une grande séparation angulaire des faisceaux d'entrée (pompe et Stokes), desquels le faisceau CARS est complètement séparé spatialement en sortie. Cependant, elles nécessitent un accord de phase approprié et l'intensité du signal CARS émis est plus faible.

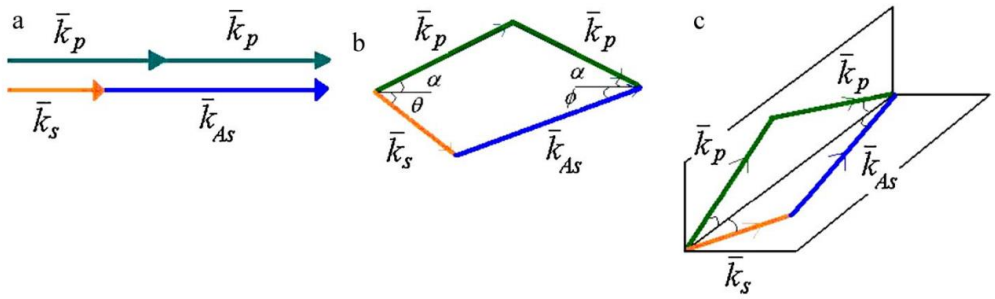



**Figure 1.11** – Différentes adaptations de phases les plus employées pour le CARS [44] : (a) CARS colinéaire ; (b) box-CARS ; (c) folded box-CARS (« box-CARS plié »). Chaque vecteur $k_i$ représente le vecteur d'onde associé à chaque onde et dont la norme est définie par $||k_i|| = \omega_i/c$ (où $c$ est la célérité de la lumière).

#### 1.2.4.3 Epi-CARS

Cheng et coll. ont montré en 2001 [47] qu'il était également possible de réaliser la détection du signal CARS à l'arrière de l'échantillon (« épi-détection », d'où le nom d'Epi-CARS donné à la technique). Pour cela, un miroir dichroïque est utilisé dans le but d'isoler la lumière rétrodiffusée par l'échantillon vers le détecteur (Figure 1.8). Par cette technique, une réduction du fond non résonnant a été montrée, permettant une meilleure visibilité des petits pics du spectre [40].

Le signal CARS est relativement insensible à la taille ou la forme de l'échantillon et il est supérieur d'au moins un ordre de grandeur au signal Epi-CARS puisqu'il est généré par interférences constructives. Cependant, les applications du CARS en microscopie sont limitées par un fort bruit de fond non résonnant. À l'inverse, l'Epi-CARS est très sensible à la forme et la taille de l'échantillon et le signal peut complètement disparaitre dans de grands échantillons à cause d'interférences destructives. L'Epi-CARS est aussi moins perturbé par la contribution du bruit de fond non résonnant.

Les informations portées par ces deux signaux sont significativement différents et particulièrement utiles pour l'identification de l'échantillon. C'est cette raison qui a poussé Schie et coll. en 2008 à proposer un système permettant d'enregistrer à la fois le signal CARS et le signal Epi-CARS [48].

#### 1.2.4.4 Electro-CARS

Plus récemment, l'Institut de Recherche Xlim a mis au point un nouveau type de système de spectroscopie CARS, nommé Electro-CARS. Il s'agit ici de réaliser l'analyse M-CARS d'un échantillon sur lequel est appliqué un champ électrique externe (continu [49] ou impulsionnel synchrone avec les ondes optiques mises en jeu [50]). Ce champ électrique a pour effet de contraindre la liaison moléculaire, changeant ainsi sa signature CARS. Il a ainsi été démontré qu'il était possible en rendant la polarisation du champ électrique appliqué colinéaire aux polarisations des ondes optiques (Pompe et Stokes) d'orienter les molécules par l'intermédiaire de leur moment dipolaire induit. Cette orientation moléculaire permet d'augmenter le niveau de signal lié à la liaison considérée sans conséquence sur le bruit de fond non résonnant. La Figure 1.12 montre ainsi l'évolution du spectre d'un échantillon de paraffine pour un champ électrique appliqué variant de 0 kV à 1,9 kV. Le niveau du pic principal est doublé, avec un niveau de bruit de fond non résonnant inchangé. Cette méthode, qui reste à l'heure actuelle encore peu développée et dont seules des démonstrations de principe ont été effectuées jusqu'alors, permet donc d'augmenter significativement le SNR (Figure 1.13).

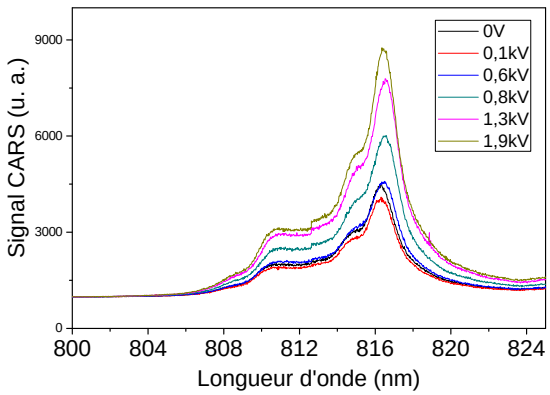



**Figure 1.12** – Spectres Electro-CARS d'un échantillon de paraffine soumis à un champ électrique colinéaire à la polarisation des champs optiques [50].

#### 1.2.4.5 CARS résolu en temps femtoseconde

La signature CARS est basée sur une vibration moléculaire qui n'est pas instantanée (temps de relaxation de plusieurs centaines de femtosecondes), contrairement à un effet purement électronique comme la signature du fond non résonnant. Dans ces conditions, une analyse dans le temps des réponses du matériau, après une excitation femtoseconde permet de séparer les contributions non résonnantes et CARS [51]. Ce principe a été développé

par Volkmer et coll. en 2002 dans une technique appelée T-CARS [52]. L'échantillon est excité avec des impulsions pompe et Stokes très brèves et ensuite sondé avec une impulsion retardée d'un temps $\tau$ suffisant pour que le signal non résonnant soit déjà relaxé. Le signal CARS que l'on récoltera sera uniquement dû à la contribution résonnante. Dans l'étude de billes de polystyrène de Volkmer, les ondes pompe, Stokes et sonde proviennent d'un laser Ti:Saphir ayant une durée d'impulsion d'environ 100 fs. Les auteurs mesurent un rapport entre signal résonnant et fond non résonnant égal à 3 lorsque $\tau = 0$ fs, et qui atteint 35 lorsque $\tau = 484$ fs.

Dans le cas du M-CARS (voir section 1.2.2.2), les différentes composantes spectrales de l'onde Stokes large-bande, généralement obtenues suite à des conversions non linéaires à travers une fibre optique, ont subi un décalage temporel relatif dû à la dispersion chromatique dans cette fibre. Cet effet entraine un élargissement temporel très important au regard de la durée initiale des impulsions ultra-courte. Seule une partie de l'onde Stokes large-bande peut alors être synchronisée avec l'onde pompe/sonde femtoseconde (Figure 1.13). L'analyse spectrale doit être réalisée indirectement, en jouant sur la synchronisation de l'onde pompe/sonde par rapport à l'onde Stokes (de manière à sélectionner une partie des longueurs d'onde du spectre large-bande et par conséquent, le couple de longueurs d'onde utilisé), c'est-à-dire en jouant sur le décalage $\tau$ représenté sur la Figure 1.13. Dans ce cas, le spectromètre du système CARS (Figure 1.2) peut être remplacé par une simple photodiode et l'analyse de l'ensemble des liaisons moléculaires de l'échantillon peut se faire par l'intermédiaire d'une ligne à retard placée sur le chemin de l'onde de pompe (Figure 1.14) [52].

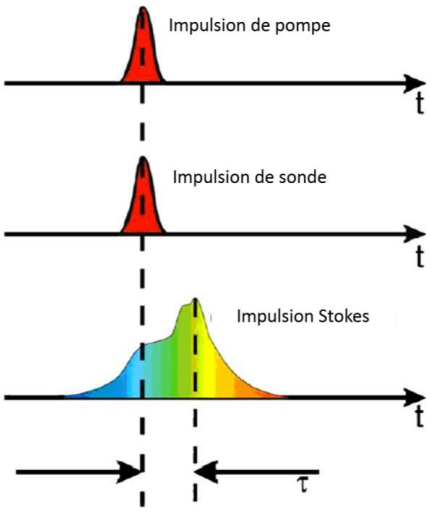



**Figure 1.13** – Séquence d'impulsions pompe, sonde et Stokes dans le cas de CARS femtoseconde résolu en temps (d'après [44]).

### 1.2.5 Amélioration de la résolution spectrale en régime (sub)nanoseconde

Le processus CARS s'opère très souvent avec des impulsions lasers femtosecondes. Néanmoins, les lasers nanosecondes déclenchés apparaissent comme une alternative de grand intérêt car leur

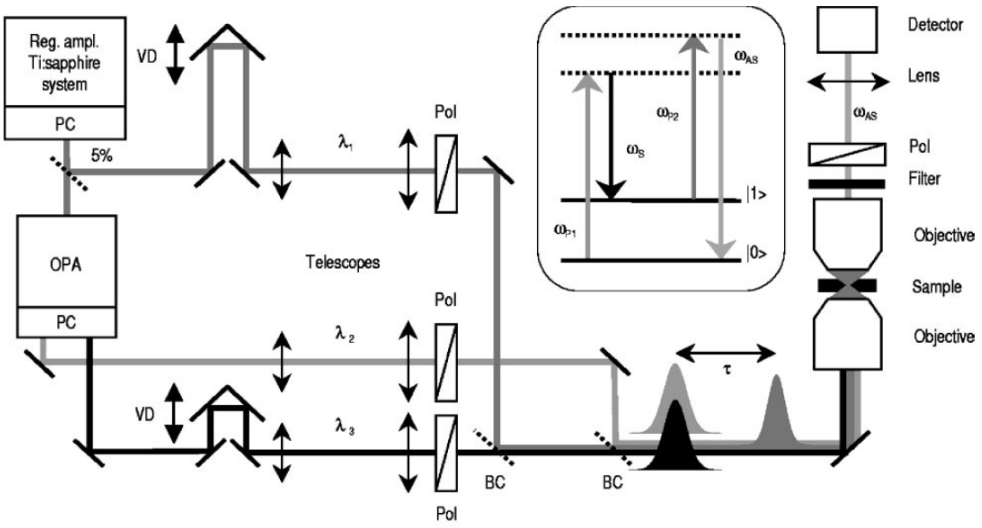



**Figure 1.14** – Schéma du dispositif de microscopie CARS femtosconde résolu en temps [52] . Insert : diagramme d'énergie du processus de mélange à quatre ondes dans le cas non dégénéré. PC : système de compression d'impulsion ; VD : ligne à retard variable ; Pol : polariseur ; BC : miroir dichroïque.

emploi permet d'accroitre considérablement la résolution spectrale du fait de la largeur réduite de leur rayonnement.

Il faut souligner que dans le cas d'impulsions nanosecondes, le retard induit par la dispersion chromatique[2] dans la fibre optique utilisée pour la génération de l'onde Stokes large-bande devient négligeable devant la durée de l'impulsion de pompe. Il est alors impossible de réaliser un système M-CARS résolu en temps en régime nanoseconde.

Cependant, les microlasers déclenchés qui émettent des impulsions subnanosecondes, sont souvent monomodes longitudinalement. Ils permettent, dans ces conditions, d'obtenir une résolution spectrale très forte (imposée dans le processus CARS par la largeur de raie de l'onde de pompe). Ainsi, en plus d'une meilleure compacité et d'une plus grande robustesse de la source laser, le CARS nanoseconde offre une meilleure résolution spectrale, malgré la présence du fond non résonnant [53]. A titre d'exemple, le système proposé par Kano et coll. en 2004, basé sur l'utilisation d'un laser Ti:Saphir délivrant des impulsions de 100 fs à 80 MHz, ne permet d'obtenir une résolution spectrale meilleure que 24 $cm^{-1}$ [54]. De son côté, le laser Nd:YAG délivrant des impulsions de 1 ns à 33 kHz utilisé par Okuno et coll. leur a permis d'atteindre une résolution spectrale de 0,1 $cm^{-1}$ [55].

## 1.3 Choix de la méthode spectroscopique

Avant toute chose, il est nécessaire de choisir parmi toutes les méthodes spectroscopiques présentées plus haut celle qui offre le plus d'intérêt pour une analyse d'échantillons biologiques.

2. La notion de dispersion chromatique sera présentée dans la section 2.2.2.3.2 du Chapitre 2.

Dans notre cas, trois besoins ont été identifiés pour guider notre choix :
- Une détection fiable à des **niveaux de puissance suffisamment forts** pour ne pas avoir à recourir à des systèmes synchrones ou refroidis sous azote, généralement plus couteux et complexes. Dans ces conditions, on privilégiera la **spectroscopie CARS** à la spectroscopie Raman.
- Il est également nécessaire d'atteindre une **haute résolution spectrale** ($< 1$ cm$^{-1}$), ce qui impose comme nous l'avons vu précédemment de travailler en **régime monomode longitudinalement** et avec des **durées d'impulsions de l'ordre de la nanoseconde**.
- Il est enfin utile de pouvoir **détecter toutes les liaisons chimiques simultanément**, en une seule mesure. Il est donc nécessaire de réaliser un système d'**imagerie M-CARS**.

Comme nous l'avons vu plus haut, un système d'imagerie Multiplex-CARS en régime nanoseconde nécessite à la fois une source de pompe monochromatique nanoseconde et une source à supercontinuum pour jouer le rôle de l'onde Stokes. Une fois ces deux sources créées, il est tout à fait envisageable de les utiliser dans une configuration particulière comme celles évoquées dans la section 1.2.4 pour supprimer le bruit de fond non résonnant.

Pour réaliser un tel système d'imagerie, certaines caractéristiques importantes doivent être prises en compte. Après un bref état de l'art de la spectroscopie M-CARS nanoseconde, un cahier des charges à respecter pour la fabrication de la source à supercontinuum est présenté dans la section suivante.

## 1.4 Mise en place d'un système de spectroscopie M-CARS subnanoseconde

A l'heure actuelle, peu d'équipes de recherche dans le monde ont choisi de réaliser des systèmes de spectroscopie M-CARS en régime nanoseconde. Pourtant, comme évoqué précédemment, l'utilisation d'impulsions (sub)nanosecondes offre à la fois une meilleure résolution et une amélioration du SNR. Par ailleurs, en comparaison des lasers à impulsions ultracourtes de type lasers femtosecondes, les lasers déclenchés Nd:YAG, dont le fonctionnement sera expliqué dans le Chapitre 2, présentent l'avantage d'être compacts, robustes, stables et d'un coût relativement modeste. Ainsi, quelques travaux d'importance ont émergé lors de la dernière décennie. Ces travaux, dont une brève revue est proposée maintenant, sont souvent liés au développement de nouvelles sources lasers primaires (générant à la fois l'onde pompe et l'onde Stokes) ou de nouvelles sources de supercontinuum (avec l'utilisation de nouvelles fibres optiques pour l'élargissement spectral).

### 1.4.1 Etat de l'art de la spectroscopie Multiplex-CARS nanoseconde

Dès le début des années 2000, C. Heinrich et coll. ont réalisé des systèmes de spectroscopie CARS nanoseconde. Dans leur système proposé en 2004, un OPO est utilisé pour générer l'onde Stokes nanoseconde monochromatique. Cet OPO est accordable entre 410 nm et 2600 nm, avec une

longueur d'onde de pompe à 532 nm [56]. Cependant, ce dispositif ne permet pas d'analyser toutes les vibrations en une seule mesure puisqu'il nécessite d'accorder la longueur d'onde en sortie de l'OPO pour chaque liaison chimique. Le premier microscope large-bande M-CARS en régime nanoseconde a été proposé par M. Okuno et coll. en 2007, sur la base d'un microlaser Nd:YAG déclenché passivement délivrant des impulsions de 1 ns à 1064 nm à la cadence de 6,6 kHz, doublé en fréquence par un cristal de LBO (triborate de lithium) [36]. Une partie de la seconde harmonique à 532 nm est utilisée comme onde de pompe tandis que le reste de ce rayonnement est couplé avec l'onde primaire à 1064 nm dans une fibre optique microstructurée air/silice (FMAS) dans le but de générer une onde Stokes large-bande. Le double pompage (1064 nm / 532 nm) permet la suppression de l'impact de la diffusion Raman stimulée (autour de 532 nm), dont nous parlerons plus en détails dans le chapitre suivant. Un supercontinuum dans la bande 532 nm–700 nm plus homogène que dans le cas du simple pompage à 1064 nm est alors obtenu [57]. Avec ce système, il est possible d'exciter l'ensemble des vibrations sur la gamme de décalage Raman voulue (entre 800 $cm^{-1}$ et 3000 $cm^{-1}$). La Figure 1.15 montre le dispositif expérimental du microscope M-CARS développé par Okuno et coll. ainsi que des spectres de cyclohexane obtenus dans deux gammes spectrales différentes (600 $cm^{-1}$–1400 $cm^{-1}$ et 2200 $cm^{-1}$–3200 $cm^{-1}$), avec un temps d'exposition de 1 min. Il est à noter que ce temps d'exposition, pour une simple mesure ponctuelle, est totalement incompatible avec des applications biomédicales, encore plus si l'objectif est une prise d'images *in vivo* utilisant un système de balayage. De plus, le fait de travailler à des longueurs d'onde visibles, notamment pour ce qui est de la pompe, augmente la diffusion de la lumière et ne permet pas de pénétrer profondément dans l'échantillon, tout en provoquant un bruit de fond non résonnant plus important. Il est plus judicieux de travailler dans le proche infrarouge.

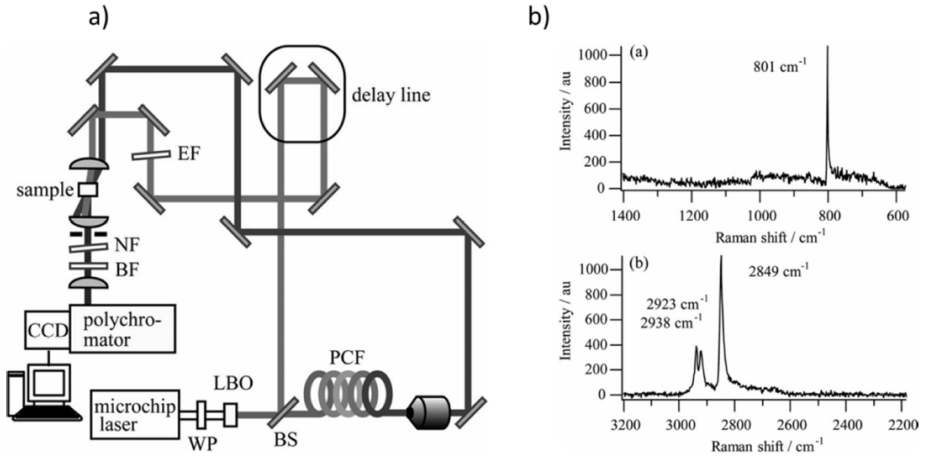



**Figure 1.15** – (a) Schéma du microscopie M-CARS développé dans [36] ; (b) Spectres M-CARS du cyclohexane pris entre 600 $cm^{-1}$ et 3200 $cm^{-1}$. BF : Filtre passe-bande ; NF : Filtre coupe-bande 532 nm ; EF : Filtre passe-haut 532 nm ; WP : lame demi-onde ; BS : Lame séparatrice ; PCF : Fibre à cristal photonique ; LBO : cristal pour le doublage de fréquence.

Il n'est pas indispensable de procéder à un double pompage 532 nm/1064 nm pour générer un faisceau Stokes adapté à une analyse M-CARS. Un simple pompage permet de bénéficier

d'une plus forte puissance de pompe et de réduire ainsi le temps d'acquisition des spectres. Dans un système très similaire à celui présenté dans la Réf. [36] mais avec un pompage unique à 1064 nm et une onde Stokes large-bande (1064 nm–1600 nm), Okuno et coll. obtiennent une puissance de pompe cinq fois plus énergétique qui leur a permis de réduire le temps d'exposition à environ 1 s pour réaliser des spectres de billes de polystyrène [58]. Une fréquence de répétition du laser Nd:YAG primaire plus élevée (33 kHz) permet même d'atteindre des temps d'acquisition de l'ordre de la dizaine de millisecondes, tout en conservant une haute résolution spectrale ($< 1$ cm$^{-1}$) permise par une pompe très étroite spectralement [55].

En 2010, un système M-CARS similaire, composé d'un laser microchip Nd:YAG (durée d'impulsion : 900 ps, fréquence de répétition : 33 kHz) et d'une FMAS pour la génération de l'onde Stokes large-bande, a permis de suivre en temps réel la dynamique d'évolution d'une cellule de levure vivante (Figure 1.16) [59]. Ce système d'imagerie a ainsi permis de suivre en temps réel l'activité métabolique des mitochondries [3] (et par conséquent le processus d'apoptose [4] cellulaire) de l'échantillon de levure par l'intermédiaire de la mesure de la signature des polyphosphates (l'un des composés des mitochondries) à 1160 cm$^{-1}$. La Figure 1.16 montre les images obtenues par un balayage de l'échantillon (21 x 21 pixels, 50 ms d'exposition pour chaque pixel). Un seul balayage est nécessaire et un traitement des données suffit à constituer les images pour chaque décalage Raman à partir des spectres pris en chaque point.

Enfin, plus récemment, H. Mikami et coll. ont réalisé des images de billes de polystyrène à partir d'un système CARS dans lequel le résidu de l'onde à 1064 nm contenu dans le faisceau large-bande en sortie de FMAS joue le rôle de pompe pour engendrer l'onde CARS [60]. Ainsi, le dispositif, composé d'un laser Nd:YAG émettant des impulsions à 1064 nm (durée d'impulsion : 1,1 ns, fréquence de répétition : 27 kHz) et d'une FMAS à maintien de polarisation, ne nécessite pas de ligne à retard pour synchroniser l'onde pompe avec l'onde Stokes. Il est donc plus robuste et plus compact. L'utilisation d'une fibre à maintien de polarisation permet de fixer un état de polarisation linéaire pour les ondes pompe et Stokes en sortie de fibre optique [5], sans avoir à utiliser de polariseur en sortie (qui entraine inévitablement une perte d'énergie).

Toutes les sources lasers utilisées pour réaliser ces systèmes de microspectroscopie M-CARS doivent être capables d'émettre des faisceaux présentant des caractéristiques adéquates en terme par exemple de densité spectrale de puissance ou de profil temporel. Ce besoin est d'autant plus marqué pour le spectre large-bande. L'ensemble de ces caractéristiques imposent un cahier des

3. Les mitochondries sont des organites situés à l'intérieur de la cellule, d'une longueur avoisinant le micromètre. Elles sont des éléments essentiels dans la production d'énergie nécessaire au fonctionnement de la cellule.

4. L'apoptose est le processus d'autodestruction des cellules en réponse à un signal.

5. Une fibre optique classique ne conserve pas les états de polarisation de la lumière à cause de la biréfringence qu'elle possède. Cette biréfringence est fortement dépendante du conditionnement de la fibre (torsions, courbures, etc.). Par conséquent, l'état de polarisation de la lumière en sortie peut sensiblement fluctuer au cours du temps et ne peut être prédit [61]. L'adoption d'un profil optogéométrique particulier pour la fibre optique (par exemple par l'ajout de plots de contrainte de part et d'autre du cœur) permet de conserver deux états de polarisation orthogonaux tout au long de la propagation. Nous reviendrons sur ces aspects relatifs à la propagation dans les fibres optiques dans la section 2.2 du Chapitre 2.

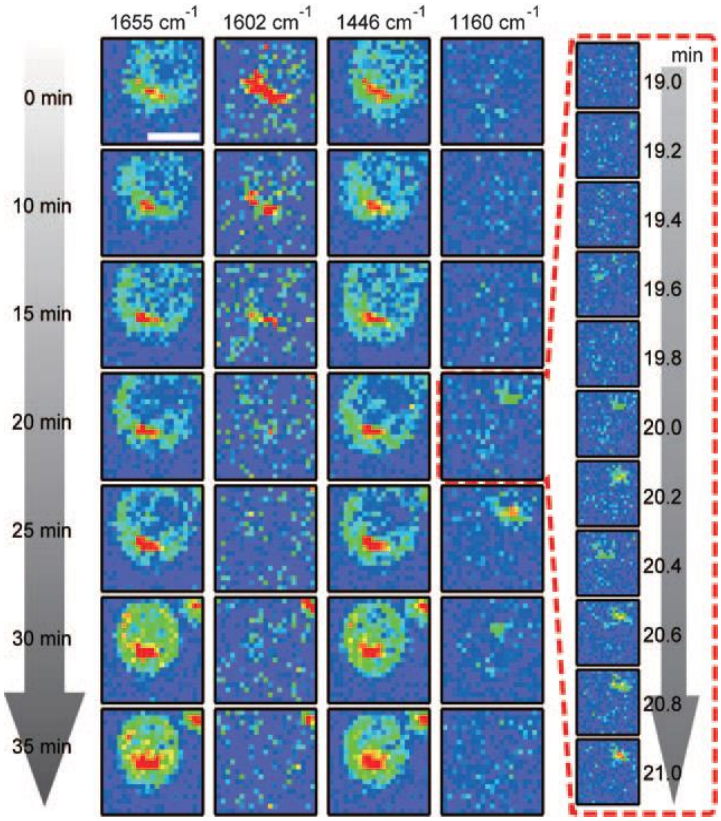



**Figure 1.16** – Images CARS résolues en temps pour les décalages Raman de 1655 $cm^{-1}$, 1602 $cm^{-1}$, 1446 $cm^{-1}$ et 1160 $cm^{-1}$ respectivement (barre d'échelle : 5 mm) [59]. L'échelle colorée est la même pour toutes les images. Le cadre rouge à droite contient les images CARS à 1160 $cm^{-1}$ prises entre 19 min et 21 min (toutes les 12 s).

charges à respecter pour la source, décrit dans la section suivante.

### 1.4.2 Cahier des charges d'une source large-bande pour le M-CARS

Les médecins ont besoin de nouveaux instruments utilisant des méthodes non invasives pour la détection précoce de maladies, et notamment pour réaliser des mesures *in vivo* à travers une fibre optique par exemple. D'un autre côté, la détection de maladies nécessite de mieux appréhender la structure cellulaire et les différents mécanismes biologiques, notamment intracellulaires. La spectroscopie M-CARS semble tout à fait indiquée pour répondre à ce double objectif puisque, comme je l'ai succinctement montré dans les sections précédentes, cette méthode permet d'analyser avec précision et sans avoir recours à des marqueurs la composition chimique d'un échantillon, y compris en temps réel dans une analyse *in vivo*. Il est donc indispensable de créer une source laser permettant cette analyse, spécialement conçue pour répondre aux contraintes du processus M-CARS.

La spectroscopie M-CARS repose sur l'utilisation d'une source à double sortie : une partie de l'onde est prélevée pour jouer le rôle de l'onde pompe/sonde tandis que le reste du rayonnement est spectralement élargi à travers une fibre optique pour devenir l'onde Stokes (Figure 1.17). Le choix de la source, que ce soit à travers le type de laser ou à travers la fibre optique utilisée pour

la génération du supercontinuum, revêt alors un caractère essentiel dans le développement d'un système de spectroscopie M-CARS performant.

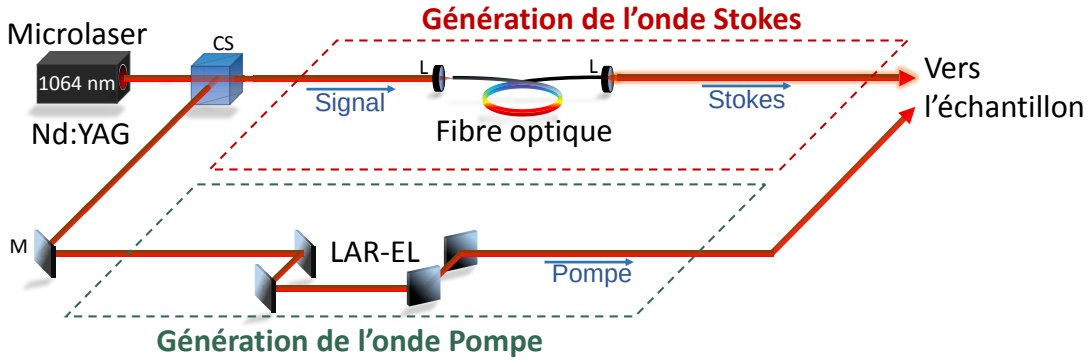



**Figure 1.17** – Schéma du dispositif d'une source dédiée à la spectroscopie CARS, possédant une sortie monochromatique (Pompe) et une sortie large-bande (Stokes). CS : cube séparateur ; M : miroir ; L : lentille ; LAR-EL : ligne à retard en espace libre.

En particulier, le choix de la spectroscopie M-CARS en régime nanoseconde est en partie dicté par l'objectif de réaliser une analyse complète de l'échantillon en une seule mesure. Comme cela a déjà été souligné, une telle analyse complète en « mono-coup » est plus difficile à mettre en œuvre en régime impulsionnel femtoseconde du fait de la dispersion chromatique. De surcroît, l'utilisation d'un laser microchip Nd:YAG à déclenchement passif émettant des impulsions à 1064 nm de durée subnanoseconde ($< 1$ ns) à des fréquences de répétition de plusieurs dizaines de kilohertz donne la possibilité d'atteindre à la fois une bonne résolution spectrale et des niveaux énergétiques des faisceaux qui permettent de réduire considérablement le temps d'exposition de l'échantillon pour limiter leurs risques de destruction.

Comme cela a été vu en section 1.2.2.1, l'essentiel des raies caractéristiques des vibrations nécessaires à identifier la nature exacte d'un échantillon biologique se trouve dans la zone d'empreinte digitale (entre 800 $cm^{-1}$ et 1800 $cm^{-1}$) mais il est également pertinent d'analyser les vibrations des liaisons CH (autour de 3000 $cm^{-1}$). Le spectre large-bande doit alors permettre une analyse complète sur la bande 800 $cm^{-1}$ – 3500 $cm^{-1}$. Cette contrainte implique que l'onde Stokes large-bande, engendrée à partir d'un signal à 1064 nm, doit au moins s'étendre de 1160 nm à 1600 nm, avec une attention particulière sur la bande 1160 nm – 1320 nm, nécessaire à l'excitation de la zone d'empreinte digitale. Ceci implique la génération d'un spectre le plus plat possible sur la bande considérée. Arbitrairement, nous pouvons fixer comme objectif une source dont la différence de puissance sur la bande n'excèderait pas 5 dB. Bien sûr, une densité spectrale de puissance élevée, permettant d'obtenir un signal CARS plus élevé doit être recherchée. Nous nous fixons comme objectif d'égaler au moins sur ce critère les sources utilisées actuellement dans des systèmes similaires à celui que nous visons. Pour cela, il est nécessaire d'atteindre une densité spectrale de puissance moyenne sur la bande considérée d'au moins 0,03 $mW.nm^{-1}$ [62].

Par ailleurs, le processus CARS nécessite l'excitation simultanée de l'échantillon par l'onde pompe et l'onde Stokes. Puisque ceci est valable également dans le cas du M-CARS, il est

indispensable que l'ensemble des composantes de l'onde Stokes large-bande soient synchronisées entre elles d'une part, et synchronisables avec l'onde pompe d'autre part.

En résumé, toute source à supercontinuum destinée à la réalisation d'un dispositif de spectroscopie M-CARS doit respecter trois objectifs :
– Un spectre plat qui s'étend de 1160 nm à 1600 nm ;
– Une densité spectrale de puissance élevée ($> 0{,}03$ mW.nm$^{-1}$) ;
– Une synchronisation de l'ensemble de ses composantes spectrales.
Pour atteindre ces trois objectifs, il est nécessaire de connaitre les processus qui interviennent dans la génération de supercontinuum à travers une fibre optique. Dans le prochain chapitre, nous nous intéresserons donc au phénomène d'élargissement spectral dans les fibres en mettant l'accent sur les effets non linéaires mis en jeu et sur le rôle des deux acteurs essentiels que sont la source laser et la fibre elle-même.

# Chapitre 2

# Génération de supercontinuum


Introduction ..... 50
2.1 Les sources lasers pour la génération de supercontinuum ..... 51
2.1.1 Généralités sur les lasers ..... 51
2.1.2 Modes de fonctionnement des lasers impulsionnels ..... 58
2.1.2.1 Le blocage de mode ..... 58
2.1.2.2 La commutation de gain ou commutation-Q ..... 59
2.2 Propagation de la lumière dans les fibres optiques ..... 63
2.2.1 Fibres optiques classiques ..... 64
2.2.1.1 Profil d'indice de réfraction d'une fibre optique ..... 64
2.2.1.2 Modes de propagation dans les fibres optiques ..... 65
2.2.1.3 Fibres optiques multimodes ..... 69
2.2.2 Phénomènes linéaires de propagation dans les fibres ..... 71
2.2.3 Fibres optiques microstructurées ..... 79
2.2.3.1 Description et nature du guidage dans les fibres microstructurées air/silice ..... 79
2.2.3.2 Contrôle du zéro de dispersion dans les fibres microstructurées ..... 83
2.3 Propagation non linéaire dans les fibres optiques ..... 85
2.3.1 Effet Kerr ..... 86
2.3.2 Mélanges paramétriques ..... 87
2.3.3 Effet Raman ..... 88
2.3.4 Effets solitoniques ..... 90
2.3.5 Impact du régime de dispersion de la fibre sur l'élargissement spectral 93
2.4 État de l'art de la génération de supercontinuum ..... 94
2.4.1 Historique de l'élargissement spectral dans différents matériaux ..... 94
2.4.1.1 Les matériaux pour la génération de supercontinuum ..... 95
2.4.1.2 Élargissement spectral dans les fibres optiques ..... 97
2.4.2 Bilan sur la génération de supercontinuum dans les fibres optiques dans le proche infrarouge pour la spectroscopie M-CARS ..... 99

# Introduction

Dans le chapitre précédent, nous avons montré que la technique d'imagerie M-CARS requiert l'emploi de sources à large spectre afin de permettre une excitation simultanée de l'ensemble des liaisons chimiques d'intérêt, présentes dans l'échantillon. Par le passé, seules des sources incohérentes et non directives telles que des lampes à incandescence présentaient un tel spectre large, mais au prix d'une densité spectrale de puissance extrêmement faible.

De leur côté, les sources lasers inventées dans les années 1960 émettent des faisceaux avec une forte densité spatiale et spectrale de puissance, ce qui représente un avantages très important pour la spectroscopie M-CARS. Cependant, la plupart de ces sources possèdent un spectre très étroit (elles sont « quasi-monochromatiques », avec une grande longueur de cohérence), ce qui les rend particulièrement attractives pour de nombreuses applications telles que l'interférométrie ou les télécommunications optiques, mais qui fait qu'elles sont finalement inadaptées pour le M-CARS.

Dès lors, on comprend l'intérêt de mettre au point des sources lasers à large bande, émettant dans un mode spatial unique. La mise au point de ce type de source est fondée sur l'excitation d'un milieu non linéaire par un laser puissant. Les effets non linéaires engendrés dans le milieu se traduisent alors par un très fort élargissement spectral de l'onde de pompe (Figure 2.1). Les paramètres caractéristiques de la source laser et du milieu non linéaire jouent un rôle prépondérant dans la génération du spectre large et influencent très fortement son profil.

Ainsi, dès le milieu des années 1960, l'avènement des systèmes lasers a permis la création de différentes sources de supercontinuum. Les lasers impulsionnels fonctionnant dans différents régimes temporels (des impulsions nanosecondes aux impulsions femtosecondes) permettent en particulier d'atteindre de fortes puissances crêtes (jusqu'à plusieurs gigawatts), ce qui favorise le développement des effets non linéaires dans les milieux traversés, qu'ils soient liquides, solides ou gazeux. Ces milieux doivent être à la fois fortement non linéaires et transparents. C'est le cas, en pratique, des milieux cristallins qui présentent une forte non-linéarité propice à l'élargissement spectral et peuvent être transparents sur une large gamme de longueurs d'onde. La principale limite dans l'utilisation de cristaux réside dans la faible longueur d'interaction qu'ils permettent du fait de leur incapacité à guider la lumière. À l'inverse, malgré un plus faible coefficient non linéaire apporté par le matériau (silice, verre de chalcogénure, verre en oxyde de tellure etc.), les fibres optiques se sont révélées précieuses dans la génération de supercontinuum du fait de leur capacité à confiner la lumière injectée dans le cœur et à la guider sur de longues distances.

L'invention, à la fin des années 1990, des fibres microstructurées a permis d'obtenir des élargissements spectraux encore plus importants, et a démultiplié les possibilités d'agir sur la forme du spectre. Comme cela sera explicité plus loin, ces progrès sont dus (i) d'une part à un confinement encore plus strict du champ dans le cœur induit par une forte proportion d'air dans la gaine optique, (ii) et d'autre part aux effets de la dispersion chromatique du mode guidé qui peut être ajustée d'une manière beaucoup plus fine dans ces fibres grâce à un choix adéquat de ses paramètres optogéométriques.

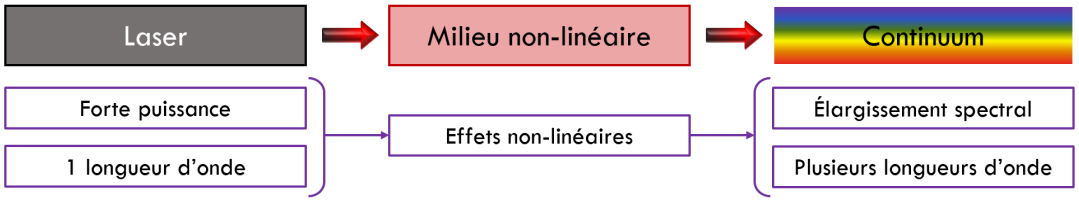



**Figure 2.1** – Principe de la génération d'un supercontinuum dans un milieu non linéaire.

Dans ce chapitre, nous nous intéresserons aux deux principaux constituants du système de génération de supercontinuum destiné à répondre au cahier des charges fixé dans le Chapitre 1, à savoir les sources lasers subnanosecondes en tant que sources de pompe et les fibres optiques comme milieu non linéaire. Nous passerons également en revue les effets non linéaires responsables de l'élargissement spectral au cours de la propagation du signal dans la fibre optique. Enfin, nous dresserons un état de l'art de la génération de supercontinuum dans le proche infrarouge en régime d'impulsion longue (subnanoseconde).

## 2.1 Les sources lasers pour la génération de supercontinuum

Une source laser est un élément indispensable pour la génération de supercontinuum, dans la mesure où l'excitation des non-linéarités d'un milieu nécessite des densités spatiales de puissance que seuls les lasers peuvent atteindre. Nous proposons dans cette première section quelques rappels sur les lasers. En particulier, nous mettrons l'accent sur le fonctionnement des lasers nanosecondes comme ceux qui seront utilisés dans notre système.

### 2.1.1 Généralités sur les lasers

La première démonstration pratique du laser a été proposée en 1960 par Maiman [63]. Elle résulte de la synthèse d'un grand nombre de travaux précurseurs sur les trois éléments de base qui constituent un laser :
- la cavité résonante, issue des travaux de Fabry et Pérot en 1898 ;
- le milieu amplificateur dans lequel se produit l'émission stimulée de photons, prédite par les travaux d'Einstein en 1917 ;
- le pompage optique, découvert par Kastler en 1949.

Un laser est, une source de lumière cohérente alimentée en énergie par une source de pompage, dans laquelle la lumière émise au sein d'un milieu actif est amplifiée par émission stimulée. Une partie de cette lumière est émise vers l'extérieur (faisceau laser), l'autre étant réinjectée dans le milieu (rétroaction optique) à l'aide d'une cavité résonnante. Dans cette section, nous présentons succinctement le fonctionnement d'un laser à travers ces différentes composantes, avant de nous intéresser plus particulièrement aux lasers déclenchés utilisés durant ce travail de thèse.

#### 2.1.1.1 Mécanismes électroniques d'absorption et d'émission

Dans le but de comprendre le fonctionnement d'un laser, il est nécessaire de s'intéresser, dans un premier temps, aux différents mécanismes physiques d'interaction entre un photon et la matière. Pour cela, il faut considérer le photon comme un quantum d'énergie lumineuse, portant une énergie $h\nu$ (où $h$ est la constante de Planck et $\nu$ la fréquence du photon). De son côté, la matière est constituée d'un nuage électronique ou chaque entité (électron) est emprisonné sur son niveau fondamental. Dans le cas des lasers, trois principaux mécanismes peuvent exister entre un électron et un photon : l'absorption, l'émission spontanée et l'émission stimulée. Les diagrammes énergétiques de ces trois mécanismes sont présentés schématiquement en Figure 2.2.

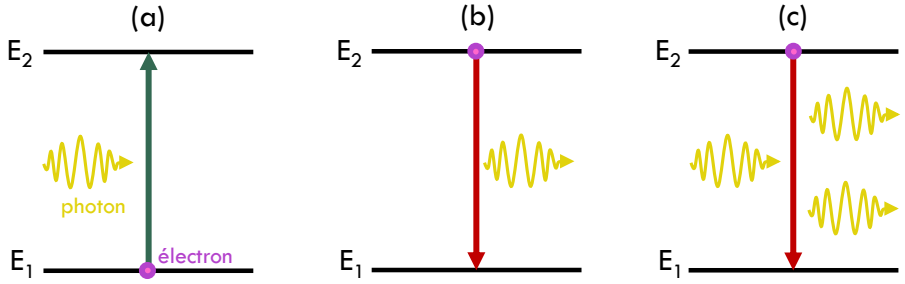



**Figure 2.2** – Représentations énergétiques des phénomènes électroniques d'interaction lumière-matière de (a) absorption ; (b) émission spontanée ; (c) émission stimulée.

Pour expliquer ces phénomènes, nous considérons deux niveaux d'énergie $E_1$ et $E2$ tels que $E2 > E1$. Nous verrons par la suite qu'il est indispensable d'utiliser des milieux à plus de deux niveaux pour permettre une émission laser.

L'**absorption** (Figure 2.2a) est un mécanisme selon lequel un électron qui se trouve dans un état d'énergie $E_1$ peut absorber l'énergie $h\nu$ d'un photon incident et par conséquent atteindre un niveau énergétique supérieur $E_2$, tel que $\Delta E = E_1 – E_1 = h\nu$.

Lorsque l'électron se trouve à l'état énergétique $E_2$, il va spontanément se désexciter pour retrouver un état moins énergétique $E_1$. Cette désexcitation radiative entraine l'émission d'un photon d'énergie $h\nu = \Delta E$ pour se désexciter. On parle alors d'**émission spontanée** (Figure 2.2b).

Il est également possible que la désexcitation d'un électron à l'état excité $E_2$ vers l'état $E_1$ soit provoquée par l'interaction d'un photon incident avec cet électron. Cette interaction engendre alors l'émission de deux photons identiques (même direction de propagation, même état de polarisation, même phase). Il s'agit d'une **émission stimulée** (Figure 2.2c).

Finalement, un photon incident d'énergie $\Delta E$ (photon « signal ») interagissant avec un milieu donné peut soit être absorbé (perte), soit engendrer l'émission d'au moins un deuxième photon par émission stimulée (gain). Pour que la traversée du milieu par les photons signal se traduise par un gain (amplification), il faut que la probabilité d'émission stimulée de photons soit supérieure à la probabilité d'absorption. Autrement dit, la densité de population des électrons à l'état excité $E_2$ doit être supérieure à la densité de population des électrons à l'état $E_1$ : c'est la

condition d'inversion de population. Si le milieu amplificateur est enfermé dans une cavité permettant de réinjecter dans ce milieu une fraction des photons signal émis, et sous réserve que le gain soit supérieur aux pertes de la cavité, on obtiendra en sortie l'émission d'un faisceau de photons identiques appelé faisceau laser.

#### 2.1.1.2 Inversion de population et pompage

La population d'un niveau d'énergie est régie à l'état stable par la statistique de Boltzmann, selon laquelle :

$$N_i = A.\exp\left(-E_i/kT\right) \tag{2.1}$$

où $N_i$ est le taux de population sur le niveau $i$, $A$ est un coefficient de normalisation, $E_i$ est l'énergie du niveau $i$, $T$ est la température et $k = 1,38 \times 10^{-33}\text{J.K}^{-1}$ est la constante de Boltzmann.

Il en résulte que, pour la stabilité même de l'atome, l'essentiel des électrons se trouve, sans apport d'énergie extérieure, au niveau fondamental (Figure 2.3a). Or, comme on l'a évoqué dans la section précédente, le gain laser nécessite une inversion de population, c'est-à-dire que les électrons doivent être majoritairement à l'état excité $E_2$ (Figure 2.3b). Il est possible d'atteindre cette condition par pompage, grâce au mécanisme d'absorption décrit précédemment.

Il existe différentes sortes de milieux amplificateurs, classés selon le nombre de niveaux énergétiques mis en jeu lors de l'interaction avec un photon. Nous passons ici en revue les principaux systèmes énergétiques.

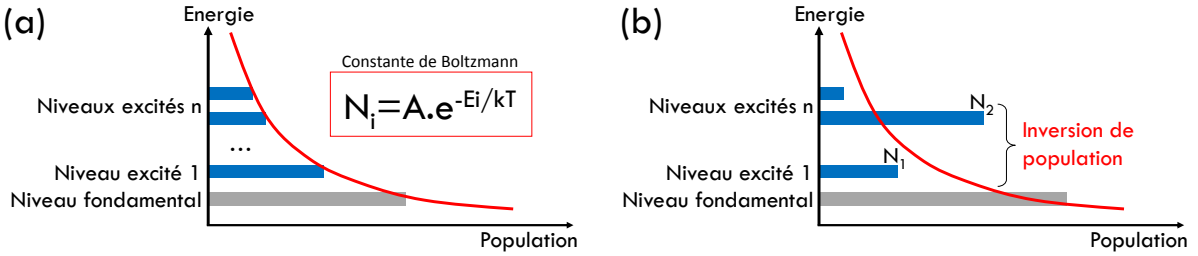



**Figure 2.3** – (a) Répartition énergétique classique des électrons sur leurs différents niveaux d'énergie selon la constante de Boltzmann ; (b) Représentation énergétique de l'inversion de population nécessaire à l'émission laser [64].

#### Les systèmes à deux niveaux

Dans un système mettant en jeu seulement deux niveaux, le photon de pompe et le photon signal ont la même énergie. Autrement dit, un photon de pompe d'énergie $h\nu = \Delta E$ est utilisé pour générer un photon signal de même énergie (Figure 2.4).

Cependant, comme Einstein l'a montré en 1917, la probabilité d'émission stimulée pour un atome dans l'état excité éclairé par un photon est égale à la probabilité d'absorption pour une transition donnée. Dans le meilleur des cas, celui d'un très fort pompage, on obtiendra au mieux $N_1 = N_2$.

Puisqu'ils ne permettent pas l'inversion de population, les systèmes à deux niveaux ne sont pas exploitables pour engendrer une émission laser.

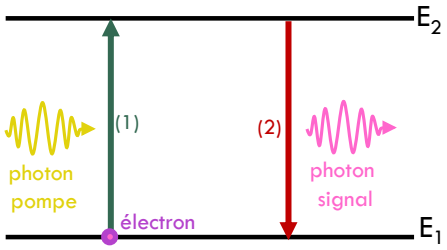



**Figure 2.4** – Représentation des transitions énergétiques dans un système à deux niveaux.

### Les systèmes à trois niveaux

Dans les systèmes à trois niveaux, le photon de pompe excite l'électron depuis le niveau fondamental pour qu'il atteigne un niveau d'énergie supérieur $E_3$. Par transition non radiative (phonon), l'électron rejoint le niveau énergétique $E_2$, duquel il va redescendre par émission d'un photon signal de longueur d'onde plus grande que celle de la pompe (Figure 2.5). La durée de vie très courte du niveau $E_3$ permet d'augmenter considérablement le nombre d'électrons à l'état excité $E_2$ dont la durée de vie est beaucoup plus grande (niveau métastable). Cependant, ce système permet difficilement de dépeupler le niveau énergétique bas $E_1$, puisqu'il s'agit du niveau fondamental et que celui-ci se repeuple automatiquement lorsque le laser est en fonctionnement, faisant chuter alors l'inversion de population.

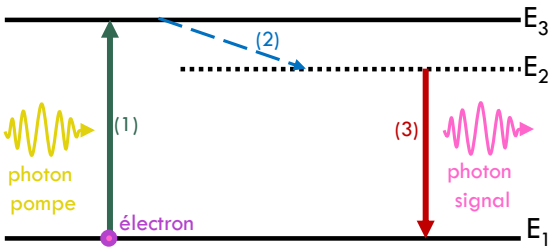



**Figure 2.5** – Représentation des transitions énergétiques dans un système à trois niveaux.

### Les systèmes à quatre niveaux

Dans un système à quatre niveaux, le pompage excite l'électron du niveau fondamental $E_1$ vers un niveau $E_4$ à courte durée de vie. Par une transition non radiative, l'électron se désexcite sur un niveau $E_3$ métastable, à partir duquel il subit une désexcitation radiative vers un niveau $E_2$ (Figure 2.6). Contrairement au cas des systèmes à trois niveaux, ce niveau bas de la transition radiative n'est plus le niveau fondamental mais un niveau d'énergie supérieur, de durée de vie courte. De ce niveau $E_2$, l'électron revient finalement au niveau fondamental par une transition non radiative. Comme pour le système à trois niveaux, il est aisé de peupler le niveau $E_3$ par pompage et désexcitation non radiative depuis le niveau $E_4$. De son côté, le niveau $E_2$ n'étant pas le niveau fondamental, il est naturellement dépeuplé par défaut. Si la

durée de vie de ce niveau $E_2$ est très courte, ce que l'on souhaite dans ce cas, les électrons arrivant à ce niveau se désexcitent très rapidement vers le niveau fondamental et le laissent dépeuplé ($N_2$ ˜ 0). L'inversion de population entre le niveau 3 et le niveau 2, atteinte dès le début du pompage, peut donc être très forte et conduire à un gain élevé.

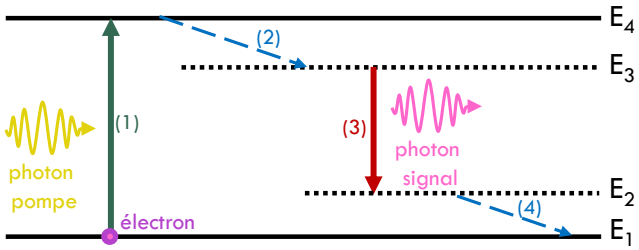



**Figure 2.6** – Représentation des transitions énergétiques dans un système à quatre niveaux.

### 2.1.1.3 Constitution d'une cavité laser

La cavité laser la plus simple est une cavité de type Fabry-Pérot, uniquement constituée de deux miroirs en regard, placés de part et d'autre du milieu amplificateur, permettant des allers-retours des photons signal à travers ce milieu. Le premier miroir est le plus réfléchissant possible à la longueur d'onde signal tandis que le second transmet une partie des photons reçus (sortie du laser). Il existe diverses conformations de cavités de type Fabry-Pérot suivant la nature des miroirs utilisés (miroirs plans, concaves ou convexes), représentées sur la Figure 2.7.

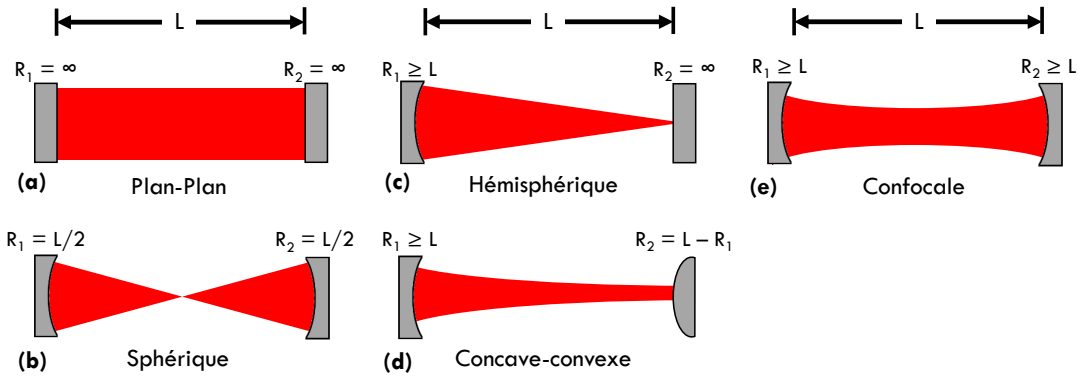



**Figure 2.7** – Représentation schématique des principales cavités laser de type Fabry-Pérot constituée de deux miroirs en regard : (a) configuration plan-plan ; (b) configuration sphérique ; (c) configuration hémisphérique ; (d) configuration concave-convexe ; (e) configuration confocale.

Des architectures plus complexes que les cavités de type Fabry-Pérot peuvent également être mises en œuvre, utilisant trois miroirs ou plus (cavités en anneaux, en X, etc.) [65]. Dans le cas des lasers à fibre, c'est-à-dire utilisant une fibre optique comme milieu amplificateur , les deux miroirs constituant la cavité laser sont souvent des réseaux de Bragg gravés dans le cœur de la fibre [66]. Il existe aussi des lasers à fibre n'utilisant aucun miroir mais pour lesquelles la

rétroaction est apportée par l'utilisation de deux coupleurs (Figure 2.8) : l'un est placé en sortie de la fibre active pour extraire une partie du signal tandis que l'autre est placé en entrée de fibre pour injecter dans la fibre active à la fois l'onde pompe le signal de rétroaction [67].

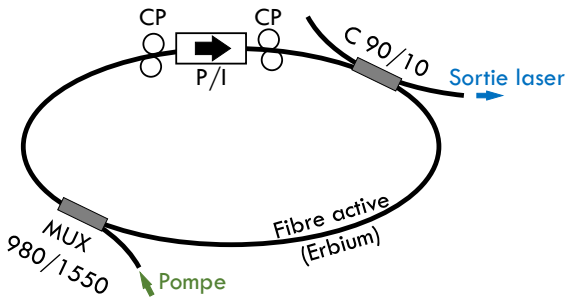



**Figure 2.8** – Configuration expérimentale d'un laser fibré en anneau émettant à 1550 nm basé sur l'utilisation d'une fibre dopée à l'erbium comme milieu amplificateur. CP : Contrôleur de polarisation ; P/I : Polariseur / Isolateur ; C 90/10 : Coupleur 90 % de sortie laser ; MUX 980/1550 : Multiplexeur 980 nm / 1550 nm d'injection de la pompe (d'après [67]).

#### 2.1.1.4 Les différents milieux amplificateurs

Comme nous l'avons rappelé précédemment, l'émission laser repose sur le phénomène d'amplification de la lumière dans un milieu actif (milieu amplificateur) par émission stimulée. Nous présentons ici brièvement les principaux milieux amplificateurs existants, des plus classiques (solide, gaz, etc.) jusqu'aux plus originaux (cellules biologiques).

**Les milieux amplificateurs solides**

Les lasers à solide utilisent des cristaux ou des milieux amorphes (matrices vitreuses ou céramiques) comme milieu amplificateur. Pour constituer un milieu amplificateur, la matrice cristalline ou vitreuse est dopée par des ions actifs (souvent des terres rares comme le néodyme Nd, l'ytterbium Yb, l'erbium Er ou le thulium Tm) pour permettre l'émission stimulée [68]. La longueur d'onde émise dépend principalement de l'ion (ou de la combinaison d'ions) dopant(s) utilisé(s) mais aussi, dans une moindre mesure, de la matrice receveuse. Parmi les cristaux dopés les plus utilisés, on peut citer le cristal de YAG dopé néodyme (Nd:YAG) pour émettre à 1064 nm (voir section 2.1.1.2) et le saphir dopé au titane (Ti:Saphir) qui permet une émission à 800 nm.

**Les milieux amplificateurs liquides**

Des molécules organiques (telles que la rhodamine B, le stilbène ou la coumarine) diluées dans une solution alcoolique peuvent également servir de milieu amplificateur. Ces solutions, pompées par un autre laser, entrainent l'émission de spectres assez larges (plusieurs dizaines de nanomètres), essentiellement dans le visible [69]. Les lasers utilisant ce type de milieu sont appelés lasers à colorants (ou « dye-laser »). Bien qu'ils soient de moins en moins employés du fait de leur mise en œuvre délicate, ils sont encore utilisés de nos jours, notamment en dermatologie (traitement des verrues ou des cicatrices) [70].

#### Les milieux amplificateurs gazeux

Les lasers à gaz enferment un gaz dans un tube en verre, généralement pompé électriquement pour engendrer un faisceau laser dont la longueur d'onde dépendra du gaz ou du mélange de gaz utilisé. Ils ont la particularité d'émettre des rayonnements avec des spectres très fins. A titre d'exemple, les lasers à dioxyde de carbone émettant à 10,6 µm sont utilisés pour la gravure ou la découpe de matériau à haute puissance [68] et les lasers à argon émettant autour de 500 nm trouvent des applications pour la chirurgie rétinienne [71]. Les lasers à gaz ont en partie été supplantés par les diodes lasers pour certaines applications du quotidien, comme la lecture de code-barres, auparavant effectuée à l'aide de lasers à Hélium-Néon émettant à 632,8 nm.

#### Les milieux amplificateurs fibrés

Ces dernières années, les fibres optiques ont montré qu'elles pouvaient présenter un grand intérêt en tant que milieu amplificateur. Le dopage des fibres aux ions de terres rares, qui sera évoqué dans le chapitre suivant, permet en effet d'obtenir l'amplification nécessaire à l'émission laser, de la même manière que dans un cristal, avec un gain linéique plus faible mais obtenu sur une très grande longueur.

#### Les semi-conducteurs

Dès 1962, un nouveau type de laser est proposé par Hall et coll., basé sur l'utilisation d'un semi-conducteur, en l'occurrence d'une structure en arséniure de gallium (GaAs) [72]. Dans ces lasers à semi-conducteurs, que l'on appelle couramment diodes lasers, l'émission des photons est obtenue au niveau de la jonction semi-conductrice. Plus exactement, un photon est émis lors du passage, imposé par le courant injecté dans la jonction (pompage électrique), d'un électron de la bande de conduction à la bande de valence, entre lesquelles se trouve la bande interdite. La condition de Bernard et Duraffourg, équivalente à l'inversion de population dans les autres types de lasers, doit alors être respectée pour profiter d'un gain laser [73].

Depuis leur création, les diodes lasers ont été principalement utilisées dans les télécommunications, où l'on tire profit de leurs fréquences de modulation élevées pour coder l'information lumineuse à haut débit véhiculée dans les réseaux de transmission à fibres optiques. Elles trouvent aussi un intérêt pour le pompage optique de milieux amplificateurs pour l'émission laser (les lasers à fibre ou à cristaux notamment) [74].

#### Autres types de milieux amplificateurs

Bien plus à la marge, on trouve des milieux amplificateurs plus originaux, mis en œuvre pour la beauté de la science plus que par raison. On peut ainsi citer ce « système laser original » proposé par Gather et Yun en 2011 et dans lequel l'émission laser est obtenue à partir d'une cellule biologique contenant des protéines fluorescentes utilisées comme milieu amplificateur, placée dans une cavité de type Fabry-Pérot [75].

Les cinq grands types de milieux amplificateurs cités précédemment (en mettant volontairement de côté le « laser biologique ») peuvent être utilisés selon la gamme de longueur d'onde voulue et l'application visée pour créer des lasers continus ou impulsionnels.

Beaucoup d'applications nécessitent l'utilisation de lasers à forte puissance crête. Il est alors recommandé de se tourner vers les lasers impulsionnels qui permettent d'atteindre justement des puissances importantes. Pour rappel, la puissance crête est définie en fonction de la puissance moyenne $P_m$, de la durée d'impulsion $\Delta t$ et de la fréquence de répétition $F_r$ par la relation suivante :

$$P_c = \frac{P_m}{\Delta t F_r} \tag{2.2}$$

Intéressons-nous maintenant au fonctionnement des lasers impulsionnels, classés en deux grandes familles : les lasers à modes bloqués et les lasers déclenchés.

### 2.1.2 Modes de fonctionnement des lasers impulsionnels

#### 2.1.2.1 Le blocage de mode

Une cavité laser se comporte comme un filtre spectral permettant l'émission de raies discrètes (modes longitudinaux). On définit l'intervalle spectral libre (ISL) comme étant l'écart fréquentiel entre chaque mode longitudinal :

$$\text{ISL} = \frac{v}{2L} \tag{2.3}$$

avec $v$ la vitesse de la lumière dans le milieu et $L$ la longueur de la cavité.

Ainsi, plusieurs modes longitudinaux peuvent coexister dans la cavité laser, de manière indépendante et avec des relations de phase aléatoires. Une mise en phase de ces modes peut être obtenue par intervention externe, par exemple en modulant les pertes de la cavité à une fréquence égale à l'ISL à l'aide d'un modulateur placé à l'intérieur de la cavité laser. Cette mise en phase entraîne le fonctionnement du laser dans un régime de blocage de mode (Figure 2.9). On obtient alors un train d'impulsions lumineuses dont la période de répétition $T$ vaut :

$$T = \frac{2L}{c} \tag{2.4}$$

Il s'agit du temps nécessaire à l'impulsion pour faire un aller-retour dans la cavité. Le champ intracavité n'est donc composé que d'une seule impulsion, qui résulte d'une interférence constructive entre les N modes de la cavité et dont la valeur maximale d'intensité est proportionnelle à $N^2$. La durée de l'impulsion vaut alors :

$$\Delta t = \frac{T}{N} \tag{2.5}$$

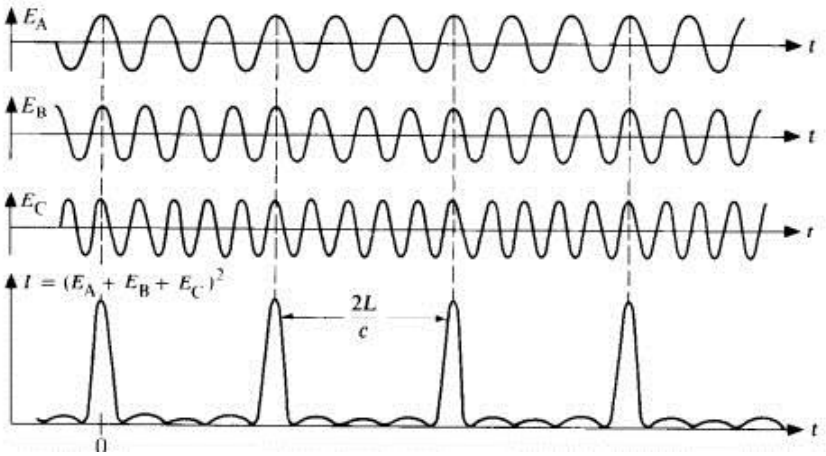



**Figure 2.9** – Mise en phase de trois modes A, B et C existant dans la cavité laser de manière à générer un train d'impulsions. Chaque impulsion émise correspond à la somme constructive des modes présents[76].

Le blocage de mode peut également être obtenu par l'utilisation d'un absorbant saturable (ou un équivalent en terme de transmission non linéaire) placé dans la cavité. Il s'agit d'un milieu (ou d'un ensemble d'élément) présentant des pertes importantes à faible intensité et dont l'absorption (c'est-à-dire les pertes) devient presque nulle lorsque l'intensité est grande. Dans ces conditions seule la condition de blocage en phase d'un ensemble de modes permet d'obtenir un effet laser avec une transmission intracavité optimale. Il en résulte alors une sélection naturelle de ce mode de fonctionnement en régime d'impulsions courtes.

Les lasers à blocage de modes permettent d'obtenir des impulsions brèves (femtoseconde, picoseconde) à des fréquences de répétition pouvant atteindre plusieurs dizaines de Mégahertz [65]. On retrouve d'ailleurs, comme le montre le Chapitre 1, beaucoup de systèmes de spectroscopie CARS basés sur l'utilisation de lasers à blocage de modes délivrant des impulsions femtosecondes. Pour autant, ces lasers sont des systèmes très complexes à mettre en œuvre et qui demeurent fragiles, onéreux et encombrants. A l'opposé, les lasers déclenchés, fondés sur la commutation de gain décrite dans la section suivante, sont beaucoup plus faciles à utiliser, et sont à la fois plus compacts et de moindre coût.

#### 2.1.2.2 La commutation de gain ou commutation-Q

Les lasers à commutation de gain (≪ Q-switching ≫) reposent sur une modulation de leurs pertes intracavité. L'énergie est accumulée tant que ces pertes sont très élevées (phase de stockage) puis libérée brutalement lorsque les pertes deviennent très faibles devant le gain du milieu amplificateur (phase de déclenchement).

Cette commutation de gain peut être réalisée de manière active, par exemple à l'aide d'une cellule de Pockels placée dans la cavité et dont la transparence est contrôlée par l'application d'un champ électrique externe. Ce type de déclenchement nécessite l'utilisation d'un générateur de tension performant, capable de délivrer de fortes tensions (jusqu'à 5 kV). Il permet d'atteindre

des temps de commutation de l'ordre de la dizaine de picosecondes [77].

La modulation de gain peut également être opérée de manière passive, par exemple par rotation de polarisation [78] ou encore par effet Kerr [79]. Un absorbant saturable peut aussi être utilisé. Parmi les cristaux utilisés comme absorbants saturables, les plus courants sont le grenat d'Yttrium-Aluminium (YAG) dopé au Chrome (de formule chimique $Cr^{4+}$:$Y_3Al_5O_{12}$) pour des longueurs d'onde de travail entre 900 nm et 1200 nm [80] (Figure 2.10) ou YAG dopé au Cobalt (de formule $Co^{2+}$:$Y_3Al_5O_{12}$) pour un fonctionnement à 1500 nm [81].

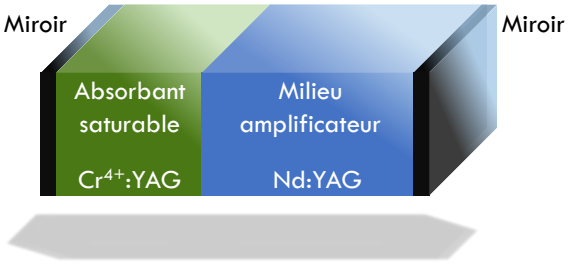



**Figure 2.10** – Schéma de la constitution d'un laser Nd :YAG déclenché passivement par un absorbant saturable $Cr^{4+}$ :YAG. Le milieu amplificateur et l'absorbant sont placés dans une cavité laser constituée de deux miroirs.

L'impulsion laser est créée en fonction des pertes du cristal absorbant, du gain du cristal amplificateur et des conditions d'oscillation dans la cavité. Au départ, le cristal absorbant n'est pas transparent et l'énergie de pompage est stockée dans le cristal amplificateur, ce qui aboutit à l'inversion de population et à une augmentation de la densité de photons dans la cavité lorsque le gain devient légèrement supérieur aux pertes. Lorsqu'il est saturé par le flux de photons engendrés, l'absorbant saturable devient brusquement transparent, ses pertes chutent drastiquement et l'impulsion est créée (Figure 2.11a). La fin de l'impulsion est dictée par la chute de gain, traduisant le fait que l'inversion de population n'est plus réalisée dans le cristal amplificateur (Figure 2.11b). L'absorbant perd sa transparence et un nouveau cycle de stockage-émission commence. C'est la répétition de ce processus qui génère les trains d'impulsions.

La durée du front montant dépend donc de la dynamique de saturation de l'absorbant saturable (temps de commutation) tandis que le front descendant découle de l'appauvrissement du gain laser (Figure 2.11c). Les temps d'action de ces deux phénomènes physiques ne sont pas identiques et les impulsions générées sont dissymétriques. Par exemple, l'impulsion représentée en Figure 2.11c montre une durée de front montant de 505 ps et une durée de front descendant de 740 ps (durées mesurées entre 90 % et 10 % de l'amplitude de l'impulsion).

Nous verrons dans le Chapitre 4 que la forme des impulsions délivrées par le microlaser utilisé pour le pompage d'une fibre, dans le but de générer un supercontinuum, influe sur la répartition spectrotemporelle des longueurs d'onde créées par effets non linéaires. Nous chercherons alors à profiter de la dissymétrie de l'impulsion pour constituer une répartition particulière de la puissance en fonction du temps.

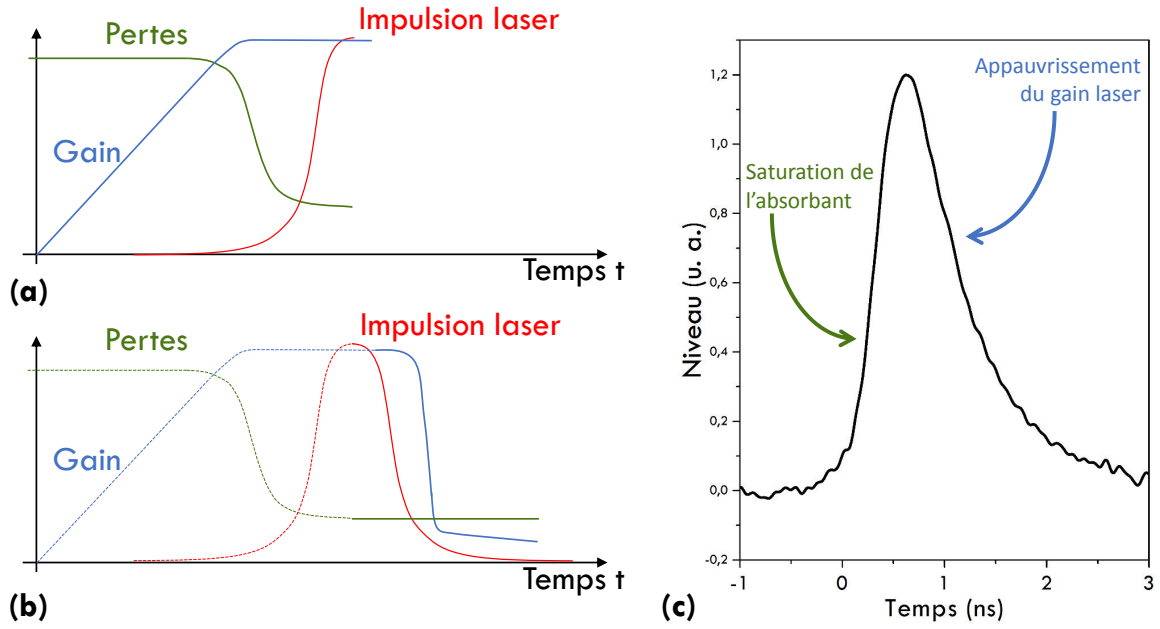



**Figure 2.11** – Dynamique de création d'une impulsion générée par un laser Nd :YAG à déclenchement passif : (a) création du front montant ; (b) création du front descendant ; (c) dissymétrie d'une impulsion due à sa génération par les phénomènes de saturation de l'absorbant saturable et de fin d'inversion de population. Cette impulsion a été mesurée en sortie du microlaser présenté en section II.1 du Chapitre 3.

Certains systèmes de déclenchement permettent d'éviter cette dissymétrie. C'est le cas des absorbants saturables non cristallins de type SESAM (« SEmiconductor Saturable Absorber Mirror ») [82]. Ils sont constitués d'un miroir à réseau de Bragg auquel est incorporé un absorbant saturable, tous les deux fabriqués à l'aide de semi-conducteurs (souvent InGaAs pour l'absorbant et GaAs/AlAs pour le miroir). Cet absorbant a la particularité de retrouver un état absorbant de manière ultrarapide, ce qui a pour effet de symétriser l'évolution des pertes de la cavité durant la commutation (le temps de saturation est égal au temps de recouvrement de l'absorption). Cela permet alors l'émission d'impulsions quasi-symétriques temporellement.

Les lasers déclenchés sont utilisés pour générer des impulsions nanosecondes ou subnanosecondes (de 0,1 ns à plus de 100 ns) à des fréquences de répétition pouvant aller jusqu'à la centaine de kilohertz.

Dans l'optique de produire des lasers à moindre coût, Zayhowski et Mooradian ont été les premiers en 1989 à démontrer le concept de microlaser (« laser microchip »), c'est-à-dire de laser miniature [83]. Ainsi, Zayhowski et Mooradian ont utilisé un cristal Nd:YAG de longueur 730 µm, placé entre deux miroirs diélectriques accolés au cristal de manière à engendrer une émission laser. Du fait que le temps de réponse de l'absorbant saturable soit très supérieur au temps d'aller-retour de la lumière dans la cavité, aucune émission en mode de blocage ne peut être obtenue. De plus, l'émission de ces lasers miniatures est généralement quasi-monomode longitudinalement.

Il est également important de noter que la stabilité de ces sources est généralement très bonne tant sur le plan de l'amplitude que sur la durée des impulsions lasers émises. Seule une gigue

temporelle de l'ordre de 1 µs à 15 µs vient limiter l'utilisation de ces oscillateurs qui délivrent néanmoins des puissances crêtes de plus de 10 kW à 30 kW. Enfin, l'augmentation de la puissance de pompe permet de fixer très facilement la fréquence de récurrence de sortie tout en maintenant des durées d'impulsions identiques quelle que soit la récurrence. Une commutation de la diode de pompe permet également un déclenchement externe intéressant.

**Tableau 2.1** – Exemples de performances de microlasers émettant des impulsions à 1064 nm.

| Milieu | Longueur d'onde | Durée des impulsions | Fréquence de répétition | Référence |
|---|---|---|---|---|
| | (nm) | (ns) | (kHz) | |
| $LiNdP_4O_{12}$ | 1048 | 0,08 | 4 | [84] |
| Nd:$YVO_4$ | 1064 | 16 | 25 | [85] |
| Nd:YAG | 1064 | 32 | 1 000 | [86] |
| Nd:YAG | 1064 | 0,76 | 4 | [84] |
| Nd:YAG | 1064 | 0,9 | 33 | [87] |
| Nd:YAG | 1064 | 1 | 6,6 | [58] |

Le Tableau 2.1 montre quelques exemples de performances atteintes par des microlasers déclenchés en régime impulsionnel, délivrant des impulsions aux alentours de 1064 nm. Les deux derniers microlasers sélectionnés servent d'ailleurs à générer des supercontinuums pour la spectroscopie M-CARS. En termes de puissances, ces différents microlasers peuvent atteindre plusieurs dizaines de kilowatts crête, répondant ainsi aux besoins de la génération de supercontinuum dans des fibres optiques. Qui plus est, les microlasers sont, du fait de leur compacité, des sources simples à fabriquer et peu onéreuses, ce qui les rend d'autant plus attractif pour la création d'un système de spectroscopie M-CARS.

Ces sources lasers miniatures existent également à d'autres longueurs d'onde, qui sont celles engendrées par le pompage des ions néodyme, ytterbium, erbium, holmium ou thulium. On peut par exemple obtenir :
– une émission à 946 nm, 1064 nm ou 1319 nm avec le Nd:YAG ;
– une émission à 914 nm, 1064 nm ou 1342 nm avec le Nd:$YVO_4$ ;
– une émission à 1047 nm ou 1053 nm avec le Nd:YLF ;
– une émission à 1030 nm avec du Yb:YAG.
De manière plus exotique, des émissions à 1,53 µm, 1,645 µm, 2,09 µm et 2,016 µm ont été démontrées et peuvent être respectivement obtenues avec les milieux amplificateurs suivants : Er:verre [88], Er:YAG [89], Ho:YAG [90] et Tm:YAG [91]. A cela, on peut ajouter les conversions de toutes ces longueurs d'onde au second, troisième et quatrième harmonique. Ces sources

lasers représentent donc un vivier extrêmement dense de sources infrarouges et visibles pouvant délivrer des impulsions courtes à forte puissance crête même si les longueurs d'onde les plus faciles à obtenir généralement restent les raies classiques des ions néodyme (1064 nm) et ytterbium (1030 nm).

En introduction de ce chapitre, nous avons souligné que les supercontinuums nécessaires à l'application M-CARS pouvaient être engendrés par le développement d'effets non linéaires dans des fibres optiques. La nature et les caractéristiques optogéométriques de ces guides jouent un rôle très important dans la création de ces continuums. C'est pourquoi, dans la section suivante, nous rappelons quelques généralités sur les fibres optiques et nous proposons une revue des effets linéaires induits au cours de la propagation d'une onde lumineuse dans ces guides.

## 2.2 Propagation de la lumière dans les fibres optiques

Le milieu non linéaire le plus favorable à la génération de supercontinuum est la fibre optique, qui présente l'avantage décisif d'offrir une très grande longueur d'interaction et un fort confinement de l'énergie en comparaison des cristaux non linéaires. La structure même du matériau vitreux, qui compose la plupart des fibres optiques classiques (fibres en silice dopée), possédé également une non-linéarité du troisième ordre qui est généralement plus faible que celle des cristaux (du deuxième ordre) mais qui peut être exacerbée avec différents dopages. Dans ces conditions, la propagation guidée est un apport fondamental dans l'obtention des conversions de fréquences qui sont à la base de la génération de supercontinuum.

La propagation de la lumière dans une fibre optique classique repose sur le principe de réflexion totale interne, déjà exploité dans l'expérience de « fontaine lumineuse » au milieu du XIX$^{e}$ siècle. Cette expérience, dont la paternité est disputée [1] entre l'Irlandais John Tyndall et les physiciens Daniel Colladon et Jacques Babinet, consiste à transporter la lumière à travers un filet d'eau. Il a ainsi été démontré que la lumière pouvait être guidée dans un milieu d'indice élevé (ici, l'eau d'indice $n_1 = 1{,}33$ dans le visible) entouré d'un second milieu d'indice de réfraction plus faible (l'air d'indice $n_2 = 1$). L'idée a ensuite été reprise avec un barreau de verre dans lequel la lumière se propageait par réflexion totale interne sur le dioptre air/verre, remplacé finalement par un dioptre verre/verre grâce à l'enrobage du barreau initial (le coeur) par une couche de verre **d'indice d'indice** plus bas (la gaine optique). Un historique plus détaillé du développement des fibres optiques est proposé par W. Blanc dans la Réf. [92].

Le principe de la réflexion totale interne est toujours utilisé pour la propagation de la lumière dans les fibres optiques standards en silice, dont nous allons maintenant rappeler quelques principes.

1. Bien que Colladon et Babinet aient observé le phénomène dès 1841, Tyndall n'a jamais fait référence à leurs travaux lorsqu'il a monté l'expérience de son côté en 1881. Depuis, les Anglo-saxons persistent à attribuer la découverte des fontaines lumineuses à Tyndall.

### 2.2.1 Fibres optiques classiques

#### 2.2.1.1 Profil d'indice de réfraction d'une fibre optique

Une fibre optique classique est un guide d'onde diélectrique, généralement cylindrique, composé de deux milieux transparents concentriques d'indices de réfraction différents, celui du milieu interne (le cœur) et celui du milieu externe (la gaine optique). On note n(r) l'indice du cœur de la fibre optique en fonction de la distance r à l'axe et $n_2$ l'indice de réfraction de la gaine optique (Figure 2.12a). Celle-ci est elle-même recouverte d'une gaine en résine polymère dans le but de protéger la silice des microfissures induites par l'environnement qui fragilise le matériau (agressions mécanique, humidité, produits chimiques, etc.).

Dans le cas général, le cœur et la gaine sont composés de silice ($SiO_2$) dopée ou non par un ou des « dopant(s) indiciel(s) » en faible concentration (Ge, Al, P, F, B, etc.) qui en modifie(nt) l'indice de réfraction. L'indice du cœur devant être supérieur à celui de la gaine, il existe deux possibilités :

- soit la gaine est en silice pure et le cœur est dopé avec des dopants qui en augmentent l'indice (Al, Ge, P). C'est le cas le plus fréquent ;
- soit le cœur est en silice pure pour bénéficier d'une transparence maximale et la silice de la gaine doit être dopée avec des dopants qui en diminuent l'indice (F, B). De telles fibres sont plus rares car les dopants mis en jeu sont beaucoup plus délicats et dangereux à manipuler et parce que la technique à mettre en œuvre est complexe (« Outside Vapor Deposition » ou OVD).

Il existe ainsi deux grands types de fibres optiques classées selon le profil de leur indice :

- les **fibres à saut d'indice** dans lesquelles l'indice est constant et égal à $n_1$ dans tout le cœur (Figure 2.12b) ;
- les **fibres à gradient d'indice** dans lesquelles l'indice du cœur décroit avec la distance à l'axe et adopte le plus souvent un profil parabolique (Figure 2.12c).

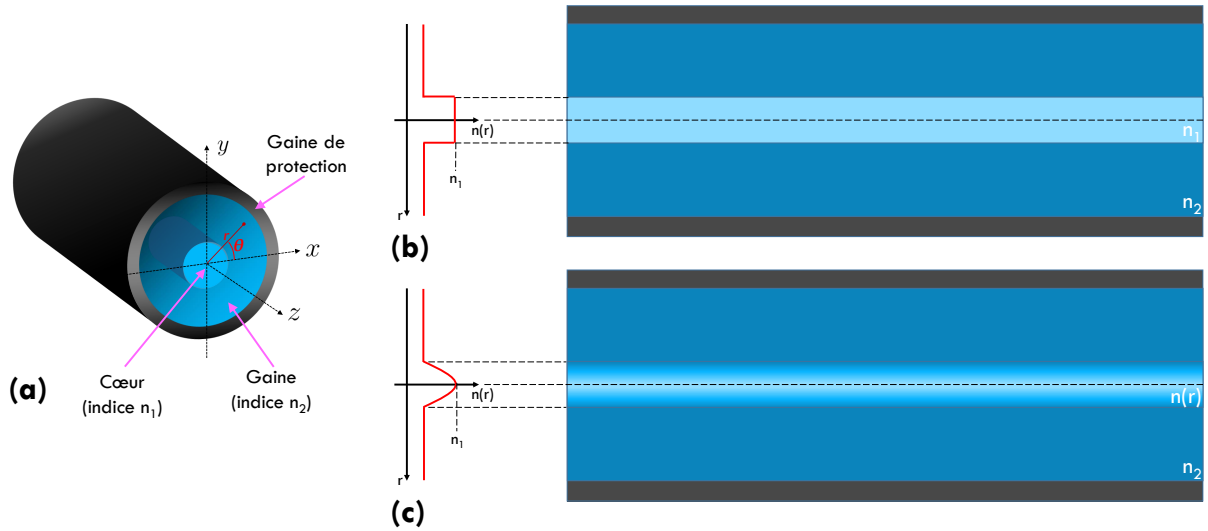



**Figure 2.12** – (a) Représentation schématique d'une fibre optique [93] ; (b) Profil d'indice d'une fibre à saut d'indice ; (c) Profil d'indice d'une fibre à gradient d'indice.

**Les fibres à saut d'indice**

D'après les lois de l'optique géométrique de Snell-Descartes, l'angle du faisceau incident par rapport à la normale de la face d'entrée de la fibre doit respecter la condition suivante pour garantir la réflexion totale du rayon injecté à l'interface cœur/gaine :

$$\sin\theta \leq \sqrt{\mathrm{n}_1^2 - \mathrm{n}_2^2} = \sin\theta_{max} \tag{2.6}$$

La quantité $\theta_{max}$ définit, par symétrie de révolution autour de l'axe $z$, le demi-angle au sommet du cône d'acceptance de la fibre. Un faisceau incident extérieur à ce cône conduira à l'excitation de modes non guidés (ou modes à fuite). La valeur $\sin\theta_{max}$ est l'ouverture numérique de la fibre. Comme l'indice est constant dans tout le cœur, l'ouverture numérique du cœur de la fibre est la même en tout point.

**Les fibres à gradient d'indice**

Dans les fibres à gradient d'indice, l'indice du cœur décroit de $\mathrm{n}_1$ (sur l'axe) à $\mathrm{n}_2$ (à l'interface avec la gaine optique). En considérant le cœur d'une fibre à gradient comme un empilement de couches concentriques de faible épaisseur $e$, d'indice décroissant avec la distance à l'axe, la propagation d'un rayon est ramenée à une succession de réfraction sur des surfaces localement planes. Ainsi, de façon analogue aux fibres à saut d'indice, on peut définir l'ouverture numérique locale de ces fibres en fonction de l'indice de la gaine $\mathrm{n}_1$ et l'indice du cœur $n$ en un point $M(r)$ :

$$\mathrm{ON}(r) = \sqrt{\mathrm{n}^2(\mathrm{M}) - \mathrm{n}_2^2} \tag{2.7}$$

Elle est évidemment maximale au centre du cœur, où elle est égale à celle d'une fibre à saut d'indice dont le cœur aurait un indice $\mathrm{n}_1$. Par convention, on considère cette valeur maximale comme étant l'ouverture numérique de la fibre.

#### 2.2.1.2 Modes de propagation dans les fibres optiques

Les considérations d'optique géométrique ne permettent pas de déterminer la distribution spatiale du champ dans une fibre optique. Pour cela, il est nécessaire de se référer à la théorie ondulatoire de la lumière, fondée sur les équations de Maxwell, dans le cas de la propagation de la lumière dans un guide diélectrique, c'est-à-dire sans charge ni courant [94] :

$$\mathrm{div}\vec{E} = 0 \tag{2.8}$$

$$\mathrm{div}\vec{H} = 0 \tag{2.9}$$

$$\mathrm{rot}\vec{E} = -\frac{\partial\vec{B}}{\partial t} \tag{2.10}$$

$$\mathrm{rot}\vec{H} = \varepsilon_0\frac{\partial\vec{E}}{\partial t} \tag{2.11}$$

dans lesquelles $\vec{E}$ et $\vec{H}$ sont respectivement les vecteurs champs électrique et magnétique et $\varepsilon_0$

est la permittivité électrique du vide ($\varepsilon_0 = 8,85^{-12}\,\mathrm{Fm}^{-1}$). Les champs E et H s'écrivent tels que :

$$\vec{E} = E(r,\theta)\exp j(\omega t - \beta z) \tag{2.12}$$

$$\vec{H} = H(r,\theta)\exp j(\omega t - \beta z) \tag{2.13}$$

où la distribution de champ $E(r,\theta)$ est un mode transverse de propagation invariant en $z$, $\omega$ est la pulsation et $\beta$ la constante de propagation du mode. Le développement des équations de Maxwell dans le cas d'un guide optique cylindrique tel qu'une fibre optique conduit à l'écriture de l'équation de Helmotz dont la résolution fournit l'expression des composantes axiales du champ $E_z$ et $H_z$ d'un mode donné en coordonnées cylindriques $(r,\theta,z)$ adaptées à la géométrie de la fibre :

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r} + \frac{1}{r^2}\frac{\partial^2}{\partial \theta^2} + \left(k^2 \mathrm{n}_1^2 - \beta^2\right)\right)\begin{bmatrix} E_z \\ \\ H_z \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 0 \\ \\ 0 \end{bmatrix} \tag{2.14}$$

La condition de guidage du mode exige qu'il reste confiné dans le cœur et que la fraction de champ présente dans la gaine soit évanescente, ce qui impose à la constante de propagation le respect de la condition suivante :

$$k\mathrm{n}_2 \leq \beta \leq k\mathrm{n}_1 \tag{2.15}$$

où $k = \dfrac{2\pi}{\lambda}$ est le module du vecteur d'onde associé au champ considéré dans le vide, $\lambda$ étant la longueur d'onde du rayonnement dans le vide.

Le report des expressions des champs $E_z$ et $H_z$ dans les équations de Maxwell, permet de trouver les composantes transverses. L'écriture des conditions de continuité des composantes tangentielles à l'interface coeur/gaine conduit finalement à une équation de dispersion dont les solutions sont les constantes de propagation possibles. Chacune de ces constantes de propagation est associée à un mode de propagation donné. Chaque mode possède une vitesse de phase et un indice effectif définis par :

$$v_\varphi = \frac{\omega}{\beta} = \frac{kc}{\beta} = kn_e \tag{2.16}$$

Les calculs précédents conduisent à la mise en évidence de modes électromagnétiques nommées $EH$ (pour lesquels $H_z > E_z$), $HE$ ($E_z > H_z$), $TE$ ($E_z = 0$) et $TM$ ($H_z = 0$). Des exemples de distributions de champs électriques transverses de certains de ces modes sont donnés en Figure 2.13.

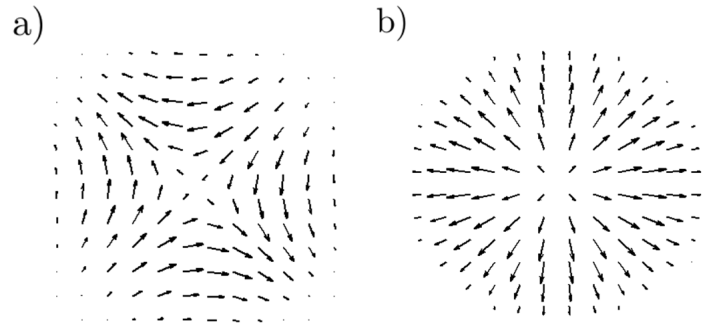



**Figure 2.13** – Exemples de de distributions de champs électriques transverses dans les modes électromagnétiques : (a) mode $HE_{21}$ ; (b) mode $TM_{21}$ [93].

Dans les fibres optiques, la différence d'indice entre le cœur et la gaine $\Delta n = n(r)–n_2$ est souvent inférieure à 1 %, permettant de se placer dans l'approximation du guidage faible. Dans ce cas, les deux composantes $E_z$ et $H_z$ sont quasi-nulles et les modes électromagnétiques sont dégénérés dans des familles de modes linéairement polarisés notés $LP_{mn}$, où $2m$ et $n$ représentent respectivement le nombre d'annulations azimutales du champ dans le mode et le nombre d'annulations radiales du champ le long d'un rayon $r > 0$. Des exemples de profils de champs transverses de modes LP sont donnés en Figure 2.14. Il est à noter que les lobes voisins d'un mode LP sont en opposition de phase (échelle de -1 à 1 sur la Figure 2.14).

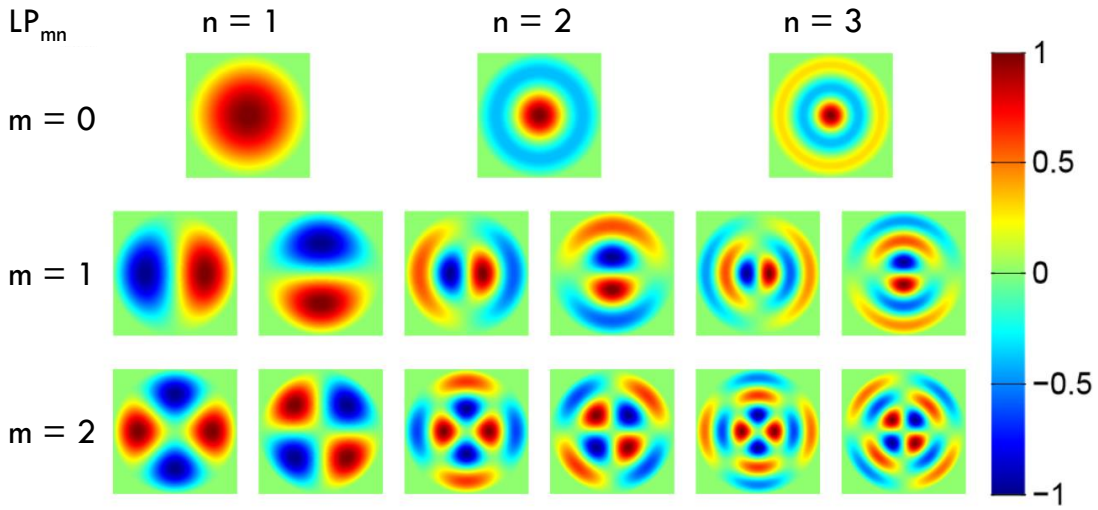



**Figure 2.14** – Exemples de profils de champs transverses de modes LPmn pour m = 0, 1 ou 2 et n compris entre 1 et 3 (d'après [95]).

L'aire effective d'un mode est calculée à partir de la répartition transverse du champ propageant dans la fibre. Par intégration sur toute la section droite de la fibre, l'aire effective $A_{eff}$ est définie par :

$$A_{eff} = \frac{\left[\iint_{-\infty}^{+\infty} |E(x,y)|^2 \, dxdy\right]^2}{\iint_{-\infty}^{+\infty} |E(x,y)|^4 \, dxdy} \tag{2.17}$$

Nous verrons par la suite que ce paramètre est introduit notamment pour évaluer les effets non linéaires, dont l'importance est inversement proportionnelle à l'aire effective.

La constante de propagation $\beta$ d'un mode donné dépend des caractéristiques optogéométriques de la fibre (profils d'indices de réfraction, rayon du cœur) et de la longueur d'onde $\lambda$. Pour chaque mode, cette dépendance est traduite par la courbe de dispersion normalisée montrant la constante de propagation normalisée B en fonction de la fréquence spatiale normalisée de la fibre V. Les grandeurs B et V sont définies par :

$$\mathrm{B} = \frac{\beta^2 - k^2 \mathrm{n}_2^2}{k^2(\mathrm{n}_1^2 - \mathrm{n}_2^2)} \tag{2.18}$$

$$\mathrm{V} = \frac{2\pi}{\lambda_0} a \sqrt{\mathrm{n}_1^2 - \mathrm{n}_2^2} = \frac{2\pi}{\lambda_0} a\mathrm{ON} \tag{2.19}$$

On peut remarquer que V est une grandeur sans dimension intégrant les caractéristiques optogéométriques de la fibre. Elle permet entre autres d'estimer le nombre de modes LP pouvant être guidés dans une fibre. on montre qu'une fibre à saut d'indice peut guider $\mathrm{V}^2/8$ modes LP et qu'une fibre à gradient d'indice parabolique peut guider $\mathrm{V}^2/16$ modes LP. Dans la mesure où une fibre à saut guide deux fois moins de modes LP qu'une fibre à gradient de même diamètre de cœur, pour une fréquence spatiale normalisée donnée (et donc une même ouverture numérique), on comprend donc qu'il est possible d'atteindre un meilleur rendement d'injection avec les fibres à saut d'indice [2].

Les courbes de dispersion normalisées pour les 50 premiers modes $\mathrm{LP}_{\mathrm{mn}}$ d'une fibre à saut d'indice sont représentées sur la Figure 2.15. La fréquence normalisée seuil en-deçà de laquelle un mode donné n'est plus guidé et devient un mode de fuite est la fréquence spatiale normalisée de coupure, notée $\mathrm{V_C}$, pour laquelle $\mathrm{B} = 0$. Dans les fibres à saut d'indice, les valeurs de $\mathrm{V_C}$ associées aux modes LP sont des zéros de fonctions de Bessel de première espèce.

La fréquence de coupure du mode fondamental $\mathrm{LP}_{01}$ est $\mathrm{V_C} = 0$, ce qui signifie qu'en théorie, ce mode est toujours guidé dans la fibre. Celle du deuxième ordre ($\mathrm{LP}_{11}$) vaut $\mathrm{V_C} = 2{,}405$ (premier zéro de la fonction de Bessel $\mathrm{J}_0$). En conséquence, pour $\mathrm{V} < 2{,}405$, la fibre ne guide que le mode fondamental : elle est monomode. La longueur d'onde de coupure au-delà de laquelle la fibre fonctionne en régime monomode est donc $\lambda_\mathrm{C}$, qui vaut :

$$\lambda_c = \frac{2\pi}{2,405} a\mathrm{ON} \tag{2.20}$$

2. Les fibres à saut d'indice présentent également l'avantage d'une meilleure répartition de l'énergie sur toute la section du cœur (quand elle est plus confinée au centre pour les fibres à gradient d'indice). Elles entrainent alors moins de risques d'effets thermiques locaux perturbateurs. Ceci explique que les fibres à saut sont souvent privilégiées pour le transport de puissance.

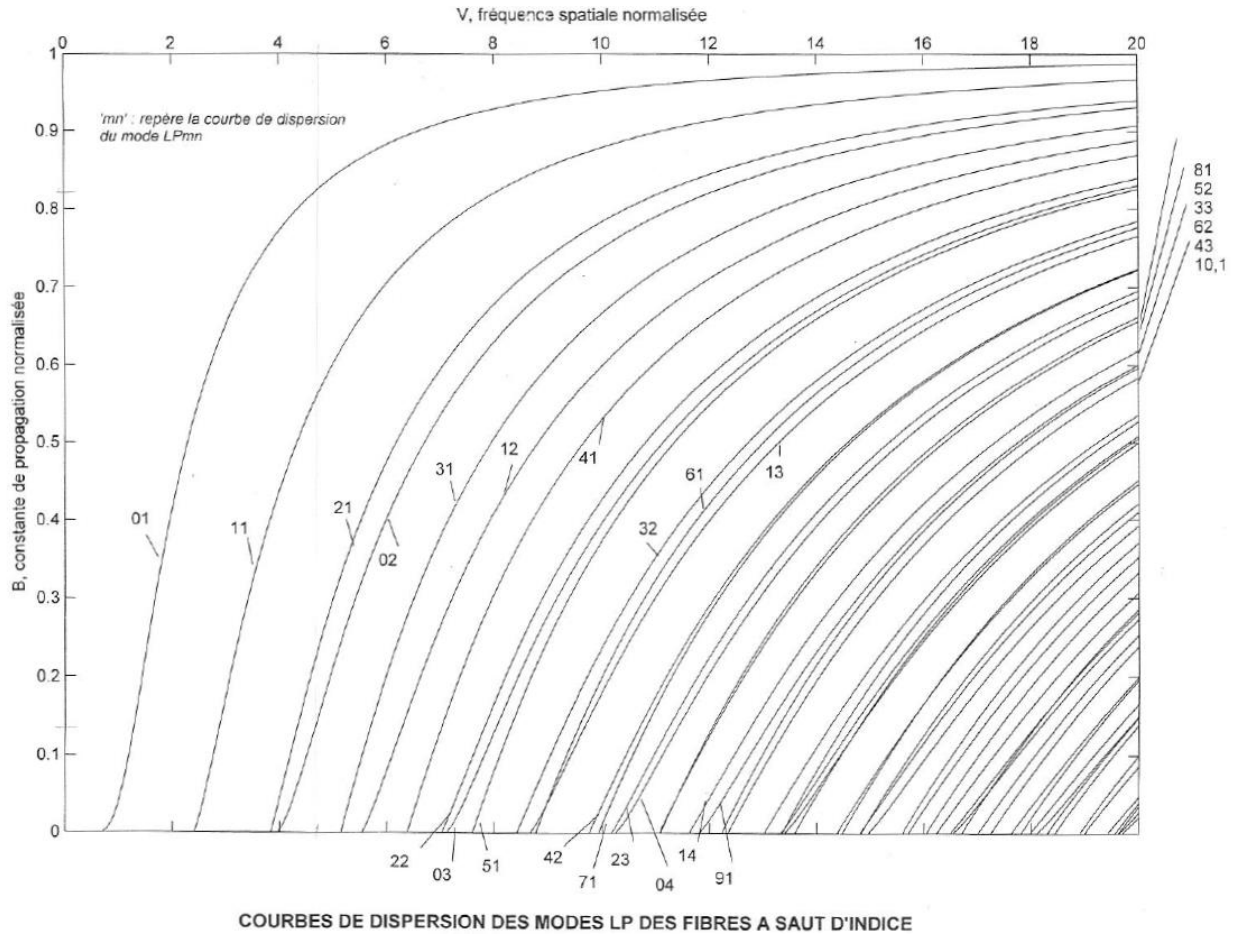



**Figure 2.15** – Courbes de dispersions des 50 premiers modes $LP_{mn}$ d'une fibre multimode à saut d'indice [93].

#### 2.2.1.3 Fibres optiques multimodes

Les fibres multimodes possèdent souvent un cœur très large (plusieurs dizaines de micromètres de rayon), qui leur confère une fréquence spatiale normalisée élevée. Un faisceau injecté dans une telle fibre se décompose sur les différents modes LP guidés, chacun des modes se propageant en se déphasant par rapport aux autres. En sortie de fibre, on observe la figure d'interférence des champs associés aux différents modes LP, appelée « figure de tavelure » mais plus connue sous son nom anglo-saxon de speckle. L'allure du speckle évolue en fonction de l'ampleur des transferts d'énergie d'un mode à l'autre et des déphasages relatifs entre les modes, induits par les contraintes mécaniques ou thermiques appliquées à la fibre optique. Un exemple de speckle en sortie de fibre multimode est présenté en Figure 2.16.

Du fait de la très grande taille de leur cœur, les fibres multimodes permettent de transporter de fortes puissances et peuvent ainsi présenter un fort potentiel pour la réalisation de sources destinées à la spectroscopie M-CARS. Cependant, les speckles générés par la superposition des modes guidés dans la fibre s'avèrent être une limitation dans l'utilisation de ces fibres, dans la mesure où ils ne permettent pas de focaliser le faisceau sur une surface suffisamment petite (limitée à une taille d'environ $\lambda/2$). Il est donc préférable d'exciter un échantillon avec

un mode unique, afin de pouvoir obtenir une focalisation optimale et ainsi de maximiser la résolution spatiale. Pour répondre à cette exigence tout en conservant les capacités de transport de puissance des fibres très multimodes, il faudrait que la lumière émergente soit distribuée dans un mode unique, de préférence le mode fondamental.

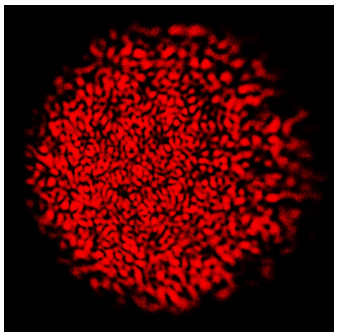


**Figure 2.16** – Exemple de speckle observé en sortie d'une fibre multimode [93].

Or, le coefficient d'excitation d'un mode donné par un faisceau incident est proportionnel à l'intégrale de recouvrement en champ de ce mode avec le faisceau excitateur. Pour favoriser le transport de l'énergie sur un mode donné, une solution est donc de mettre en forme spatialement le faisceau excitateur pour optimiser l'intégrale de recouvrement (excitation sélective du mode) et d'éviter les couplages en cours de propagation [96]. La mise en forme du faisceau excitateur consiste à modeler son profil d'intensité transverse par un filtrage spatial adapté et à gérer les déphasages entre les différentes régions de ce profil. Par exemple, l'injection au centre de la fibre d'un faisceau gaussien de taille adaptée favorisera l'excitation du mode $LP_{01}$, tandis que l'injection d'un faisceau présentant deux lobes latéraux en opposition de phase favorisera le couplage de l'énergie dans le mode $LP_{11}$. Il est important de noter que la mise en forme spatiale d'un faisceau émergent nécessite à la fois la maitrise des conditions de couplage à l'injection et en cours de propagation et la gestion des déphasages entre les modes excités. Or, ces derniers dépendent fortement de toutes les sortes de contraintes thermiques ou mécaniques exercées sur la fibre. Il est donc particulièrement difficile voire impossible d'obtenir une propagation unimodale dans une fibre multimode en gérant uniquement les aspects de propagation linéaire.

Toutefois plusieurs équipes de recherche ont proposé des solutions basées sur la mise en forme du faisceau excitateur par un modulateur spatial de lumière pour anticiper les effets de la propagation dans les fibres multimodes. Ils ont alors démontré qu'il était possible d'obtenir, en sortie de fibre, un faisceau parfaitement focalisé [97] pouvant convenir pour réaliser un système de microscopie [98] et obtenir des images parfaitement résolues [99]. L'imagerie endoscopique par fibre multimodale a ainsi été démontrée [100, 101, 102] en régime de fluorescence mono et multiphotonique. La sélection spatiale par structuration du champ optique en entrée a également été obtenue dans une fibre à gain laser ce qui permet de compenser les pertes introduites par la modulation initiale [103]. Si ces systèmes semblent remarquablement efficaces il faut néanmoins souligner que la manipulation de la fibre modifie les contraintes locales, ce qui influe sur les couplages et les déphasages relatifs entre modes et brouille le profil du faisceau en sortie.

Une autre solution pour favoriser le transport d'énergie sur un mode particulier jusqu'à le retrouver en sortie de fibre est le nettoyage spatial spontané par effet Kerr optique, présenté dans le Chapitre 4. Dans ce cas, l'énergie présente sur les modes d'ordres élevés est transférée de manière irréversible vers le mode fondamental grâce à l'implantation de mélanges à quatre ondes dans le domaine spatial [104]. Le fait d'émettre un faisceau dont le profil d'intensité est proche du mode fondamental en sortie de fibre multimode permet d'atteindre des densités de puissance spectrales bien plus importantes que celles que l'on peut espérer obtenir avec une fibre monomode à la longueur d'onde de travail, du fait d'une taille de cœur beaucoup plus importante. Nous verrons donc dans le Chapitre 4 que cette technique de nettoyage spatial se révèle très intéressante pour répondre à nos besoins en termes de densité de puissance.

### 2.2.2 Phénomènes linéaires de propagation dans les fibres

#### 2.2.2.1 Atténuation

L'atténuation traduit la diminution de l'énergie d'un signal lors de sa propagation dans la fibre. La puissance $P_L$ à la sortie d'une fibre de longueur $L$ est reliée à la puissance en entrée $P_0$ par :

$$P_L = P_0 \exp\left(-\alpha_0 L\right) \tag{2.21}$$

où $\alpha_0$ ($m^{-1}$) est le coefficient d'atténuation linéique.

En échelle logarithmique, le coefficient d'atténuation linéique $\alpha$ exprimé en $dB.km^{-1}$ est donné par :

$$\alpha\ [dB.km^{-1}] = 4,343\alpha_0\ [km^{-1}] \tag{2.22}$$

L'atténuation linéique dans une fibre, qui est essentiellement due à l'absorption du matériau et à la diffusion Rayleigh [105], dépend fortement de la longueur d'onde comme le montre la Figure 2.17 [106].

L'absorption du matériau regroupe les pertes d'absorption intrinsèque correspondant à l'absorption de la silice et les pertes d'absorption extrinsèque causées par des impuretés dans la silice. L'absorption intrinsèque du matériau montrée sur la Figure 2.17 est inférieure à 0,1 $dB.km^{-1}$ sur une plage de longueur d'onde de 0,8 µm à 1,6 µm mais grimpe ensuite très vite pour les longueurs d'onde supérieures à 1,6 µm. Ceci peut ainsi devenir un problème lorsqu'il est nécessaire de générer un supercontinuum au-delà de cette longueur d'onde.

De manière générale pour l'élargissement spectral, l'absorption des ions $OH^-$ est un frein à l'obtention d'un spectre plat puisqu'elle créé des modulations autour de 1,4 µm[3]. Dans notre cas, les bandes principalement utilisées dans des applications tournées vers l'imagerie pour la biologie vont de 700 nm à 1000 nm et de 1100 nm à 1600 nm (excitation multiphotonique

3. Les ions $OH^-$ constituent la source d'absorption extrinsèque principale de la silice pure. Une concentration aussi faible qu'une partie par million peut entraîner une perte d'environ 50 $dB.km^{-1}$.

de fluorochromes) [107]. De manière plus spécifique l'application M-CARS infrarouge requière l'utilisation d'un spectre homogène entre 1160 nm et 1600 nm [58]. Il est néanmoins également possible d'utiliser des bandes plus basses en se servant de l'harmonique deux de l'onde à 1064 nm. Dans ces conditions la bande spectrale utile pour un système M-CARS dans le domaine visible s'étant de 532 nm à 700 nm [58]. Enfin l'utilisation de sources lasers femtosecondes, et notamment celles utilisant des cristaux en saphir dopé aux ions titane impose l'utilisation de longueurs d'onde allant de 800 nm à 1200 nm.

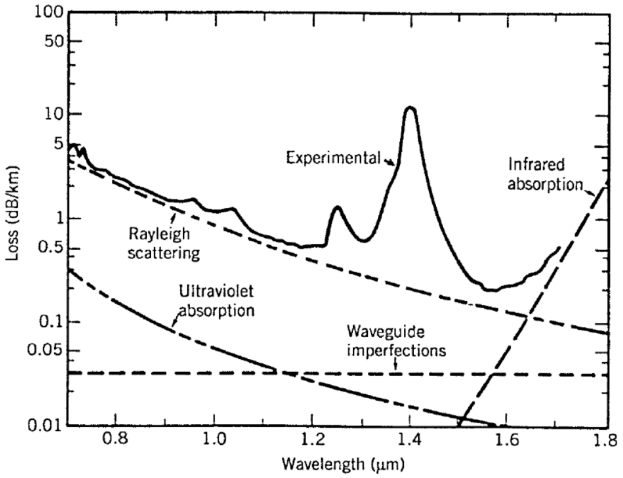



**Figure 2.17** – Courbe d'absorption d'une fibre optique en silice [106].

#### 2.2.2.2 Biréfringence et polarisation de la lumière dans les fibres en régime monomode

Nous avons vu dans l'état de l'art sur la spectroscopie M-CARS subnanoseconde (section 1.4.1 du Chapitre 1) que certaines sources à supercontinuum utilisées pour la spectroscopie M-CARS utilisaient des fibres à maintien de polarisation [60]. De telles fibres permettent de fixer un état de polarisation linéaire pour les ondes pompe et Stokes en sortie de fibre optique, sans avoir à utiliser de polariseur en sortie. Pour comprendre le fonctionnement de ces fibres à maintien de polarisation, il est nécessaire de s'intéresser brièvement à l'état de polarisation d'un faisceau guidé dans une fibre classique en régime monomode. Le mode $LP_{01}$ guidé regroupe deux modes orthogonaux quasi-dégénérés : le mode $HE_{11_x}$ polarisé rectilignement dans la direction $x$ (de constante de propagation $\beta_x$) et le mode $HE_{11_y}$ linéairement polarisé dans la direction $y$ (de constante de propagation $\beta_y$).

Dans une fibre optique idéale (cœur parfaitement circulaire, sans contrainte externe et sans perturbation extérieure), il n'existe aucune biréfringence. Les constantes de propagation $\beta_x$ et $\beta_y$ sont les mêmes. Dans ce cas, l'état de polarisation en entrée est conservé tout au long de la propagation dans la fibre. En réalité, on observe une biréfringence que l'on peut définir en fonction des indices effectifs $n_{e_x}$ et $n_{e_y}$ vus par chacun des modes :

$$\Delta n_e = |n_{e_y} - n_{e_x}| \tag{2.23}$$

Cette biréfringence est causée à la fois par des imperfections géométriques (cœur légèrement ovalisé) ou des contraintes emprisonnées lors de la fabrication. On parle alors de biréfringence intrinsèque, puisqu'elle est liée à toute forme de brisure de la symétrie de la fibre lors de la fabrication. Des contraintes extérieures peuvent également apporter de la biréfringence, qui sera alors dite extrinsèque. C'est le cas des courbures ou des torsions appliquées à la fibre.

A cause de la biréfringence, les fibres optiques classiques ne conservent pas l'état de polarisation (rectiligne, circulaire, elliptique) du faisceau incident et modifient cet état tout au long de la propagation, si bien qu'on ne peut récupérer qu'une polarisation non maîtrisée en sortie. Un moyen de tout de même conserver en sortie de fibre un état de polarisation rectiligne qui aurait été injecté à l'entrée est d'ajouter des contraintes anisotropes dans la fibre, de manière à créer deux axes neutres orthogonaux dans les directions $x$ et $y$ qui empêcheront les couplages entre les modes $\mathrm{HE}_{11_x}$ et $\mathrm{HE}_{11_y}$. Avec l'existence de ces deux axes neutres (appelés aussi axe lent et axe rapide),on conserve l'état de polarisation du faisceau incident si celui-ci est injecté avec une polarisation parallèle à l'un de ces deux axes. On parle alors de fibres à maintien de polarisation.

Ces contraintes sont par exemple obtenues grâce à des barreaux possédant un coefficient de dilatation très différent de celui de la silice, disposés de part et d'autre du cœur avant l'étirement de la fibre. Ils peuvent avoir différentes formes et celles-ci définissent le nom donné à la fibre [108]. On peut ainsi citer les deux modèles les plus couramment utilisés : la fibre panda (Figure 2.18a) ou la fibre *bow-tie* (Figure 2.18b).

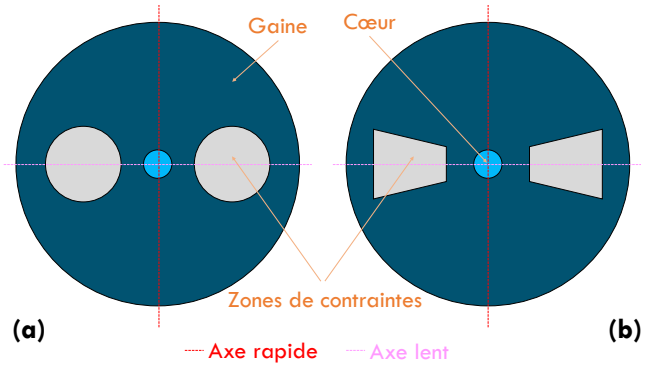



**Figure 2.18** – Représentation schématique de deux modèles de fibres optiques à maintien de polarisation : (a) fibre optique panda ; (b) fibre optique *bow-tie*.

Pour l'imagerie CARS large-bande, l'onde Stokes constituée par le supercontinuum entre 1160 nm et 1600 nm doit avoir une polarisation linéaire orientée parallèlement à celle de l'onde pompe à 1064 nm. Dans ces conditions, la conversion par effet CARS est maximale. Il est donc pertinent d'utiliser une fibre non linéaire qui maintienne la polarisation rectiligne de l'onde pompe tout en engendrant des conversions non linéaires sur le même état de polarisation. Ce genre de fibre existe et a notamment été utilisé par Xiong et Wadsworth en 2008 pour générer un spectre large entre 450 nm et 1800 nm [109].

#### 2.2.2.3 Dispersion des impulsions dans les fibres optiques

La dispersion est un phénomène linéaire qui se traduit par l'allongement temporel d'une impulsion au cours de sa propagation dans un guide optique. On peut rencontrer trois types de dispersion dans les fibres optiques :

- la **dispersion intermodale**, qui n'existe que dans les fibres multimodes et qui traduit le fait que les différents modes LP guidés se propagent à des vitesses différentes ;
- la **dispersion chromatique** et la **dispersion modale de polarisation**, qui affectent chaque mode LP.

Nous présentons ici succinctement ces trois types de dispersion.

##### 2.2.2.3.1 Dispersion intermodale

Dans une fibre multimode, l'énergie d'une impulsion injectée peut se répartir sur l'ensemble des modes permis. Chacun de ces modes a sa propre vitesse de groupe $v_{g_i}$, ce qui fait que l'énergie émerge en fin de fibre à des temps différents, provoquant un étalement temporel de l'impulsion initiale.

Dans la théorie des rayons appliquée aux fibres à saut d'indice, la vitesse de groupe $v_{g_i}$ est approximativement définie par :

$$v_{g_i} = \frac{c}{\mathrm{n}_1} \sin \alpha_i = \frac{L}{t_{g_i}} \tag{2.24}$$

où $c = 299\ 792\ 458$ m.s$^{-1}$ est la célérité de la lumière, $\mathrm{n}_1$ l'indice du cœur de la fibre, $L$ la longueur de la fibre, $t_{g_i}$ le temps de groupe du mode considéré et $\alpha$ l'angle entre le rayon réfléchi à l'interface cœur/gaine et la normale à cette interface.

En considérant les deux angles $\alpha$ limites $\alpha_1 = 0$ et $\alpha_2 = \alpha_{max}$ pour lequel $\sin \alpha_{max} = \mathrm{n}_2/\mathrm{n}_1$, on définit le retard temporel :

$$\Delta t = t_2 - t_1 = \frac{L}{c} \mathrm{n}_1 \left( \frac{\mathrm{n}_1}{\mathrm{n}_2} - 1 \right) = \frac{L}{c} n_1 \Delta \quad \text{avec} \quad \Delta = \frac{\mathrm{n}_1 - \mathrm{n}_2}{\mathrm{n}_2} \tag{2.25}$$

Il vient alors l'expression de la dispersion intermodale :

$$\mathrm{D_i} = \frac{\Delta t}{L} = \frac{\mathrm{n}_1 \Delta}{c} \tag{2.26}$$

Cette dispersion modale n'apparaissant que dans le cas d'une propagation de plusieurs modes, elle est bien entendu nulle dans les fibres monomodes.

##### 2.2.2.3.2 Dispersion chromatique

La dispersion chromatique est due au fait que chaque bande spectrale d'une impulsion (de durée $\Delta t$ et de largeur spectrale $\Delta\lambda$) a sa propre vitesse de groupe, et ce pour chaque mode.

L'allongement temporel subi par l'impulsion couplée sur un mode donné est :

$$\tau = \frac{\mathrm{d}t_g}{\mathrm{d}\lambda}\Delta\lambda \tag{2.27}$$

où $t_g = L/v_g(\lambda)$ est le temps de groupe d'un paquet d'onde porté par le mode considéré, centré autour de $\lambda$ et se propageant dans une fibre de longueur $L$. La vitesse de groupe $v_g(\lambda)$ est définie par :

$$v_g(\lambda) = \frac{c}{\mathrm{N_g}} \tag{2.28}$$

où l'indice de groupe $\mathrm{N_g}$ dépend de la longueur d'onde et de l'indice effectif du mode $\mathrm{n_e}$ selon la relation :

$$\mathrm{N_g} = (\mathrm{n_e} - \lambda)\frac{\mathrm{dN_g}}{\mathrm{d}\lambda} \tag{2.29}$$

On définit la dispersion chromatique du mode par l'expression :

$$\mathrm{D_c} = \frac{\tau}{L\Delta\lambda} \tag{2.30}$$

Il vient alors pour la dispersion chromatique :

$$\mathrm{D_c} = \frac{1}{L}\frac{\mathrm{d}t_g}{\mathrm{d}\lambda} \tag{2.31}$$

La dispersion chromatique est habituellement exprimée en $\mathrm{ps.nm^{-1}.km^{-1}}$.

Il faut noter que, en régime multimode, la dispersion chromatique d'un mode est toujours beaucoup plus faible que la dispersion intermodale. C'est pourquoi elle n'est prise en considération qu'en régime monomode où seul le mode fondamental $\mathrm{LP_{01}}$ se propage. Dans ces conditions, par abus de langage, la dispersion chromatique du mode fondamental est appelée « dispersion chromatique de la fibre ».

La dispersion chromatique définie par la relation 2.31 est reliée à la dispersion de vitesse de groupe $\beta_2 = \dfrac{d^2\beta}{d\omega^2}$ mise en évidence dans le développement en série de Taylor de la constante de propagation, par :

$$\beta_2 = \frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}\omega}\left(\frac{1}{v_g}\right) = -\frac{\lambda^2}{2\pi c}\mathrm{D_c} \tag{2.32}$$

Au premier ordre, la dispersion chromatique dans une fibre monomode est la somme de deux contributions (Figure 2.19) :

- la **dispersion du matériau** $\mathrm{D_m}$, due au fait que l'indice du matériau dépend de $\lambda$ (matériau dispersif) ;
- et la la **dispersion du guide** $\mathrm{D_g}$, due au fait que la constante de propagation varie avec $\lambda$, même dans un milieu non dispersif.

Les calculs littéraux développés en **Annexe A** montrent que :

$$D_m = -\frac{\lambda}{c}\frac{d^2 n_1}{d\lambda^2} \tag{2.33}$$

$$D_g = -\frac{n_1 \Delta}{c\lambda} V \frac{d^2 VB}{dV^2} \tag{2.34}$$

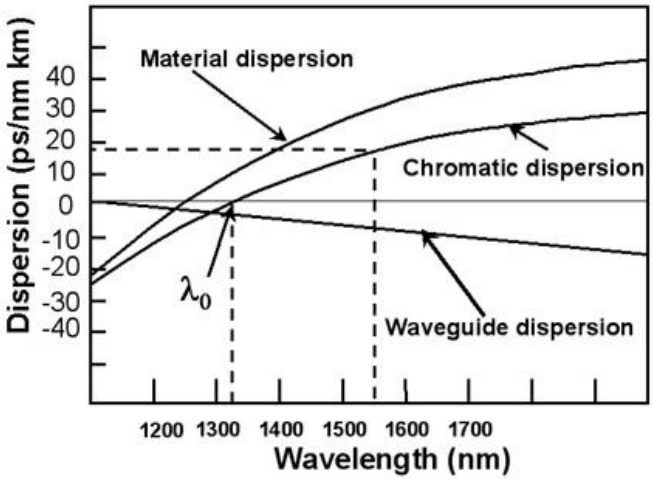



**Figure 2.19** – Courbe de dispersion chromatique d'une fibre optique conventionnelle en silice, comme étant la somme de la dispersion du matériau et de la dispersion du guide [110].

### Dispersion du matériau

Concernant le matériau, il est possible d'en approximer l'indice en fonction de son dopage (germanium, phosphore,...) et de la longueur d'onde de la lumière qui le traverse grâce à la relation de Sellmeier :

$$n(\lambda) = \sqrt{1 + \frac{a_1\lambda^2}{\lambda^2 - b_1^2} + \frac{a_2\lambda^2}{\lambda^2 - b_2^2} + \frac{a_3\lambda^2}{\lambda^2 - b_3^2}} \tag{2.35}$$

où $a_1$, $a_2$ et $a_3$ sont des coefficients sans dimension, $b_1$, $b_2$ et $b_3$ sont des coefficients exprimés en unité de longueur. Ces coefficients dépendent à la fois de la nature de la matrice hôte et de son taux de dopage. Le Tableau 2.2 donne des exemples de valeurs de ces coefficients pour différents taux de dopage en germanium de la silice [111] à partir desquels sont tracés les indices de la Figure 2.20a et les dispersions du matériau correspondantes sur la Figure 2.20b.

L'ajout de dopants indiciels comme le germanium se traduit, pour une longueur d'onde donné, par une diminution (faiblement dépendante de la longueur d'onde entre 0,8 µm et 1,6 µm) de la dispersion du matériau (Figure 2.20b). Il en résulte un décalage de la longueur d'onde de dispersion de matériau nulle vers les plus hautes longueurs d'onde. Ainsi, l'ajout de germanium à hauteur de 19,3 mol.% dans la matrice de silice permet de décaler la longueur d'onde de dispersion de matériau nulle de plus de 100 nm (Figure 2.20c) : la dispersion du matériau est nulle à 1,28 µm lorsque la silice est pure et elle est nulle à 1,39 µm lorsque la silice est dopée au germanium à hauteur de 19,3 mol.%.

**Tableau 2.2** – Coefficients de Sellmeier de la silice pour différentes concentrations de germanium [111].

| $GeO_2$ | Constantes de la relation de Sellmeier | | | | | |
|---|---|---|---|---|---|---|
| [Ge] | $a_1$ | $a_2$ | $a_3$ | $b_1$ | $b_2$ | $b_3$ |
| 0,0 mol.% | 0,6965325 | 0,4083099 | 0,8968766 | 0,0660932 | 0,1181101 | 9,89616 |
| 6,3 mol.% | 0,7083925 | 0,4203993 | 0,8663412 | 0,0853842 | 0,1024839 | 9,896175 |
| 15,0 mol.% | 0,724918 | 0,438122 | 0,8221368 | 0,0871572 | 0,1078145 | 9,896197 |
| 19,3 mol.% | 0,7347008 | 0,4461191 | 0,8081698 | 0,0764679 | 0,1246081 | 9,896203 |

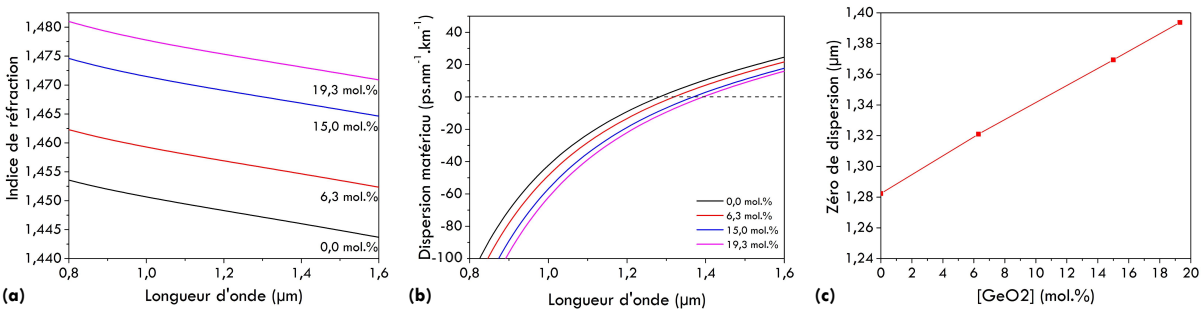



**Figure 2.20** – (a) indices de la silice pour différentes concentrations de dopant $GeO_2$ calculés à partir des coefficients de Sellmeier donnés dans le Tableau 2.2 ; (b) Dispersions de matériau calculées à partir des mêmes coefficients ; (c) Décalage de la longueur d'onde de dispersion de matériau nulle en fonction de la concentration de dopant Germanium. La dispersion du guide n'est pas prise en compte ici.

### Dispersion du guide

Les propriétés du guide (profil d'indice, dimensions du cœur, etc.) ont un impact direct sur la dispersion du guide. En particulier, Sansonetti a montré en 1982 [112] que la relation 2.33 définissant la dispersion du guide pouvait également s'écrire :

$$\mathrm{D_g} = 2\frac{\mathrm{n_1}-\mathrm{n_2}}{\mathrm{V}c\lambda}a^2\left[\frac{1}{\mathrm{V}}\iint\left(\frac{\mathrm{d}E}{\mathrm{d}r}\right)^2\mathrm{d}S - \frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}\mathrm{V}}\left(\iint\left(\frac{\mathrm{d}E}{\mathrm{d}r}\right)^2\mathrm{d}S\right)\right] \tag{2.36}$$

Le terme en rouge de cette relation traduit l'évolution spectrale de la distribution du champ. Lorsque ce terme est nul, c'est-à-dire lorsque l'extension du champ ne dépend pas de la longueur d'onde, la dispersion du guide est assurément positive. A l'inverse, lorsque l'évolution spectrale de la distribution du champ est très forte (le champ s'étale quand la longueur d'onde augmente), alors le terme en rouge devient très grand devant le terme en bleu et la dispersion du guide est négative. Par ailleurs, la dispersion du guide est également affectée par le dopage du matériau qui modifie le profil d'indice du guide (à travers le $\Delta$n).

### Zéro de dispersion

La longueur d'onde de dispersion chromatique nulle, également appelé « zéro de dispersion » (ZDW) est la longueur d'onde pour laquelle la dispersion du matériau et la dispersion du guide se compensent parfaitement. Il s'agit donc de la longueur d'onde à laquelle

intervient un changement de signe de la dispersion chromatique. A cette longueur d'onde, la vitesse de groupe est d'ailleurs maximale. Comme le ZDW sépare deux régions spectrales à régimes de dispersion différents (dispersion « normale » lorsque Dc $<$ 0 et dispersion « anormale » lorsque Dc $>$ 0), il joue un rôle important dans le développement des effets non linéaires dans la fibre (Figure 2.21).

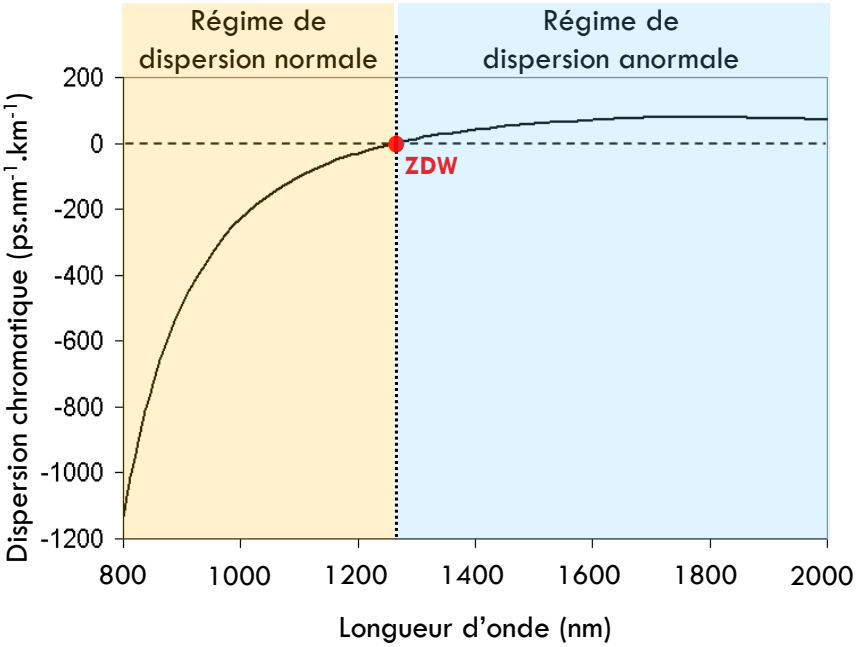



**Figure 2.21** – Définition des régimes de dispersion normale et anormale et de la longueur d'onde de dispersion nulle.

En particulier, pour la génération du supercontinuum à travers une fibre, le régime de dispersion dans lequel se propage l'onde de pompe a une influence capitale sur la forme finale du spectre engendré, comme nous le verrons dans la section 2.3.5.

Lorsque l'on désire travailler à une longueur d'onde donnée et dans un régime de dispersion spécifique, il est parfois nécessaire d'adapter la dispersion chromatique de la fibre lors de sa conception. Cet ajustement de la dispersion chromatique passe alors, soit par une modification du matériau, soit par un ajustement de la géométrie du guide. Or, dans les fibres à saut d'indice, la dispersion du guide pour le mode fondamental est toujours négative (Figure 2.19). Les profils d'indice complexes permettent d'agir sur la dispersion du guide, mais toujours dans le sens d'une dispersion de guide négative, plus ou moins forte en valeur absolue. Cela signifie que, combinée à la dispersion du matériau, elle aboutit à décaler le zéro de dispersion toujours vers les plus grandes longueurs d'onde, au-delà de 1,28 µm. Nous verrons dans la section 2.2.3.2 qu'il a fallu attendre la fabrication de fibres optiques microstructurées air/silice (FMAS) pour pouvoir décaler le ZDW d'une fibre vers les plus courtes longueurs d'onde, par l'intermédiaire de la dispersion de guide [38, 113, 114].

#### 2.2.2.3.3 Dispersion modale de polarisation

Comme nous l'avons vu en définissant la biréfringence, chacun des modes de polarisation selon lesquels se divise un mode se propageant dans une fibre optique (naturellement biréfringente) possède sa propre constante de propagation ($\beta_x$ et $\beta_y$). Les deux modes voyagent donc à deux vitesses de groupe différentes, tout en s'échangeant de l'énergie au grès des couplages créés par les perturbations (linéaires et non linéaires) en cours de propagation. Ces phénomènes entrainent une dispersion de l'énergie dans le mode qu'on appelle dispersion modale de polarisation (PMD). Elle est quasi-systématiquement négligée, que ce soit en régime multimode (dans lequel la PMD est de plusieurs ordres de grandeur inférieure à la dispersion intermodale) ou en régime monomode (dans lequel la PMD est petite devant la dispersion chromatique).

### 2.2.3 Fibres optiques microstructurées

#### 2.2.3.1 Description et nature du guidage dans les fibres microstructurées air/silice

Les fibres microstructurées air/silice sont constituées d'un cœur en silice entouré d'une gaine optique en silice percée de trous d'air parallèles à l'axe. L'arrangement des trous sur une section droite est généralement régulier et constitue un réseau caractérisé par deux paramètres : le pas du réseau $\Lambda$ (distance entre deux trous adjacents) et le diamètre des trous d (Figure 2.22). Le rapport $\frac{d}{\Lambda}$ est une grandeur souvent utilisée pour caractériser la fibre. Il intervient notamment dans le calcul du facteur de remplissage $f$, c'est-à-dire de la fraction d'air présente dans la gaine :

$$f \approx 0,91 \left(\frac{d}{\Lambda}\right)^2 \tag{2.37}$$

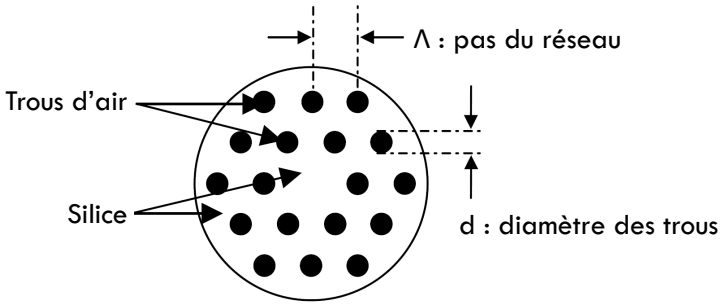



**Figure 2.22** – Schéma descriptif d'une fibre microstructurée air/silice [115].

**Guidage par réflexion interne modifiée**

On définit l'indice équivalent de cette gaine comme étant l'indice effectif du mode d'ordre le plus bas pouvant s'installer dans ce milieu hétérogène supposé d'extension infinie (*space-filling mode*). Cela correspond approximativement à l'indice moyen de la silice et de l'air, pondéré par le poids relatif du champ dans chacun des deux milieux. Du fait de la contribution de

l'air de bas indice, l'indice équivalent de gaine $n_{g_e}$ est toujours inférieur à celui du cœur constitué de silice pure. La lumière peut donc être guidée dans le cœur, comme dans les fibres conventionnelles à saut d'indice, grâce au principe de réflexion totale interne entre le cœur et la gaine optique (Figure 2.23a). Plus précisément, pour tenir compte du fait que l'aspect hétérogène de la gaine optique a une influence sur la propagation, on emploiera le terme de « réflexion totale interne modifiée ».

On peut calculer $n_{g_e}$ en considérant la gaine comme la concaténation de petites zones élémentaires hexagonales de diamètre $\Lambda$, assimilables par approximation à des zones circulaires de diamètre $\Lambda' = 0,98\Lambda$ (Figure 2.23b). Le champ du space-filling mode est celui qui remplit au mieux les zones de silice. Son indice effectif $n_{g_e}$ se calcule à l'aide de la formule générale suivante :

$$n_{g_e} = \frac{\int_0^{\Lambda'} n^2 E^2 r \, dr}{\int_0^{\Lambda'} E^2 r \, dr} - \frac{1}{k^2} \frac{\int_0^{\Lambda'} \left(\frac{dE}{dr}\right)^2 r \, dr}{\int_0^{\Lambda'} E^2 r \, dr} \tag{2.38}$$

L'indice équivalent de la gaine nge dépend fortement de l'extension du champ dans les trous et donc de la longueur d'onde de travail (Figure 2.23c) [116]. Aux plus courtes longueurs d'onde, le champ est fortement confiné dans le cœur et l'indice équivalent de gaine tend vers la valeur de l'indice de la silice (Figure 2.23d). Aux plus grandes longueurs d'onde, le champ électromagnétique s'étend de plus en plus loin dans la gaine et pénètre de plus en plus profondément dans les canaux d'air [117] (Figure 2.23c). La valeur de l'indice équivalent de gaine tend alors vers une valeur limite :

$$(n_{g_e})_{lim} = \sqrt{{n_{silice}}^2 (1 - f) + {n_{air}}^2 f} \tag{2.39}$$

où $n_{air} = 1$, $n_{silice}$ est l'indice de la silice et $f$ est le facteur de remplissage.

La première propriété remarquable des FMAS concerne la différence d'indice entre le cœur et la gaine qui varie fortement avec la longueur d'onde. Elle diminue à mesure que la longueur d'onde diminue : aux très courtes longueurs d'onde $n_{g_e}$ tend vers $n_1$. Les FMAS sont donc des fibres à ouverture numérique variant avec la longueur d'onde, alors que celle des fibres classiques peut être considérée comme constante sur toute la gamme spectrale utilisable.

**Propagation en régime monomode dans les FMAS**

De la même façon que pour les fibres conventionnelles (relation 2.18), on peut définir la fréquence spatiale normalisée d'une FMAS par :

$$V_{eff} = \frac{2\pi}{\lambda_0} a \sqrt{n_1^2 - n_{g_e}^2} \tag{2.40}$$

Dans une fibre classique, la fréquence spatiale normalisée est inversement proportionnelle à la longueur d'onde. Ce n'est plus le cas dans les FMAS, à cause de la dépendance spectrale de l'ouverture numérique soulignée précédemment. Dans les FMAS, comme la limite cœur/gaine

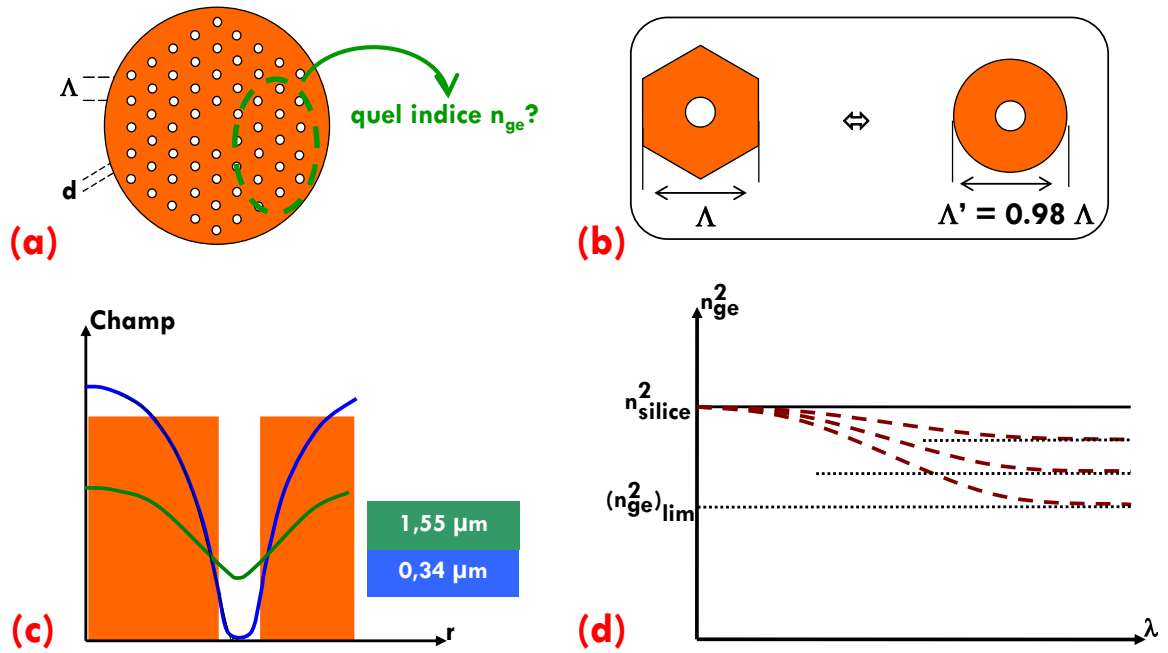



**Figure 2.23** – (a) Représentation schématique de la problématique du calcul de l'indice effectif de gaine ; (b) Exemples de formes élémentaires pour le calcul du champ dans la fibre par la méthode des éléments finis décrite dans [117] ; (c) Extension du champ dans la cœur et dans la gaine à deux longueurs d'ondes (d'après [117]) ; (d) Evolution de l'indice équivalent de gaine au carré en fonction de la longueur d'onde.

n'est pas clairement déterminée, la taille du cœur reste relativement délicate à estimer. Dans les faits, si l'on choisit comme taille de cœur le pas du réseau $\Lambda$, les FMAS sont monomodes pour une fréquence spatiale normalisée inférieure à $\pi$ [118]. Pour garder l'analogie avec les fibres conventionnelles, il a été prouvé que l'on pouvait obtenir la même fréquence de coupure du deuxième mode ($V_c = 2{,}405$) en estimant la taille du cœur par la relation suivante [117] :

$$a_{\text{eq}} = 0,64\Lambda \tag{2.41}$$

L'influence des paramètres géométriques sur le domaine spectral de propagation monomode est illustrée en Figure 2.24 sur laquelle les courbes de fréquence spatiale normalisée de fibres microstructurées de rapport $\frac{d}{\Lambda}$ différents et de pas de réseau égal à 2,5 µm ou 5 µm sont représentées [119]. On voit que les courbes sont identiques pour les deux pas de réseau proposés. Pour des valeurs du rapport $\frac{d}{\Lambda}$ suffisamment petites, il est possible d'obtenir une fréquence spatiale normalisée inférieure à 2,405, et donc une propagation monomode, sur une très grande plage spectrale (jusqu'à couvrir entièrement le domaine de transparence de la silice 300 nm – 2000 nm) [120]. On considère alors qu'une fibre microstructurée est monomode quelle que soit la longueur d'onde de travail dès que son rapport $\frac{d}{\Lambda}$ est inférieur à 0,4.

Pour régler le compromis entre cette contrainte pour travailler en régime monomode et le besoin, souligné précédemment, d'une fraction d'air importante pour éviter les pertes dans la fibre, la plupart des FMAS est fabriquée de manière à avoir un rapport très proche de 0,4.

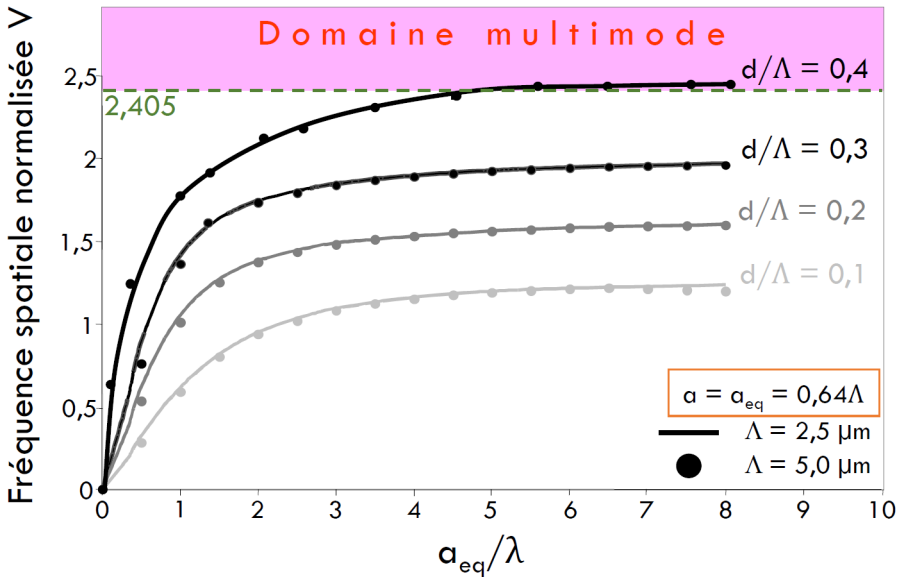



**Figure 2.24** – Evolution de la fréquence normalisée V en fonction de $aeq/\lambda$, pour différentes valeurs de $d/\Lambda$ et pour $\Lambda = 2{,}5$ µm et 5 µm (d'après [115]).

Notons par ailleurs que, sur le même principe, les fibres à large aire modale (LMA) ont vu le jour [121]. Il s'agit de fibres optiques avec une très grande zone de cœur (plusieurs dizaines de micromètres), qui restent cependant monomodes. Ces fibres se caractérisent par une aire effective du mode fondamental très étendue. A puissance constante, la densité spatiale de puissance est donc réduite, ce qui élève le seuil de puissance au-delà duquel apparaissent les effets non linéaires.

La très grande largeur de cœur augmente par définition l'aire effective et de fait, la fibre est moins propice à l'apparition d'effets non linéaires. Elle permet par ailleurs d'atteindre des puissances beaucoup plus élevées (seuil de dommage plus grand), ce qui rend ces fibres particulièrement adaptées pour le transport d'impulsions intenses et l'amplification.

**Pertes dans les FMAS**

Lorsque la fraction d'air diminue, l'indice moyen de la gaine augmente et le guidage perd en efficacité, ce qui se traduit par une augmentation des pertes par courbure [122]. En plus de ces pertes par courbure, il existe des pertes liées au confinement. Celles-ci sont d'autant plus élevées que le champ s'étale plus loin dans la structure de gaine. La meilleure façon de limiter l'extension de ce champ est de garder une proportion d'air importante [123].

**Fabrication des FMAS**

La première réalisation d'une FMAS a été faite en 1996 par l'équipe de P. St. Russel [124]. Cette fibre était constituée de 217 capillaires de silice en arrangement hexagonal. La fabrication de ce type de fibre obtenue par empilement et étirage (*stack and draw*) de capillaires et de barreaux de silice (Figure 2.25) est depuis devenue courante.

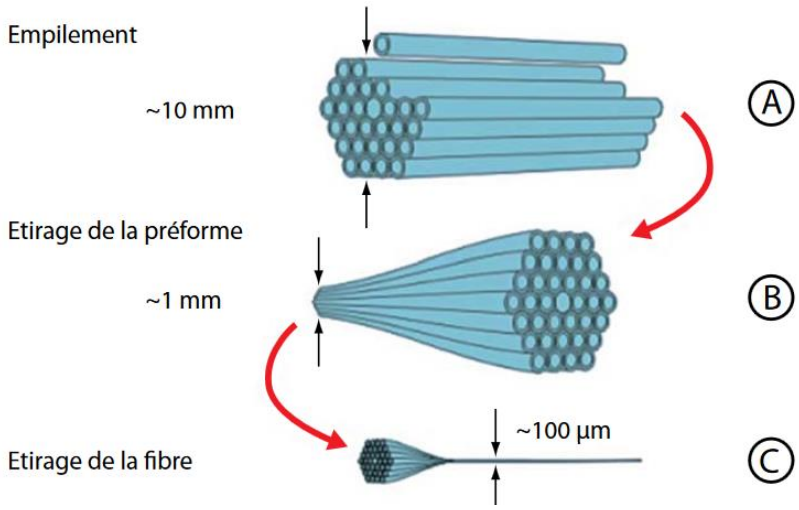



**Figure 2.25** – Présentation schématique des différentes étapes de fabrication des fibres microstructurées : (a) Assemblage autour d'une baguette centrale de capillaires de section millimétrique (création de la préforme) ; (b) Étirage de la préforme (création de la canne). La figure ne fait pas apparaitre l'étape préalable de manchonnage, durant laquelle une couche de silice est ajoutée autour de la préforme ; (c) Fibrage de la canne pour donner une fibre de dimensions transversales micrométriques [125].

Nous avons traité ici uniquement des fibres microstructurées à cœurs pleins, dans lesquelles le guidage de la lumière est effectué par réflexion totale interne. Il existe également des structures (à cœur creux essentiellement), dans lesquelles la lumière se propage par guidage à bande interdite photonique. Le principe d'un tel guidage, que nous ne développerons pas ici, est expliqué dans la Réf. [126].

#### 2.2.3.2 Contrôle du zéro de dispersion dans les fibres microstructurées

Les fibres microstructurées ont ouvert la voie à des modifications des courbes de dispersion chromatique qu'il était impossible d'envisager avec les fibres conventionnelles. La Figure 2.26 présente la dispersion chromatique mesurée pour quatre FMAS ayant le même diamètre de cœur (4,6 µm) et le même pas de réseau (2,3 µm) mais avec des tailles de trous d'air différentes (respectivement 0,5 µm, 0,621 µm, 0,75 µm et 1 µm) et dans lesquelles la propagation est monomode entre 700 nm et 1600 nm. Les quatre courbes montrent que le ZDW se décale en direction des courtes longueurs d'onde lorsque la proportion d'air dans la gaine augmente, c'est-à-dire lorsque le guidage devaient plus fort. Au-delà d'une certaine proportion d'air, ce confinement strict du champ produit même une dispersion de guide positive, que l'on ne sait pas obtenir dans les fibres conventionnelles. Dans ce cas, il devient possible de compenser une dispersion de matériau négative, c'est-à-dire en dessous de la longueur d'onde d'annulation de cette dispersion (1280 nm). En d'autres termes, on peut concevoir des fibres microstructurées dont le ZDW est décalé en-deçà de 1280 nm, performance inaccessible avec les fibres conventionnelles. C'est ce que l'on observe sur la courbe de la Figure 2.26 correspondant à d = 1 µm, pour laquelle ZDW = 1000 nm. La conception de FMAS à très petits cœurs et/ou à très fortes proportions d'air a même permis de décaler le ZDW jusqu'à des longueurs d'onde visibles [38].

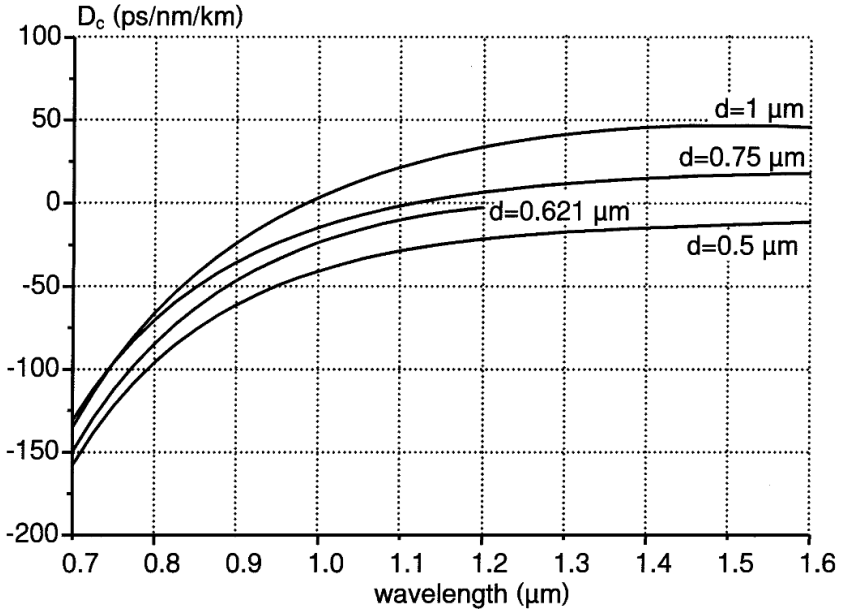



**Figure 2.26** – Dispersion chromatique simulée par la méthode des éléments finis de quatre FMAS de diamètre de cœur 4,6 µm, de pas de réseau 2,3 µm et de diamètre de trous d'air variant entre 0,5 µm et 1 µm [117].

Dans notre cas, et pour obtenir un spectre large dans le domaine infrarouge entre 1160 nm et 1600 nm grâce à une source laser de type Nd:YAG émettant à 1064 nm, il sera indispensable de modifier la position de la longueur d'onde de dispersion nulle pour la ramener en-deçà de la longueur d'onde de pompe. L'excitation de la fibre sera alors réalisée en régime de dispersion anormale ce qui permettra à l'onde pompe de modifier sa réparation énergétique initiale dans le domaine du temps pour dériver progressivement vers une propagation solitonique [127, 128]. Ce changement de forme permettra alors d'atteindre le régime d'autodécalage soliton grâce à l'implication du gain Raman. Dans ces conditions, il sera possible d'obtenir des conversions de fréquences importantes dans le domaine infrarouge. Il faut également souligner qu'un pompage trop près du ZDW peut induire un transfert d'énergie vers les bases longueurs d'onde sous l'effet de mélanges paramétriques [129, 130]. On cherchera donc à avoir une excitation de la fibre dans la zone de dispersion fortement anormale (pompage à une longueur d'onde supérieure au ZDW d'au moins 50 nm). De nombreuses publications montrent clairement que de telles conditions conduisent au développement unilatéral du spectre vers les hautes longueurs d'onde [57, 131].

Comme je l'ai dit précédemment, le dopage de la fibre peut également jouer un rôle important dans la modification de la dispersion vue par la lumière lors de sa propagation dans le cœur de la fibre. Nous prendrons donc soin de ne pas trop doper nos guides (par exemple avec du germanium) pour ne pas favoriser le rapprochement du ZDW vers la longueur d'onde de pompe, ce qui accentuerait l'apparition de mélanges paramétriques et la création de fréquences vers le spectre visible [132].

Enfin, à cause de la dispersion accumulée par la lumière lors de la traversé du guide, nous prendrons également soin d'utiliser des longueurs de fibres limitées ainsi que des impulsions lasers longues (¿ 100 ps) pour garder une synchronisation de toutes les longueurs d'onde créées par conversions non linéaires, condition nécessaire pour la mise en place d'une expérience de spectroscopie M-CARS [133].

## 2.3 Propagation non linéaire dans les fibres optiques

Comme nous l'avons vu dans le Chapitre 1, la silice est un diélectrique dans lequel l'onde laser induit un déplacement des charges, c'est-à-dire une polarisation du milieu. Cette polarisation peut être décomposée comme étant la somme d'une polarisation linéaire $P_L$ et d'une polarisation non linéaire $P_{NL}$ avec :

$$P_L = \varepsilon_0 \chi^{(1)} E \tag{2.42}$$

$$P_{NL} = \varepsilon_0 \chi^{(2)} E^2 + \varepsilon_0 \chi^{(3)} E^3 + \dots \tag{2.43}$$

où $\varepsilon_0$ est la permittivité du vide et $\chi^{(j)}$ est la susceptibilité d'ordre $j$ du matériau. Lorsque $j = 1$, on se trouve dans le cas de la susceptibilité linéaire qui constitue la plus grande contribution à la polarisation. Le coefficient $\chi^{(1)}$ permet de définir l'indice de réfraction et d'expliquer tous les phénomènes linéaires dont l'absorption du matériau.

Les susceptibilités d'ordres supérieurs déterminent les non-linéarités du matériau. Ainsi, le coefficient $\chi^{(2)}$ est responsable des mélanges paramétriques à trois ondes et permet par exemple la génération de second harmonique (voir Annexe C). Ce coefficient est nul pour les matériaux possédant une structure atomique centrosymétrique, comme la silice dont est constituée la majorité des fibres. La susceptibilité non linéaire d'ordre trois $\chi^{(3)}$ quant à elle est à l'origine de l'effet Kerr optique et de la diffusion Raman stimulée, qui interviennent fortement dans l'élargissement spectral de l'onde de pompe lors d'une propagation à forte puissance dans une fibre optique. Enfin, toutes les susceptibilités d'ordre $j > 3$ sont généralement négligées dans la description des effets non linéaires impliqués dans la génération de supercontinuums.

Dans une fibre, le coefficient de non-linéarité $\gamma$ exprimé en $\mathrm{m}^{-1}\mathrm{W}^{-1}$ est défini par :

$$\gamma = \frac{2\pi n_{NL}}{\lambda \mathrm{A_{eff}}} \tag{2.44}$$

où $\mathrm{n_{NL}}$ est l'indice non linéaire et $\mathrm{A_{eff}}$ est l'aire effective du mode dans la fibre.

Au cours de la propagation de l'onde pompe dans la fibre, la succession de ces effets non linéaires permet d'élargir le spectre jusqu'à plusieurs octaves. Les mécanismes mis en jeu dans la génération de supercontinuum ont été largement étudiés depuis une vingtaine d'années [134, 135, 136]. Nous présentons ici les principaux phénomènes qui apportent une contribution significative dans l'élargissement spectral de type supercontinuum.

### 2.3.1 Effet Kerr

L'effet Kerr est un phénomène qui se traduit par une modification de l'indice de réfraction d'un milieu sous l'effet d'un champ électrique intense. Cet indice n peut alors être exprimé comme la somme d'un indice linéaire $n_L$ et d'une variation d'indice donnée par :

$$n = n_L + \Delta n(I) \tag{2.45}$$

$$\Delta n(I) = n_{NL} I(t) = \frac{3}{8 n_L} \mathrm{Re}\left(\chi^{(3)}\right) I(t) \tag{2.46}$$

où I(t) est l'intensité du champ appliqué.

La variation d'indice optique imposée par l'intensité de l'onde en affecte directement sa propre propagation. Dans le cas de faisceaux à profils temporels et spatiaux non uniformes, comme ceux proposés par des courbes de formes gaussienne, lorentzienne ou sécante hyperbolique, l'indice vu par le centre du faisceau devient plus fort, ce qui produit un effet de lentille convergente ou divergente en fonction du signe du coefficient Kerr. Au-delà d'un certain seuil d'intensité, et pour un indice non linéaire positif, l'autofocalisation peut conduire à dépasser le seuil d'endommagement du matériau, provoquant sa destruction.

Outre l'autofocalisation, l'effet Kerr s'exprime à travers différents autres phénomènes que nous allons maintenant décrire brièvement.

#### 2.3.1.1 Modulations de phase

La phase d'une onde qui se propage dans une fibre optique peut subir des variations provoquées par un changement d'indice induit par l'effet Kerr :
- soit sous l'effet de sa propre intensité $I_1$ quand il s'agit d'**automodulation de phase** (SPM).
- soit sous l'effet de l'intensité $I_2$ d'une seconde onde se propageant simultanément dans la fibre : **modulation de phase croisée** (XPM).

La variation d'indice induite par l'effet Kerr s'accompagne ainsi d'une variation de la phase de l'onde d'une quantité $\varphi_{PM}$ :

$$\varphi_{PM} = \varphi_{SPM} + \varphi_{XPM} = n_{NL} k_0 L I_1 + n_{NL} k_0 L C I_1 \tag{2.47}$$

où $k_0 = \dfrac{2\pi}{\lambda}$ est le vecteur d'onde, $L$ est la longueur de la fibre optique, $C$ est le coefficient de modulation de phase qui prend la valeur 2 lorsque les deux ondes se propagent avec deux polarisations parallèles et la valeur 2/3 lorsqu'elles se propagent en ayant deux polarisations perpendiculaires [137].

Lorsque qu'une seule onde se propage dans la fibre, l'intensité $I_2$ est nulle et la phase totale de l'onde devient :

$$\varphi = \varphi_L + \varphi_{SPM} = n_L k_0 L + n_{NL} k_0 L I_1 = (n_L + n_{NL} I_1) k_0 L \tag{2.48}$$

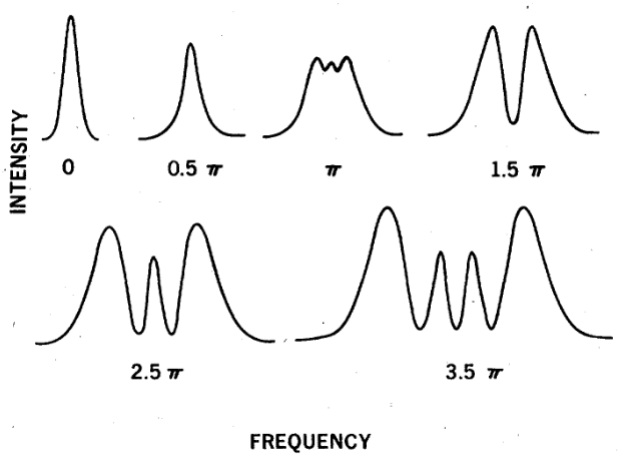



**Figure 2.27** – Exemples de modulations de spectre calculées dans [138] pour différentes valeurs de déphasage appliquées à une impulsion gaussienne.

Il s'ensuit un élargissement fréquentiel (Figure 2.27) défini par :

$$\Delta\omega(t) = -\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}\left(n_{NL} I_1 k_0 L\right) \tag{2.49}$$

### 2.3.2 Mélanges paramétriques

#### 2.3.2.1 Mélange à quatre ondes

Le mélange à quatre ondes est un phénomène non linéaire conduisant à des conversions de fréquences nécessitant deux conditions particulières : l'accord de phase et la conservation de l'énergie. Deux photons de fréquences $\omega_1$ et $\omega_2$ (pompes) disparaissent en créant deux autres photons, appelés Stokes et anti-Stokes, de fréquences $\omega_3$ et $\omega_4$ (Figure 2.28).

Les conditions d'accord de phase et de conservation d'énergie s'écrivent respectivement de la manière suivante :

$$\overrightarrow{k_1} + \overrightarrow{k_2} = \overrightarrow{k_3} + \overrightarrow{k_4} \tag{2.50}$$

$$\omega_1 + \omega_2 = \omega_3 + \omega_4 \tag{2.51}$$

où $\overrightarrow{k_i}$ est le vecteur d'onde, de norme $k_i = \dfrac{n_i \omega_i}{c}$, associé à chaque onde et $n_i$ est l'indice de réfraction du milieu à la fréquence $\omega_i$.

Le processus CARS décrit dans le Chapitre 1 est vu comme une sorte de mélange à quatre ondes dans la mesure où trois ondes (pompe, sonde et Stokes) entrainent la création d'une quatrième onde anti-Stokes (onde CARS). La particularité de ce mélange est qu'il met en jeu les transitions vibrationnelles du milieu dans lequel il se propage. Le même mécanisme peut

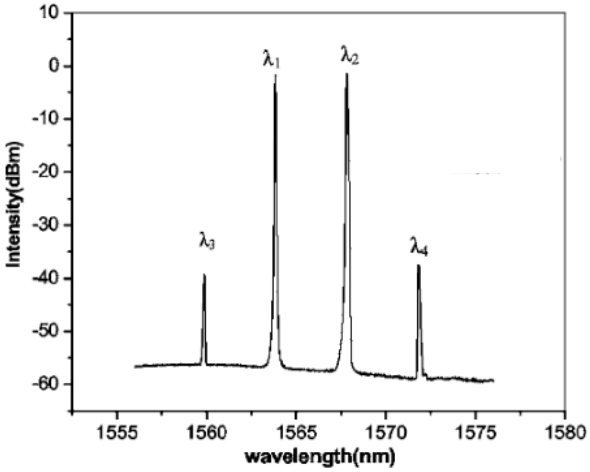



**Figure 2.28** – Exemple de mélange à quatre ondes : deux ondes à $\lambda_1 = 1563{,}84$ nm et à $\lambda_2 = 1567{,}83$ nm engendrent la création de deux ondes à $\lambda_3 = 1559{,}91$ nm et $\lambda_4 = 1571{,}82$ nm [139].

néanmoins être obtenu simultanément sans pour autant utiliser les transitions vibrationnelles Raman. On parle alors de fond non résonnant. Il est à noter que ces deux processus de mélange à quatre ondes vont donner naissance à la création des mêmes fréquences, ce qui complique l'extraction des signatures représentatives des liaisons atomiques et moléculaires que nous rechercherons. Plusieurs méthodes (expérimentales ou numériques) peuvent néanmoins nous permettre de séparer les signatures entremêlées [49, 52, 140, 141, 142, 143].

#### 2.3.2.2 Instabilités de modulation

Les instabilités de modulation apparaissent lorsqu'une onde de forte intensité se propage dans un milieu non linéaire en régime de dispersion anormale (dispersion négative) [144]. Elles se traduisent dans le domaine temporel par des modulations ultrarapides et dans le domaine spectral par l'apparition de raies latérales symétriques autour de la longueur d'onde de pompe (Figure 2.29). Le phénomène peut s'interpréter comme un mélange à quatre ondes dans lequel l'onde pompe échange de l'énergie avec les raies latérales. On peut néanmoins noter que dans le cas d'instabilités de modulation, le décalage spectral est fortement dépendant de la puissance de pompe [145]. Dans les fibres optiques, la condition d'accord de phase résulte d'une compensation entre l'effet linéaire de la dispersion chromatique et l'effet non linéaire de l'automodulation de phase.

### 2.3.3 Effet Raman

La diffusion Raman, présentée en section 1.1.1 du Chapitre 1, intervient également dans les fibres optiques. Dans ce cas, ce sont les molécules de silice qui diffusent la lumière en réémettant, selon le gain Raman de la silice présenté en Figure 4.1.1, une onde de fréquence décalée d'environ 13,2 THz vers les grandes longueurs d'onde. Dans le cas d'une création spontanée de l'onde

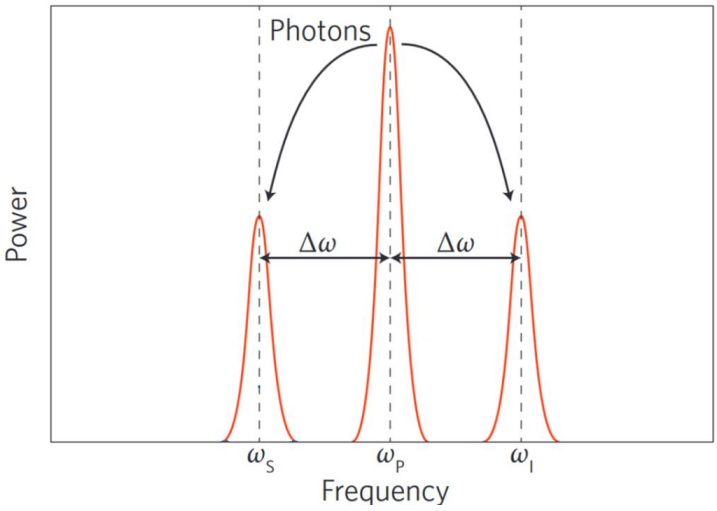



**Figure 2.29** – Représentation schématique d'un spectre engendré par les instabilités de modulation : création de deux nouvelles fréquences symétriques par rapport à la fréquence $\omega_P$ [146].

Stokes uniquement, le processus de conversion est considéré comme quasi-linéaire et peut être décrit par un mélange à deux photons sans toutefois oublier la création d'un phonon [147].

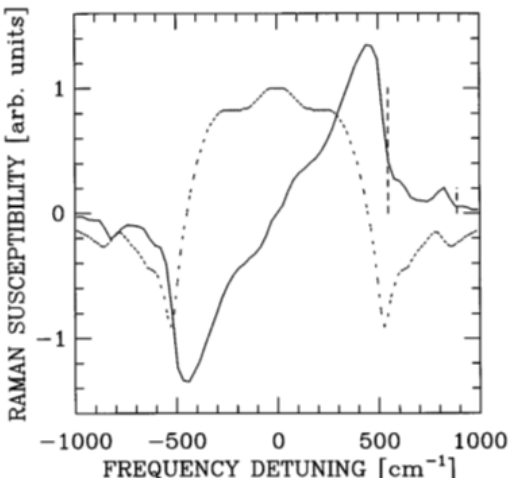



**Figure 2.30** – Courbe issue de la Réf. [148] montrant le profil de la partie imaginaire du $\chi^{(3)}$ en trait plein (gain Raman), et sa partie réelle en trait pointillé.

Pour des puissances de pompe fortes, le processus de génération Raman spontané peut donner lieu à une émission stimulée impliquant alors quatre photons et un phonon. Il est alors possible de créer, autour de l'onde pompe, deux raies équidistantes appelées onde Stokes et onde anti-Stokes. On peut souligner que la probabilité d'obtenir des photons pour l'onde Stokes est bien plus grande que pour son homologue anti-Stokes, ce qui se traduit par la génération de spectres dissymétriques. On peut également comprendre cette génération Raman comme le résultat d'un échange énergétique multi-bande présentant une partie imaginaire dissymétrique alliant amplification et absorption (Figure 4.1.1) [148].

La diffusion Raman peut donner lieu à une cascade de raies Raman, dans laquelle une onde

Stokes générée par diffusion Raman va agir comme une pompe secondaire et générer à son tour une nouvelle onde Stokes décalée de 13,2 THz (dans la silice). Cet effet de cascade Raman sera étudié plus précisément dans le Chapitre 4 où j'utiliserai l'aspect dissymétrique de la partie imaginaire du $\chi^{(3)}$ pour obtenir des spectres larges à profils plats.

### 2.3.4 Effets solitoniques

Lors de la propagation d'une impulsion dans un milieu, on peut obtenir une compensation des effets de phase non linéaires (automodulation de phase) par ceux linéaires de la dispersion, permettant alors la propagation d'une impulsion sans déformation temporelle. Celle-ci est alors appelée « propagation soliton » [149]. Dans les fibres en silice, l'indice non linéaire de signe positif permet d'obtenir, pour une puissance donnée, une annulation de l'effet de la dispersion anormale.

Les solitons sont définis par leur ordre N tel que :

$$\mathrm{N} = \sqrt{\frac{\gamma P_0 T_0^2}{|\beta_2|}} \tag{2.52}$$

où $\mathrm{P_0}$ est la puissance crête du soliton, $\mathrm{T_0}$ sa durée à mi-hauteur et $\gamma$ et $\beta_2$ sont respectivement le coefficient non linéaire et la dispersion de vitesse de groupe définis précédemment.

Un soliton d'ordre un (soliton fondamental) est robuste dans le sens où il résulte d'une parfaite compensation entre les effets de SPM et ceux de dispersion chromatique. Il se propage donc sans aucune déformation temporelle ou spectrale. Les solitons d'ordres supérieurs sont le résultat de la superposition de N solitons fondamentaux se propageant à la même vitesse de groupe mais avec des durées et des puissances crêtes différentes. Les solitons d'ordre N subissent périodiquement une déformation spectrale et temporelle périodique qu'on appelle souvent respiration (Figure 2.31).

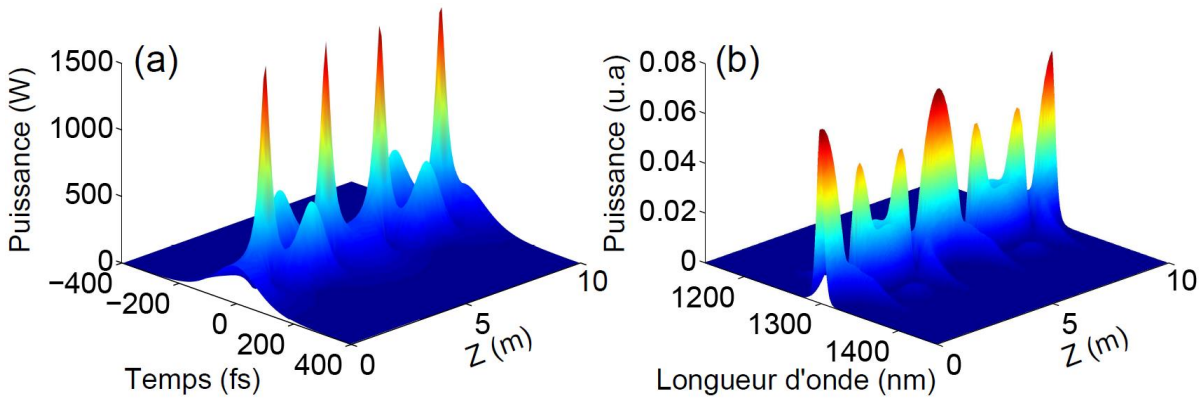



**Figure 2.31** – Respiration (a) temporelle et (b) spectrale d'un soliton d'ordre N = 3 (durée : 100 fs) [150].

Ces solitons d'ordres supérieurs sont particulièrement sensibles aux perturbations extérieures introduites par exemple par l'effet Raman ou par des pertes de propagation. Ils peuvent alors donner naissance à une multitude de solitons fondamentaux (d'ordre N = 1) de différentes puissances crêtes [151].

#### 2.3.4.1 Autodécalage fréquentiel de solitons

L'autodécalage fréquentiel de soliton (SSFS, pour *Self Soliton Frequency Shift*) est le résultat de la diffusion Raman subie par un soliton. Plus précisément, lorsque le spectre d'un soliton recouvre la courbe spectrale du gain Raman du matériau traversé, la longueur d'onde centrale du soliton est décalée suivant ce gain (c'est-à-dire de 13,2 THz dans le cas de la silice). Par effet de cascade, un soliton peut se déplacer sur une plage spectrale importante (¿ 400 nm) et ainsi dériver vers les grandes longueurs d'onde [152, 153, 154]. Il est néanmoins important de noter que ce phénomène n'apparait que dans la zone de dispersion anormale et que l'évolution de la valeur de la dispersion lors de l'autodécalage entraine une adaptation de la puissance crête de l'onde solitonique.

La forme de la courbe de gain fait que le soliton n'est soumis à un décalage significatif que lorsque son spectre est très étendu, c'est-à-dire lorsque sa durée est faible (courbe bleue de la Figure 2.32a). La Figure 2.32b montre l'exemple de l'autodécalage par diffusion Raman d'un soliton d'une durée de 60 fs. Le soliton subit un décalage fréquentiel de 100 nm après 100 m de propagation.

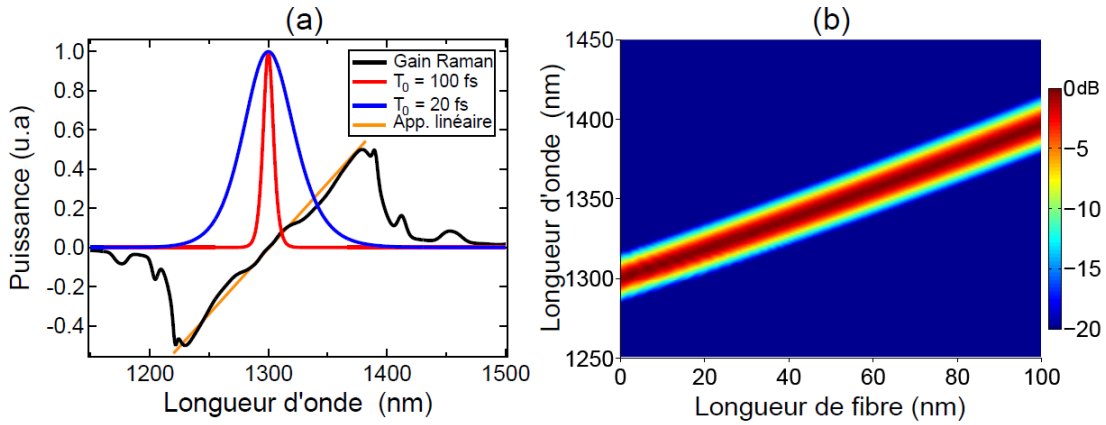



**Figure 2.32** – (a) Illustration du recouvrement spectral entre la courbe de gain Raman en noir et le spectre de deux impulsions de durée 100 fs (rouge) et 20 fs (bleue). Une approximation linéaire du gain Raman est proposée en orange ; (b) Autodécalage fréquentiel d'un soliton par effet Raman (durée d'impulsion : 60 fs) [150].

Dans notre cas les processus solitoniques seront fortement utilisés afin de produire, dans une fibre optique en silice dopée, un étalement spectral dissymétrique vers les hautes longueurs d'onde. Une amplification laser sera ajoutée lors de ces processus solitoniques de manière à exacerber la création de fréquences par autodécalage solitonique.

#### 2.3.4.2 Génération d'ondes dispersives

Lorsque le spectre d'un soliton se situe au voisinage du ZDW, il peut y avoir recouvrement spectral entre le soliton et la zone de dispersion normale. Le fait de subir à la fois une dispersion normale et anormale entraine la « déstabilisation » du soliton.

A cause de ces contraintes, une partie de son énergie se désolidarise pour engendrer une propagation autonome en régime normal et ainsi créer une nouvelle onde dite dispersive. Le soliton, qui a perdu une partie de sa puissance se reconstitue pour garder ses caractéristiques de propagation et se décale spectralement pour s'éloigner du ZDW (conservation de la quantité de mouvement) comme le montre la Figure 2.33.

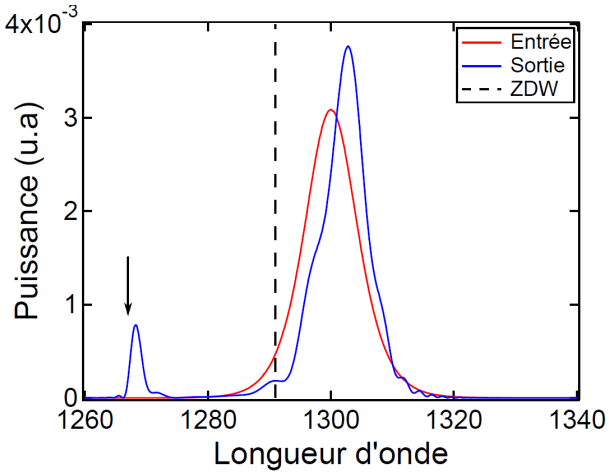



**Figure 2.33** – Génération d'une onde dispersive (durée d'impulsion : 100 fs) : superposition des spectres pris avant (rouge) et après (bleu) génération de l'onde. Le trait en pointillés noirs indique la position du ZDW [150].

On peut également concevoir la création d'une onde dispersive comme la génération intra-impulsion d'une cascade de mélanges paramétriques à quatre ondes qui a pour effet de changer le contenu spectral du soliton. Une rupture de la symétrie des échanges énergétiques permet de donner préférentiellement naissance à une onde se trouvant en régime de dispersion normale.

#### 2.3.4.3 Fission de solitons

L'instabilité des solitons d'ordres supérieurs à 1 entraine souvent leur fission à la moindre perturbation (effet Raman, pertes par propagation, dispersion d'ordre élevé, etc.). Le soliton d'ordre N éclate alors en N solitons de puissances crêtes et de durées différentes. La Figure 2.34 montre le résultat de simulations d'une fission de soliton d'ordre N = 6 (durée : 100 fs) [150].

La génération de supercontinuum en régime de dispersion anormale est généralement le résultat d'une cascade d'effets faisant intervenir l'automodulation de phase, la génération d'instabilité de modulation, la propagation et l'autodécalage de solitons. Il faut également souligner que

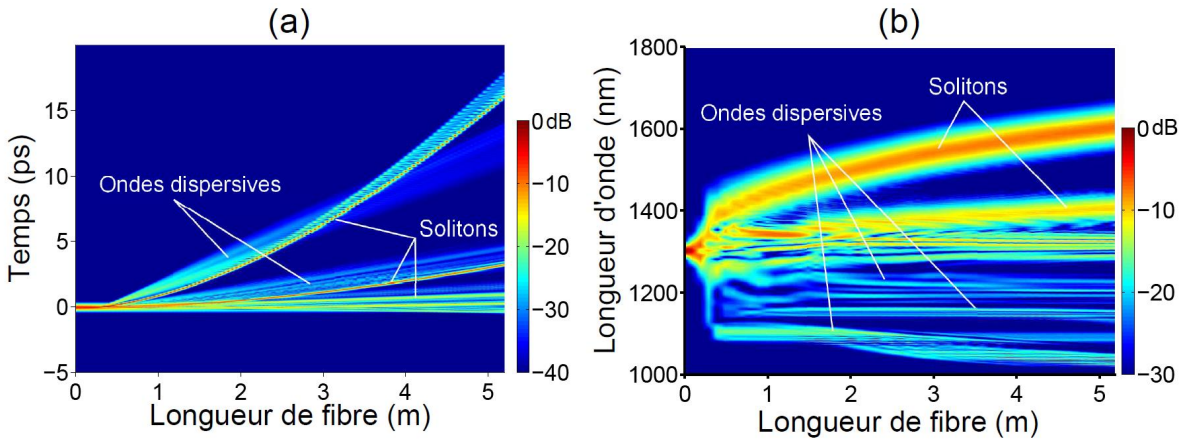



**Figure 2.34** – Résultat de simulations (a) temporel et (b) spectral de la fission d'un soliton d'ordre N = 6 dont les solitons résultants subissent un autodécalage fréquentiel et génèrent des ondes dispersives [150].

la collision entre solitons peut être un moteur efficace qui donne naissance à des interactions multiples de très forte puissance. Il a par exemple été montré que l'utilisation d'impulsions longues pouvait donner naissance à une multitude d'ondes solitoniques qui, par collision, pouvait fortement exacerber l'élargissement spectral [155]. Dans notre cas et pour notre application de M-CARS, l'utilisation d'impulsion subnanosecondes devrait permettre d'une part de réduire la sensibilité aux effets de la dispersion et de garder une superposition temporelle entre nos composantes spectrales, et d'autre part, de favoriser les collisions solitoniques garantissant une forte extension spectrale vers les hautes longueurs d'onde [155].

Le régime de dispersion dans lequel la fibre optique est pompée joue un rôle fondamental dans la mesure où il détermine l'apparition ou non des effets non linéaires que nous avons décrits précédemment.

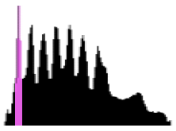
### 2.3.5 Impact du régime de dispersion de la fibre sur l'élargissement spectral

Nous avons déjà indiqué que certains effets non linéaires n'apparaissent que dans un régime de dispersion donné, comme c'est le cas des effets solitoniques (voir section 2.3.4). A l'inverse, la diffusion Raman stimulée jouera un rôle différent selon le régime de dispersion. Une génération de raies discrètes et puissantes peut être obtenue en régime de dispersion normale tandis que ce gain Raman peut être utilisé comme moteur d'autodécalage de solitons donnant naissance à un spectre continument accordable en régime anormal.

Le Tableau 2.3 ci-dessous répertorie les effets non linéaires principaux et l'allure des spectres obtenus classiquement en fonction de la position relative de la longueur d'onde de pompe par rapport au ZDW dans une fibre. On constate clairement ici que l'apparition et la combinaison des effets non linéaires modifieront en profondeur l'allure du spectre obtenu. C'est pour cette raison qu'il est important de bien choisir la longueur d'onde du laser de pompe et le ZDW (et

donc la géométrie de la fibre optique) pour obtenir une allure de spectre donnée.

**Tableau 2.3** – Effets non linéaires principaux et allure des spectres générés en fonction du régime de dispersion. La longueur d'onde de pompe injectée dans la fibre est représentée en rose sur chaque spectre.

| **Régime de dispersion** | **Normale** ($\lambda_p$ < ZDW) | **Nulle** ($\lambda_p$ = ZDW) | **Anormale** ($\lambda_p$ > ZDW) |
|---|---|---|---|
| **Effet·s non-linéaire·s principal·aux** | Diffusion Raman stimulée | Effets solitoniques et paramétriques | Effets solitoniques |
| **Spectre obtenu** | Génération discrète de plus hautes longueur d'onde  | Elargissement homogène de part et d'autre de la pompe | Génération homogène de plus hautes longueur d'onde |

Il est également important de noter qu'au-delà de la forme du spectre, la répartition temporelle de l'énergie est un paramètre très important et qu'elle peut très largement être affectée par les effets non linéaires mis en jeu et par le régime de dispersion utilisé [133]. Un exemple de la modification de l'enveloppe d'une impulsion subnanoseconde lors de l'excitation d'une fibre microstructurée de seulement 7 m de long est donné en Figure 2.35.

Comme nous l'avons vu dans ce chapitre, un faisceau laser puissant adressé dans un milieu dans lequel peuvent se déclencher des effets non linéaires suffit à provoquer un élargissement spectral. Avant de réussir à générer des spectres sur des gammes de longueurs d'onde de plusieurs micromètres de large à travers des fibres optiques, divers milieux ont été testés, générant des spectres de plus en plus étendus. Pour faire le point sur ce sujet, nous proposons d'abord un bref historique de l'élargissement spectral dans les liquides, solides et gaz puis dans les fibres optiques. Dans un second temps, nous nous intéresserons plus particulièrement à la génération à travers les fibres optiques de spectres dans la gamme proche infrarouge nécessaire pour la spectroscopie M-CARS (1160 nm — 1600 nm). Enfin, nous évoquerons brièvement la génération de continuum dans le moyen infrarouge (entre 2 µm et 20 µm) et l'infrarouge lointain (supérieur à 20 µm) à travers des fibres optiques fabriquées dans des matériaux adaptés.

## 2.4 État de l'art de la génération de supercontinuum

### 2.4.1 Historique de l'élargissement spectral dans différents matériaux

L'emploi d'une source laser est indispensable pour produire l'élargissement spectral fournissant l'onde Stokes large-bande utilisée dans la spectroscopie M-CARS. Différents types de lasers, qui

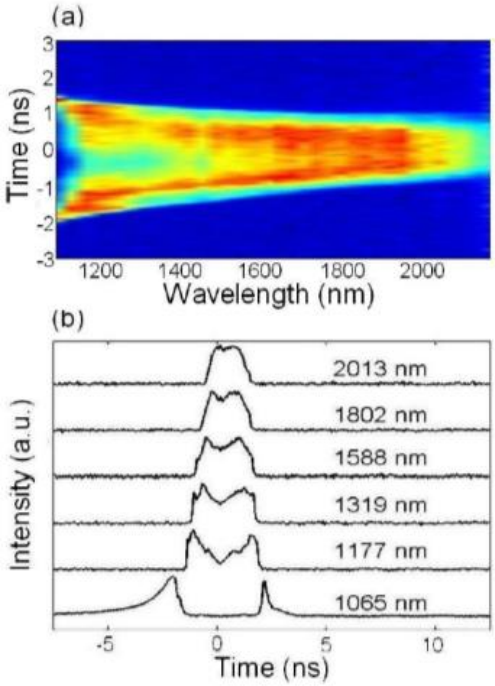



**Figure 2.35** – (a) Exemple de la modification de la répartition spectrotemporelle d'une impulsion subnanoseconde se propageant dans une fibre microstructurée en régime de dispersion anormale ; (b) Évolution du profil temporel de l'enveloppe en fonction de l'intensité [133].

se distinguent par la nature de leur milieu amplificateur ou par la durée des impulsions qu'ils génèrent, peuvent être utilisés. Dans cette section, nous proposons une revue des différents systèmes qui ont pu servir à générer un supercontinuum au cours des soixante dernières années.

#### 2.4.1.1 Les matériaux pour la génération de supercontinuum

La première démonstration d'élargissement spectral a été effectuée en 1970 par Alfano et Shapiro [156]. Dans cette expérience pionnière, un laser déclenché à verrouillage de mode émettant des impulsions à 1060 nm, doublées en fréquence à l'aide d'un cristal de phosphate de potassium KDP, sert à pomper un verre de borosilicate (BK7). Un spectre s'étalant entre 400 nm et 700 nm est alors généré à l'aide principalement des non-linéarités d'ordre trois. De très forts effets spatiaux conduisant à la filamentation du faisceau pompe introduisent une complexité spatiotemporelle supplémentaire. Depuis, des élargissements spectraux ont été provoqués dans différents matériaux, comme nous allons maintenant le voir.

##### 2.4.1.1.1 Élargissement spectral dans les liquides et les gaz

Alfano et Shapiro ont également été les premiers à générer un spectre large-bande à travers un liquide, en 1972 [157]. Dans cette étude, l'onde de pompe est un faisceau intense à 530 nm issu d'un laser Nd:verre à verrouillage de modes délivrant des impulsions de 4 ps à 1060 nm (le même que dans leur première démonstration) doublées en fréquence. Les milieux non linéaires utilisés pour l'élargissement sont successivement du tétrachlorométhane ($CCl_4$), de l'argon (Ar)

liquide et de l'azote (N) liquide, placés dans des cuves de quelques centimètres de longueur. L'élargissement, essentiellement dû à la SPM, s'étend ainsi sur une centaine de nanomètres autour de la pompe à 530 nm. A la même époque, Werncke a utilisé des impulsions picosecondes à 694 nm issues d'un laser à rubis à blocage de modes focalisées dans de l'eau. La forte densité surfacique de puissance envoyée sur l'échantillon, jusqu'à 10 GW.cm$^{-2}$, a permis d'engendrer un continuum du entre 320 nm et 910 nm [158].

La première démonstration d'élargissement spectral dans les gaz est proposée par Corkum et coll. en 1986 [159]. L'utilisation de différents gaz tels que l'argon, le dioxyde de carbone ou encore le xénon, excités par des impulsions picosecondes et femtosecondes à 600 nm leur a permis de souligner la dépendance de l'élargissement spectral à la durée d'impulsion et à la pression du gaz.

Il est également possible de générer un supercontinuum directement dans l'air, à pression atmosphérique, comme l'ont montré Kasparian et coll. en 2000 en utilisant des lasers de pompe à très forte puissance (de l'ordre du TW crête) [160]. Des spectres s'étalant de 300 nm à 4500 nm ont ainsi été obtenu à partir d'impulsions femtosecondes à 800 nm (issues de lasers Ti:Saphir). Des impulsions de pompe plus longues (100 fs contre 35 fs) ont permis une meilleure efficacité de conversion pour la génération du supercontinuum. Malgré cela, on peut noter sur les spectres obtenus la très forte décroissance de la densité de puissance (rapport $10^5$ entre la DSP à 800 nm et à 4500 nm). En particulier dans notre bande d'intérêt 1000 nm -– 1600 nm, une décroissance de la DSP de l'ordre de deux décades est affichée.

#### 2.4.1.1.2 Élargissement spectral dans les cristaux

Les cristaux sont largement utilisés pour l'élargissement spectral. Du fait de leur non-linéarité d'ordre deux plus forte que celle du troisième ordre et de leur transparence sur une large gamme de longueurs d'onde, des cristaux comme le bêta-borate de baryum (BBO) [161] ou le niobate de lithium à inversion périodique du signe de la non-linéarité (PPLN) [162] sont couramment utilisé pour générer des spectres larges. La première configuration consiste à utiliser une onde de pompe correspondant à la moitié de la longueur d'onde du zéro de dispersion du matériau. Grâce à un pas d'inversion approprié, la génération paramétrique à trois ondes est obtenue avec un accord de phase très large. En utilisant cette méthode, une onde de pompe à 933 nm permet d'obtenir une génération de spectre entre 1,4 µm et 2,7 µm dans un cristal de niobate de lithium avec un pas de 27 µm [163, 164, 165].

Plus récemment, une collaboration entre l'Institut de Recherche XLIM et l'Université de Brescia a permis une démonstration expérimentale d'un élargissement spectral couvrant l'UV, le visible et le NIR par l'intermédiaire d'un cristal PPLN pompé par une onde picoseconde à 1064 nm [166]. Cette bande spectrale très large en sortie du cristal est acquise grâce au contrôle du désaccord de phase par la température du cristal. Plus exactement, les auteurs ont mis en évidence qu'un effet de « *cascading* » à très forte intensité pouvait enrichir le spectre autour des harmoniques deux et trois de l'onde de pompe. Cet effet particulier était également accompagné de déformations spatiales importantes pouvant mener à une autofocalisation ou une autodéfocalisation de l'onde

pompe suivant le signe du désaccord de phase utilisé. Ce paramètre permet également de modifier la forme générale du spectre final et d'obtenir soit une génération spectrale continue autour de la pompe et de ses harmoniques ou des conversions multiples discrètes [166].

Cependant, les cristaux étant des matériaux massifs sans effet de guidage, ils ne confinent pas l'onde de pompe et nécessitent donc de très fortes énergies pour générer les effets non linéaires responsables de l'élargissement. En outre, du fait de la diffraction, les longueurs d'interaction dans les cristaux massifs sont très courtes. C'est pourquoi les fibres optiques ont peu à peu supplanté les cristaux pour la génération de supercontinuum.

#### 2.4.1.2 Élargissement spectral dans les fibres optiques

Le fort coefficient non linéaire des fibres (relation 2.44), associé au contrôle de la dispersion dans les FMAS par un choix approprié des paramètres optogéométriques, a donné un nouvel élan à la recherche sur la génération de supercontinuum. Les fibres standards qui avaient été utilisées dans les années 1980 pour l'élargissement spectral ont ainsi été remplacées dès la fin des années 1990 par les FMAS qui sont encore de nos jours majoritairement utilisées. Nous proposons ici une revue de quelques travaux marquants dans le domaine de l'élargissement spectral à travers les fibres optiques, dans différents régimes temporels de l'onde de pompe.

##### 2.4.1.2.1 Élargissement spectral dans les fibres optiques classiques

La première démonstration d'élargissement spectral à travers une fibre optique standard monomode est proposée par Lin et Stolen en 1976 [167]. Une fibre de 19,5 m de longueur ayant un cœur de 7 µm de diamètre est pompée à l'aide d'un laser émettant des impulsions de 10 ns à 440 nm. Malgré un très faible couplage dans la fibre (inférieur à 10 %), un continuum s'étalant de 440 nm à 630 nm est obtenu. Le zéro de dispersion de la fibre étant vraisemblablement autour de 1200 nm, la fibre est pompée en régime de dispersion normale et l'élargissement est principalement obtenu par SPM et diffusion Raman, du côté des longueurs d'onde plus grandes que la longueur d'onde de pompe.

Les fibres multimodes peuvent également être utilisées pour générer un supercontinuum, comme l'ont montré Baldeck et Alfano en 1987 [168]. Dans leur système, un laser délivrant des impulsions à 532 nm de 25 ps pompe une fibre optique de 15 m de longueur dont le cœur a un diamètre de 8 µm, dans laquelle peuvent coexister quatre modes ($LP_{01}$, $LP_{11}$, $LP_{21}$, $LP_{02}$). Les effets non linéaires engendrés, dont le FWM, ont permis un élargissement spectral entre 460 nm et 700 nm. Cet élargissement est produit par des mélanges à quatre ondes dont les accords de phase sont obtenus par des combinaisons de ces différents modes. Par exemple, le décalage à 1950 $cm^{-1}$ est obtenu par un mélange faisant intervenir les modes $LP_{01}$ et $LP_{02}$ excités aux fréquences $\omega_1$ et $\omega_2$ (ondes de pompe), les ondes Stokes (à $\omega_3$) et anti-Stokes (à $\omega_4$) étant couplées dans les

modes $LP_{11}$ et $LP_{21}$ respectivement.

#### 2.4.1.2.2 Élargissement spectral dans les fibres microstructurées air/silice

Dès la fabrication des premières FMAS en 1997 [124], l'intérêt de ces fibres pour l'élargissement spectral a très vite été démontré, en tirant profit notamment d'un coefficient de non-linéarité très supérieur à celui des fibres standards induit par un confinement de la lumière plus strict et grâce au contrôle de la dispersion permettant de privilégier les effets non linéaires désirés pour façonner le spectre. Ranka et coll. ont été les premiers à générer un continuum à partir d'une FMAS [38]. Dans leur démonstration, ils utilisent un tronçon de 75 cm de FMAS dont le cœur de 1,7 µm de diamètre est entouré d'un réseau de trous d'air de 1,3 µm de diamètre dans un agencement hexagonal (Figure 2.36a). Elle est pompée par un laser émettant des impulsions de 100 fs à 790 nm de manière à obtenir un spectre relativement plat entre 390 nm et 1600 nm grâce aux effets combinés de la SPM et de la diffusion Raman (Figure 2.36b).

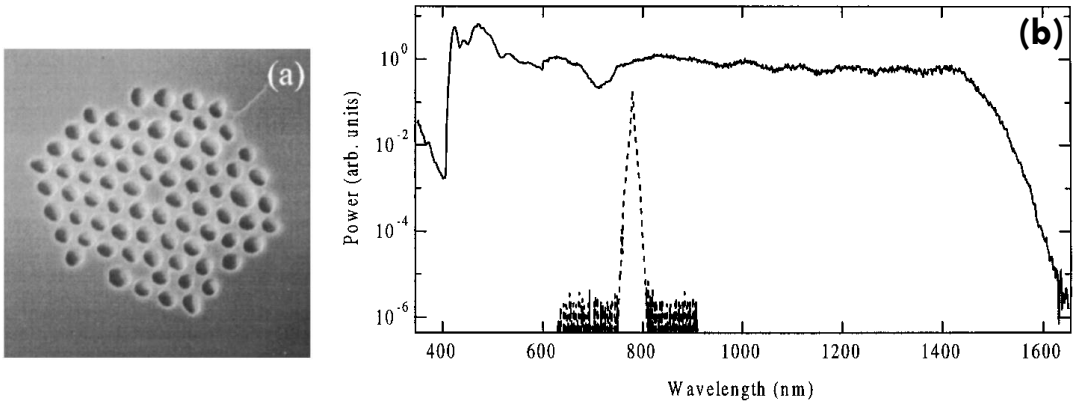



**Figure 2.36** – (a) Fibre microstructurée utilisée dans la référence [38] ; (b) Spectre mesuré dans la Référence [38]. Le spectre de l'onde de pompe ($\Delta t$ = 100 fs, $\lambda$ = 790 nm) est représenté en pointillé.

Depuis, les supercontinuums sont généralement engendrés à travers des FMAS, pompées par des sources lasers dont la durée d'impulsion varie de la nanoseconde à la femtoseconde [169, 170, 171]. La possibilité d'utiliser une source laser continue pour générer un supercontinuum, apportant des puissances moyennes de plusieurs Watts, a été démontrée quelques années plus tard, par Avdokhin [172] puis par Kudlinski et Mussot [173] notamment.

En 2005, Genty et coll. proposent pour la première fois l'utilisation d'une fibre LMA pompée par des impulsions nanosecondes pour générer un spectre s'étendant de 600 nm à 1800 nm [174]. Le choix d'utiliser une fibre LMA est expliqué par la volonté des auteurs de réduire la divergence du faisceau à la sortie de la fibre, c'est-à-dire de travailler avec une fibre à très faible ouverture numérique (entre 0,05 et 0,1). Cependant, le large diamètre des fibres testées (entre 10 µm et 20 µm) implique une aire effective plus grande et par conséquent, une diminution du coefficient de non-linéarité. La baisse de la densité spatiale de puissance doit alors être compensée par une plus grande longueur d'interaction. L'élargissement spectral conséquent est ainsi obtenu dans des fibres de 100 m de longueur, totalement incompatibles avec la spectroscopie M-CARS du

fait de l'importante désynchronisation des composantes spectrales engendrée par la dispersion chromatique dans des fibres si longues. Le couplage de la lumière dans les fibres LMA est par ailleurs très délicat, à cause de l'ouverture numérique très petite de ces fibres. C'est pourquoi la puissance en sortie de fibre est relativement faible ( 30 % de la puissance injectée, alors que le rendement d'injection de la lumière dans une FMAS plus classique est facilement supérieur à 60 %).

Enfin, un moyen de générer des spectres encore plus large est d'utiliser un système de double pompage, comme l'ont fait Champert et coll. en 2004 [57] ou encore Räikkönen et coll. en 2006 [175]. Le double pompage à une longueur d'onde donnée et à la longueur d'onde de son second harmonique (ici 1064 nm et 532 nm) permet d'exacerber les effets paramétriques dans la partie visible de manière à obtenir un spectre plat dans cette région spectrale, impossible à obtenir avec un simple pompage à 532 nm.

#### 2.4.1.2.3 Élargissement spectral dans des fibres originales

Pour clore cet historique sur l'élargissement spectral dans les fibres optiques, consacrons quelques mots à l'utilisation de fibres optiques composées de matériaux autres que la silice. L'objectif de l'emploi de ces matériaux est notamment de pouvoir travailler à des longueurs d'onde du moyen infrarouge (MIR, entre 2 µm et 20 µm), de l'infrarouge lointain (IRL, supérieure à 20 µm) ou encore de l'ultra-violet (UV, inférieure à 400 nm), à la fois pour ce qui est de la pompe et du continuum généré.

Les verres tels que le verre flint (de référence SF6 chez Scott) [176], les verres à base d'oxydes (contenant du tellure (Te) [177] ou du bismuth (Bi) [178]) ou encore les verres à base de chalcogénure (GLSO) [179] sont transparents du proche-infrarouge jusqu'à des longueurs d'onde très grandes, dépendant de leur composition (jusqu'à 20–25 µm pour les verres de tellure). De plus, ils présentent une très forte non-linéarité (très supérieure à celle de la silice) qui les rend très attractifs pour la génération de supercontinuum dans des gammes de longueurs d'onde élevées [180]. Les effets non linéaires mis en jeu sont les mêmes que ceux qui interviennent dans les fibres en silice aux plus courtes longueurs d'ondes.

Il est néanmoins important de noter que si les non-linéarités de ces verres sont plus fortes, leur température de transition vitreuse est très basse (entre 400 °C et 600 °C) ce qui limite leur utilisation pour engendrer des supercontinuums avec une forte puissance.

### 2.4.2 Bilan sur la génération de supercontinuum dans les fibres optiques dans le proche infrarouge pour la spectroscopie M-CARS

L'historique proposé dans la section précédente montre qu'il est possible d'élargir spectralement une onde à travers différents milieux, qu'il s'agisse d'un cristal, d'un liquide, ou d'un gaz, du moment qu'ils présentent une forte non-linéarité. Parmi ces différents milieux, la fibre optique a réussi à tirer son épingle du jeu, notamment du fait du confinement de la lumière dans un guide de très petite section (le cœur de la fibre) qui permet d'exacerber les effets non linéaires. Un état

de l'art de la spectroscopie M-CARS utilisant des supercontinuums dans le proche infrarouge générés à travers des fibres optiques a ainsi été présenté dans la section 1.4.1 du Chapitre 1.

L'élargissement dans les fibres optiques est d'autant plus important que la puissance de pompe est élevée et la longueur d'interaction grande. Cependant, la puissance de pompe guidée dans la fibre est limitée par le seuil d'endommagement de la silice que la densité surfacique de puissance du faisceau de pompe focalisé sur le cœur ne doit pas dépasser. D'un autre côté, utiliser une fibre plus longue pour augmenter l'élargissement spectral engendre deux effets indésirables : un étalement temporel accru des impulsions du fait de la dispersion chromatique et une perte de puissance globale due aux phénomènes d'absorption.

Nous voyons donc que la génération d'un supercontinuum dans une fibre optique sur une bande spectrale large est limitée par des contraintes, qui vont à l'encontre des objectifs que l'on se fixe pour créer une source de supercontinuum adaptée à la spectroscopie M-CARS.

Pour rappel, nous avons établi dans le chapitre précédent trois objectifs principaux dans notre cahier des charges :
– un spectre élargi sur la bande 1160 nm – 1600 nm ;
– une densité spectrale de puissance supérieure à 0,03 $\mathrm{mW.nm^{-1}}$ ;
– une platitude du spectre inférieure à 5 dB ;
– un décalage temporel des composantes spectrales inférieur à 200 ps.
Il apparait nécessaire de générer des effets non linéaires suffisamment intenses dans la fibre pour élargir le spectre conformément au cahier des charges, et en même temps de conserver un niveau de puissance suffisant. Dans la deuxième partie de ce manuscrit, nous présenterons les différentes méthodes mises en œuvre pour répondre à ces besoins.

# Partie II

# Nouvelles sources large-bandes en régime subnanoseconde

# Chapitre 3

# Élargissement spectral dans les fibres microstructurées dopées aux terres rares


Introduction ..... 106
3.1 Les fibres optiques microstructurées ..... 107
3.1.1 Dopage de fibres optiques aux terres rares ..... 107
3.1.1.1 Intérêt du dopage aux terres rares ..... 107
3.1.1.2 Techniques de fabrication d'une fibre optique microstructurée à coeur dopé ..... 109
3.1.1.3 Utilisation de l'Ytterbium pour l'amplification à 1064 nm ..... 110
3.1.2 Élargissement spectral dans les fibres optiques microstructurées amplificatrices ..... 111
3.2 Présentation des éléments constituant la source de supercontinuum ..... 113
3.2.1 Source laser de signal ..... 113
3.2.2 Diode laser de pompe ..... 114
3.2.3 Paramètres de la fibre microstructurée active ..... 115
3.2.3.1 Microstructure et taux de dopage ..... 115
3.2.3.2 Zéro de dispersion de la fibre ..... 116
3.3 Génération de supercontinuum dans la fibre FMAS-Yb ..... 117
3.3.1 Formation du spectre large sans amplification ..... 118
3.3.2 Impact de l'amplification sur l'élargissement spectral ..... 119
3.3.3 Étude spectral ..... 122
3.3.4 Synchronisation des composantes spectrales du supercontinuum ..... 125
3.4 Conclusion sur la mise au point d'une source de supercontinuum basée sur l'emploi d'une fibre optique microstructurée amplificatrice pour la spectroscopie M-CARS ..... 127

## Introduction

Le premier chapitre de cette thèse a mis en évidence l'intérêt de la spectroscopie M-CARS pour l'analyse d'échantillons biologiques. Il est important de rappeler que cette technique nécessite d'adresser simultanément sur l'échantillon une onde de pompe monochromatique et un signal Stokes large-bande dont l'écart spectral avec la pompe couvre au moins la zone d'empreinte digital d'intérêt de l'échantillon, c'est-à-dire un écart spectral allant de 800 $cm^{-1}$ à 1800 $cm^{-1}$. En nous appuyant sur l'étude bibliographique et l'analyse des besoins présentées, nous avons montré l'intérêt de se diriger vers un système composé d'un microlaser Nd:YAG déclenché émettant des impulsions subnanosecondes à 1064 nm en tant que source de pompe, et d'un supercontinuum engendré dans une fibre optique en silice en tant qu'onde Stokes.

En vue d'augmenter la densité spectrale de puissance dans le continuum que l'on souhaite engendrer, il est naturel de vouloir augmenter la puissance de pompe injectée et donc la puissance adressée sur la face d'entrée de la fibre. Cependant, cette puissance est limitée par le seuil d'endommagement de la silice au niveau de cette face. Lorsque la fibre est excitée par un laser continu ou un laser impulsionnel à très grande fréquence de répétition, l'endommagement est causé par des effets thermiques. Le paramètre à contrôler est alors la puissance moyenne du laser [181]. Lorsque l'on utilise des lasers à impulsions courtes (femtosecondes, picosecondes), l'endommagement survient à cause de l'ionisation du matériau induite par une puissance crête très élevée. Dans notre cas, avec des impulsions plus longues (nanosecondes), l'endommagement est principalement lié à des défauts de surface qui subissent un effet thermique catastrophique. Le seuil d'endommagement est ainsi de l'ordre de 10 $GW.cm^{-2}$ pour des impulsions nanosecondes à 1064 nm injectées dans les fibres de silice [182].

Une solution simple pour augmenter la puissance injectée dans le cœur de la fibre sans risquer d'endommager sa face d'entrée est de choisir une fibre avec un cœur de section beaucoup plus importante. Dans ce cas, l'aire effective $A_{eff}$ du mode guidé augmente et le coefficient de non-linéarité $\gamma$, inversement proportionnel à $A_{eff}$, diminue (voir relation (34) du Chapitre 2). Les effets non linéaires étant moins intenses, l'élargissement spectral est affecté de manière défavorable.

Pour continuer à utiliser un cœur de petite section tout en bénéficiant d'une forte puissance de pompe tout au long de la fibre, nous avons exploré l'idée de réamplifier cette pompe au fur et à mesure de sa propagation. Le milieu non-linéaire qu'est la fibre doit donc se comporter aussi comme un amplificateur à la longueur d'onde de pompe. Pour cela, on utilisera une fibre microstructurée dont le cœur est dopé par des ions de terres rares qui permettront l'émission stimulée indispensable à cette amplification. Ces ions devront eux-mêmes être pompés par une source optique émettant dans leur bande spectrale d'absorption, afin d'obtenir l'inversion de population requise pour l'amplification.

On voit que deux ondes de « pompe » sont mises en jeu, avec des fonctions totalement différentes : une onde de pompe pour exciter les ions de terre rare et l'onde de pompe qui engendre le continuum. Pour éviter les confusions, cette dernière sera dorénavant appelée « onde signal » ou tout simplement « signal » (en référence au « signal » porteur d'information qui est

amplifié dans les amplificateurs à fibre).

Dans ce chapitre, je présenterai les travaux que j'ai menés et qui ont conduit à la création d'une source de supercontinuum basée sur l'utilisation d'une fibre optique microstructurée air/silice dopée ytterbium. Nous nous intéresserons dans un premier temps aux fibres optiques amplificatrices dopées aux terres rares et nous justifierons le choix de l'ytterbium pour l'amplification du signal à 1064 nm. Nous présenterons ensuite les différents composants de la source (laser de signal, laser de pompe et fibre optique) avant de réaliser une étude de la génération de supercontinuum à travers une telle fibre. Une étude spectrale et temporelle, mettant en évidence les effets de l'amplification sur le spectre généré, sera présentée avant de conclure sur les avantages qu'offre l'intégration de la source dans un système de spectroscopie M-CARS.

## 3.1 Les fibres optiques microstructurées

### 3.1.1 Dopage de fibres optiques aux terres rares

L'amplification du signal tout au long de sa propagation dans la fibre nécessite l'incorporation de lanthanides (également appelé « terres rares ») dans la matrice de silice qui constitue la fibre. Les propriétés amplificatrices des terres rares, ainsi que la fabrication de fibres microstructurées dopées sont présentées dans les sections suivantes. Nous nous intéresserons ensuite au dopage par les ions Ytterbium utilisés pour l'amplification d'un signal à 1064 nm.

#### 3.1.1.1 Intérêt du dopage aux terres rares

L'amplification d'un signal repose sur l'émission stimulée. Nous avons vu dans le chapitre précédent qu'il existait différents systèmes énergétiques faisant appel à deux, trois ou quatre niveaux d'énergie dans le processus d'interaction avec un photon et que seuls les deux derniers amenaient à une émission laser. Les amplificateurs optiques fonctionnent exactement sur ce principe. Un milieu est simultanément excité par deux ondes : l'onde pompe qui engendre l'inversion de population et l'onde signal qui s'amplifie par émission stimulée.

Dans le tableau périodique des éléments, on retrouve notamment des éléments chimiques très utiles pour cette amplification que sont les lanthanides (en rouge dans le tableau périodique de la Figure 3.1).

Pour comprendre leur intérêt, il est nécessaire de remonter au placement des électrons autour du noyau d'un atome. Un rappel sur les configurations électroniques des atomes, et particulièrement des lanthanides, est proposé en Annexe B. Les ions des lanthanides ont des configurations électroniques similaires, qui leur confèrent des propriétés chimiques semblables [183]. En règle générale, ils perdent trois électrons pour donner des ions triplement ionisés (de type $Ln^{3+}$) et les transitions s'opèrent au niveau de l'orbitale $4f$. Celle-ci étant proche du noyau, les électrons qui s'y trouvent sont peu perturbés par l'environnement extérieur. Les transitions énergétiques

des ions de terres rares du niveau $4f$ ont donc de très longues durées de vie sur le niveau excité (jusqu'à 10 ms), très favorables à l'inversion de population et donc à l'amplification [184].

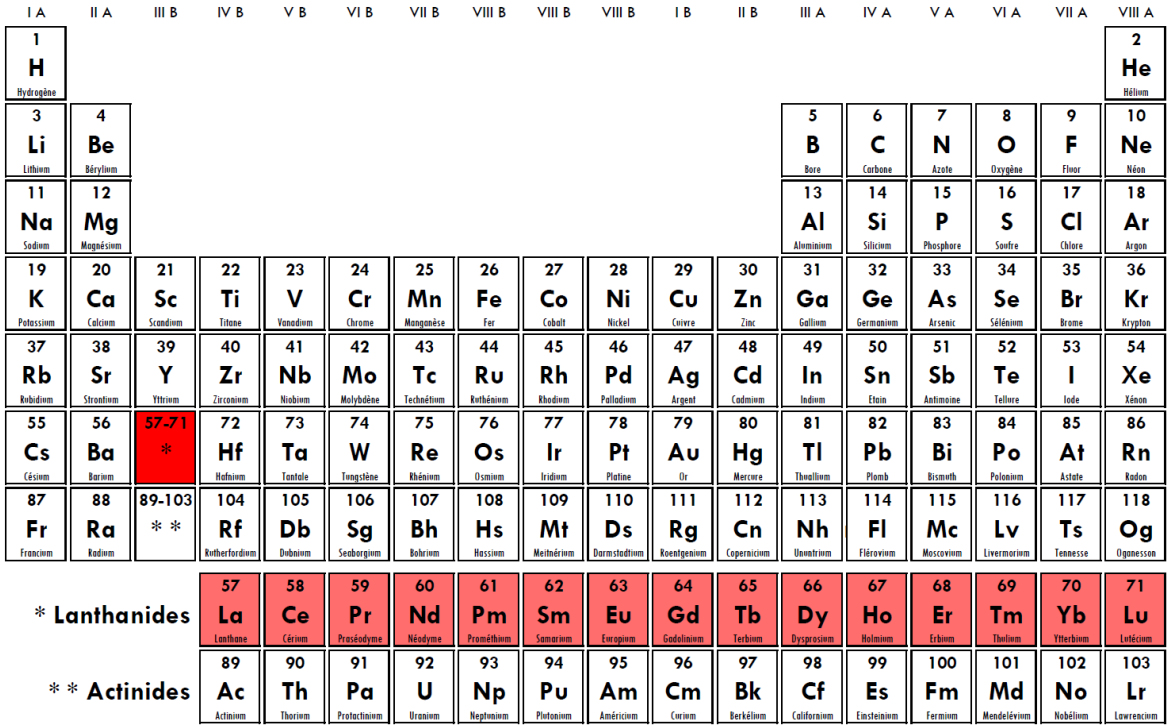



**Figure 3.1** – Tableau périodique des éléments. Les terres rares sont représentées en rouge.

Par ailleurs, les ions de terres rares insérés dans des matrices amorphes telles que les verres de silice présentent de larges bandes spectrales d'absorption et d'émission (tandis que les transitions sont étroites lorsqu'ils sont insérés dans des matrices cristallines). Ces spectres sont évidemment propres à chaque élément de terres rares et dépendent des niveaux énergétiques qui le composent et leur étendue présente un intérêt pour la réalisation d'amplificateurs large-bandes ou de lasers accordables.

Lorsque le milieu dopé est le cœur d'une fibre optique, on conserve toutes les propriétés avantageuses de la fibre optique (propagation sur une longue distance, confinement de la lumière, etc.), auxquelles s'ajoute la capacité d'amplifier la lumière. Il suffit alors d'injecter, dans la fibre amplificatrice, à la fois l'onde signal à amplifier et l'onde pompe. À ce stade, il faut souligner que l'inversion de population et la désexcitation des ions induisent une modification rapide de l'indice du matériau ce qui peut produire une modulation longitudinale de l'indice et engendrer un effet de filtrage spectral [185, 186]. La présence d'un dopant permet également de rompre la centrosymétrie du matériau ce qui donne naissance à une non-linéarité d'ordre deux pouvant être exacerbée par effet de poling optique [187].

Lorsque l'onde de pompe et l'onde signal sont injectées à la même extrémité de la fibre monocœur (configuration copropagative), le signal est fortement amplifié dès l'entrée car la pompe est intense et le gain est fort. Au-delà d'une certaine distance de propagation et dans le cas d'une puissance de pompe insuffisante pour provoquer l'inversion de population, on peut assister à une

augmentation des pertes dans la zone d'absorption de l'ion de terres rares (système amplificateur à trois niveaux). Il existe donc une longueur optimale de fibre permettant d'obtenir un gain maximal, au-delà de laquelle le signal est réabsorbé. Dans les systèmes à quatre niveaux, au-delà de la longueur optimale, il n'y a plus ni inversion de population ni amplification mais le signal n'est pas réabsorbé.

Lorsque la pompe est injectée du côté de la sortie du signal (configuration contrapropagative), elle est plus rapidement consommée qu'en configuration copropagative du fait que le signal est fort de ce côté-là. On peut alors obtenir une génération de supercontinuum en régime d'inversion de population, ce qui peut modifier la dynamique d'évolution des effets non linéaires.

#### 3.1.1.2 Techniques de fabrication d'une fibre optique microstructurée à coeur dopé

Nous avons décrit brièvement, dans la section 2.2.3.1 du Chapitre 2, la méthode de *stack and draw* permettant la fabrication des fibres optiques microstructurées. Lors de l'assemblage de la préforme, un barreau de silice, destiné à devenir le cœur de la fibre après fibrage, est installé au centre de l'arrangement des tubes de la préforme. Pour fabriquer une fibre microstructurée à cœur dopé, il faut donc remplacer ce barreau central de silice par un barreau de silice dopée. Très souvent, ce barreau est extrait d'une préforme pleine fabriquée préalablement par la technique de MCVD (*Modified Chemical Vapor Deposition*) [188]. Dans cette technique, on réalise d'abord des dépôts successifs de silice poreuse sur les parois internes d'un tube de silice pure. Cette silice poreuse est ensuite imprégnée d'une solution aqueuse ou alcoolique de la terre rare choisie. Des dopants indiciels sont éventuellement ajoutés aussi lors de cette étape de dépôt-imprégnation [189]. Après l'imbibition, la solution est retirée et la silice est vitrifiée à haute température, en même temps qu'est effectuée une opération de rétreint sur le tube pour le transformer en préforme pleine. Enfin, la partie périphérique de la préforme est enlevée par abrasion de préférence, ou éventuellement par dissolution à l'acide fluorhydrique. La partie centrale restante constituera finalement le barreau dopé nécessaire à la fabrication de la préforme de la fibre microstructurée dopée.

Il est à noter que l'on dope rarement la silice avec la terre rare seule. Il est souvent nécessaire d'associer un codopant aux ions lanthanides dans la matrice de silice pour les raisons suivantes :

- L'utilisation d'un codopant permet de faciliter le dopage en ions de terres rares, notamment en réduisant la probabilité de formation d'agrégats de terres rares (« clusters ») qui perturberaient leur action en donnant naissance à des phénomènes de conversion ascendante de photon (« up-conversion » [190]) [1] ou de relaxation croisée [2] [191] ;
- Les codopants permettent souvent, comme pour les fibres passives, de moduler l'indice de réfraction du matériau final pour contrôler les propriétés optiques du guide. Parmi ces codopants indiciels, le germanium permet également la photo-inscription de réseaux (voir

1. La conversion ascendante de photon est un processus dans lequel un atome émet un seul photon de longueur d'onde inférieure après avoir absorbé consécutivement deux photons (ou plus).

2. La relaxation croisée correspond à l'excitation d'un ion par la désexcitation d'un ion voisin.

l'Annexe C sur le poling optique).
Quelques codopants indiciels comme l'aluminium servent donc à la fois à limiter la formation de clusters et à moduler l'indice du matériau. À l'inverse, il existe des codopants, à l'image du lanthane, qui n'affectent pas l'indice du réseau et qui ne sont utilisés que pour réduire la probabilité de formation d'agrégats. Dans tous les cas, la présence de codopant dans la silice modifie la structure de la matrice vitreuse à l'échelle atomique et change l'environnement des ions de terres rares. Cela peut engendrer une légère modification de leurs propriétés optiques (décalage des niveaux d'énergie, entrainant un décalage des bandes d'absorption et d'émission).

#### 3.1.1.3 Utilisation de l'Ytterbium pour l'amplification à 1064 nm

Chaque terre rare possède ses propres spectres d'absorption et d'émission. Le besoin d'amplifier un signal à une fréquence précise guide donc le choix de l'ion de terre rare à utiliser et de sa longueur d'onde de pompe. L'un des éléments les plus utilisés en télécommunications par exemple, est l'ion erbium (configuration électronique : $4f^{12}$). Un pompage de ces ions à 980 nm ou 1480 nm permet une émission entre 1530 nm et 1550 nm [183]. Ainsi, le signal à 1550 nm transporté par les fibres de télécommunications subissent à intervalles réguliers une réamplification à l'aide d'EDFA (*Erbium-Doped Fiber Amplifiers*) [192].

Deux éléments de terres rares sont souvent utilisés pour une amplification à 1064 nm :
- Le **Néodyme**, de configuration électronique $4f^4$, qui nécessite un pompage autour de 808 nm dans un système à quatre niveaux [193]. Les sections efficaces d'émission et d'absorption de l'ion $Nd^{3+}$ dans la silice sont présentées en Figure 3.2a ;
- L'**Ytterbium**, de configuration électronique $4f^{14}$, qui se comporte comme un système à quasi-trois niveaux avec une longueur d'onde de pompe entre 915 nm et 980 nm [194]. Les sections efficaces d'émission et d'absorption de l'ion $Yb^{3+}$ dans la silice sont présentées en Figure 3.2b.

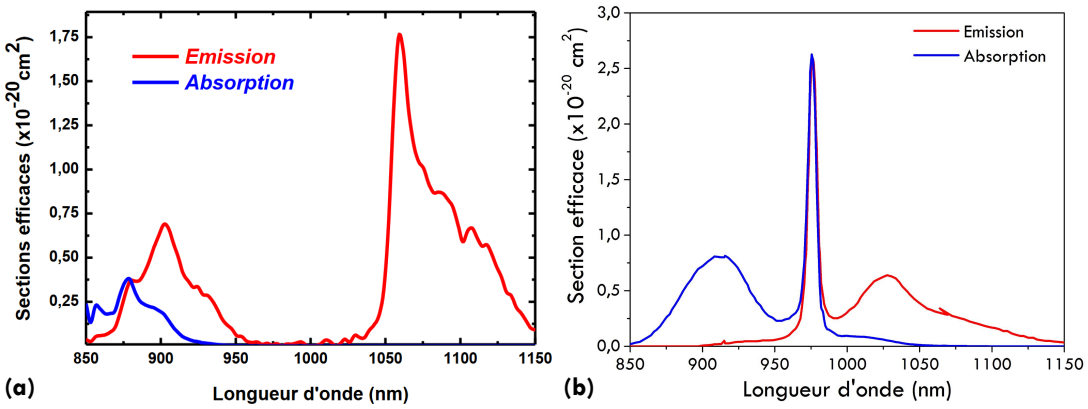



**Figure 3.2** – Sections efficaces d'émission et d'absorption de : (a) l'ion $Nd^{3+}$ dans la silice [195] ; (b) de l'ion $Yb^{3+}$ dans la silice.

Malgré une plus faible section efficace d'émission à 1064 nm de l'ytterbium (due à la réabsorption dans ce type de système quasi-trois niveaux), l'ion $Yb^{3+}$ est de nos jours souvent privilégié par rapport à l'ion $Nd^{3+}$. Plusieurs raisons permettent d'expliquer ce choix :

– Le système quasi-trois niveaux de l'ytterbium limite les pertes par effets de relaxation croisées et d'up-conversion (très présents avec le néodyme), qui entrainent in fine une plus faible efficacité ;
– Le « défaut quantique »[3], qui correspond à la fraction d'énergie non-convertie entre un photon de pompe et un photon signal émis, est plus élevé pour le $Nd^{3+}$ (25 %) que pour l'$Yb^{3+}$ (10 %). Le défaut quantique est à l'origine d'une production importante de chaleur pour de fortes puissances lasers.

Dans le cas du dopage ytterbium, l'aluminium est souvent préféré pour le codopage dans la mesure où il permet à la fois d'augmenter l'indice de réfraction et d'améliorer la solubilité des ions $Yb^{3+}$.

### 3.1.2 Élargissement spectral dans les fibres optiques microstructurées amplificatrices

Nous avons décrit dans le Chapitre 2 les fibres microstructurées composées d'un cœur en silice, entouré d'une gaine optique microstructurée air/silice. Pendant très longtemps, ces fibres ont été délaissées pour l'amplification de signaux. Les fibres optiques à double gaine, dans lesquelles la microstructure qui compose la gaine optique (gaine interne) est entourée d'une deuxième gaine à plus forte proportion d'air (gaine externe ou « gaine d'air »), leur étaient préférées. Deux exemples de fibres à gaine d'air sont montrés en Figure 3.3.

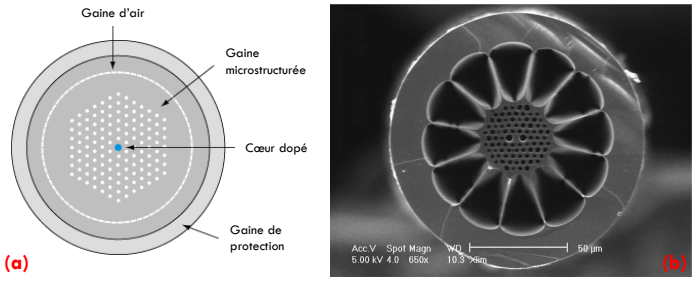



**Figure 3.3** – (a) Représentation schématique d'une fibre à gaine d'air à cœur actif (d'après [196]) ; (b) Photographie MEB de la section transverse de la fibre double-gaine à maintien de polarisation, dopée ytterbium [197].

Les fibres à double gaine permettent d'augmenter considérablement la puissance de pompe amplificatrice couplée dans la fibre, sans pour autant nécessiter une augmentation du diamètre du cœur qui mettrait en péril leur caractère monomode [198]. En effet, la pompe est injectée

3. Le défaut quantique existe dans tous les systèmes lasers, étant donné que la longueur d'onde d'émission est toujours plus grande que la longueur d'onde de pompe. L'énergie perdue correspondante est en réalité convertie en chaleur par transitions non radiatives, représentées en pointillés bleus sur les diagrammes d'énergie des mécanismes de pompage (Chapitre 2).

dans la gaine interne, de grande surface et de grande ouverture numérique. La forme de cette gaine interne est conçue de manière à favoriser le transfert d'énergie vers le cœur actif de la fibre. Ainsi, ces fibres permettent d'amplifier le signal qui se propage dans le cœur, mais avec une puissance de pompe plus importante.

L'emploi de fibres optiques microstructurées actives à double gaine permet de bénéficier à la fois de la non-linéarité du cœur de la fibre et de l'amplification permise par le pompage à forte puissance. Il est ainsi possible, comme l'ont proposé Roy et coll. en 2007, d'obtenir un supercontinuum s'étendant à la fois dans le visible et l'IR (de 500 nm à au moins 1750 nm) avec une densité de puissance globale améliorée de 10 dB dans la partie visible, en comparaison des résultats obtenus dans une fibre similaire passive [199]. Pour cela, la fibre optique est pompée par une diode continue émettant à 975 nm avec une puissance de 1,5 W. Les paramètres géométriques de la fibre optique utilisée sont rapportés dans le Tableau 3.1.

**Tableau 3.1** – Paramètres géométriques de la fibre active à double gaine à maintien de polarisation utilisée dans la Référence [197].

| Fibre microstructurée dopée Ytterbium à gaine d'air | |
|---|---|
| Diamètre des trous de la microstructure | 2 µm |
| Diamètre des contraintes de biréfringence | 4 µm |
| Pas de la microstructure | 3,5 µm |
| Dimensions du cœur ovalisé | 4,6 × 3,1 µm$^2$ |
| Diamètre de la gaine interne | 37,5 µm |
| Diamètre de la gaine externe | 95 µm |
| Diamètre de la fibre | 125 µm |

Les Figures 3.4a et 3.4b montrent les spectres obtenus à l'aide de la fibre passive et de la fibre active (dont une photographie de la section transverse est proposée en Figure 3.3b) dans les travaux d'Aude Roy [199]. Le même type de fibre à double gaine, avec un cœur de 7 µm et un ZDW à 1300 nm, a été utilisé pour générer un supercontinuum mais le spectre obtenu présentait d'importantes modulations autour de 1300 nm, dues à la diffusion Raman en régime de dispersion normale [200].

En 2012, Song et coll. ont obtenu un continuum à très forte DSP (70 mW.nm-1) sur la bande 1064 nm – 1700 nm [201]. Cependant, ils ont utilisé pour cela un montage très compliqué, faisant appel à plusieurs étages d'amplification. Chacun des étages est composé soit d'une fibre à double gaine pompée par la gaine interne, soit d'une fibre pompée au niveau du cœur. Ces fibres ont par ailleurs un faible coefficient de non-linéarité car ce sont des fibres non microstructurées à large cœur (entre 15 µm et 30 µm). Il est alors nécessaire de compenser cette faiblesse du coefficient de non-linéarité par de très fortes puissances moyennes de pompe (plusieurs watts) pour engendrer l'élargissement sur 700 nm de bande.

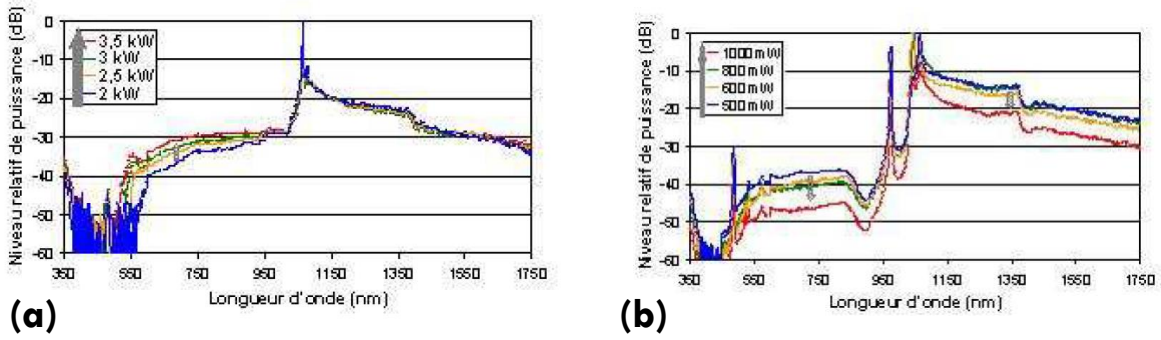



**Figure 3.4** – Principaux résultats de la Référence [199] : (a) spectres en sortie de 3 m de fibre microstructurée passive en fonction de la puissance de signal (1064 nm) d'entrée ; (b) spectres en sortie de 3 m de fibre microstructurée active en fonction de la puissance de pompe (975 nm) en entrée.

Comme on vient de le rappeler plus haut, l'intérêt majeur des fibres actives à gaine d'air est de pouvoir bénéficier d'une forte puissance de pompe en l'injectant dans la large gaine interne. Dans les fibres à simple gaine, le petit diamètre du cœur limite la puissance de pompe qu'il est possible d'injecter. Pour augmenter cette puissance de pompe, une solution est donc d'utiliser une fibre microstructurée à gros cœur.

Nous avons donc conçu et fait réaliser (par PERFOS [4]) une fibre microstructurée air/silice à gros cœur dopé Ytterbium dont les paramètres seront présentés dans la section suivante. Le but principal était d'obtenir un guide amplificateur à gros cœur tout en maintenant une longueur d'onde de dispersion nulle proche de celle de l'onde signal à 1064 nm. Avant de nous intéresser à cette fibre, nous allons présenter les sources de signal et de pompe à notre disposition pour réaliser notre système de génération de supercontinuum.

## 3.2 Présentation des éléments constituant la source de supercontinuum

### 3.2.1 Source laser de signal

La source générant l'onde signal est un microlaser Nd:YAG déclenché passivement par un absorbant saturable de type $Cr^4+$:YAG dont le principe de fonctionnement a été présenté dans la section 2.1.2.2 du Chapitre 2. Cette source délivre des impulsions de $\Delta t = 750$ ps à mi-hauteur à 1064 nm avec une fréquence de répétition de $F_r = 27{,}5$ kHz. La Figure 3.5a représente l'allure temporelle d'une impulsion. Comme nous l'avons déjà indiqué dans le chapitre précédent, l'impulsion est asymétrique. La durée du front montant, déclenché par la saturation de l'absorbant, est de 505 ps tandis que le front descendant dû à la perte de gain laser dure 740 ps.

4. PERFOS est le Centre d'innovation technologique de l'association Photonics Bretagne, spécialisé dans la conception et la production de fibres optiques spéciales, en particulier de fibres microstructurées.

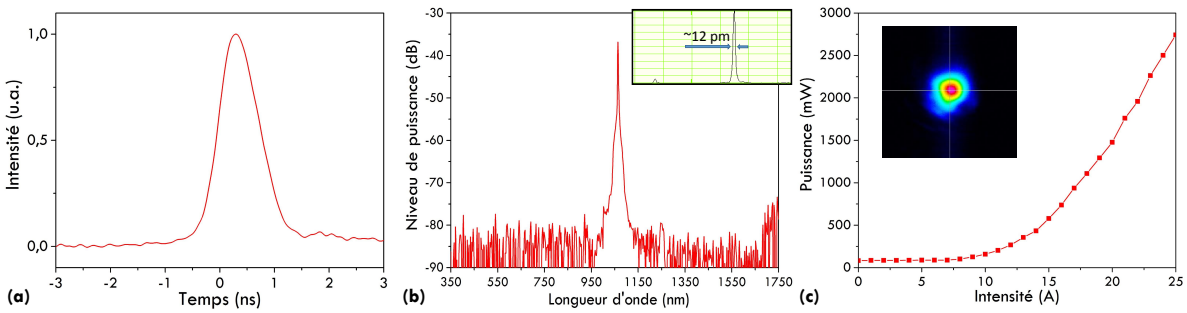



**Figure 3.5** – Caractéristiques spectrotemporelles de la source laser de signal à 1064 nm : (a) Allure temporelle d'une impulsion ($\Delta t$ = 750 ps, $F_r$ = 27,5 kHz) ; (b) Spectre mesuré à la sortie du laser par un analyseur de spectre non-résolu ($\Delta f$ = 12 pm). Insert : spectre résolu du laser ; (c) Puissance émise par la source en fonction de l'intensité de la diode. Insert : profil spatial du faisceau émis après amplification.

Le spectre de la source signal est centré à 1064,2 nm et est composé à 95 % d'un mode longitudinal unique dont la largeur spectrale est de l'ordre de 12 pm (Figure 3.5b). La puissance moyenne du faisceau émis est de 80 mW, correspondant à une puissance crête d'environ 4 kW. Cette puissance n'étant pas suffisante pour nos applications de génération de supercontinuum à travers une fibre optique, le faisceau est amplifié à la traversée d'un amplificateur multipassage. Le fonctionnement de cet amplificateur, reposant sur l'utilisation d'un cristal Nd:$YVO_4$ traversé quatre fois, est décrit dans les travaux de Druon et coll. en 1999 [202]. La puissance du signal de sortie dépend ainsi directement de l'intensité du courant de la diode pompant le cristal amplificateur. La Figure 3.5c montre l'évolution de la puissance émise en fonction de cette intensité. Il est possible d'atteindre des puissances moyennes jusqu'à 3 W (145 kW crête) pour un courant de diode de 25 A. La limitation intrinsèque de la puissance injectée, imposée par la géométrie de la fibre, ne rendra pas nécessaire d'atteindre de telles puissances. Pour autant, cette efficacité d'amplification nous assure de posséder une réserve de puissance suffisante pour générer à la fois le supercontinuum à travers une fibre optique et un signal de pompe pour la spectroscopie M-CARS.

La Figure 3.5c montre le profil spatial du faisceau émis après amplification. On remarque une structure monomode, légèrement déformée par l'amplification : le faisceau n'est pas parfaitement circulaire. Cette déformation peut affecter le rendement d'injection dans une fibre optique. Par ailleurs, le faisceau présente une polarisation circulaire que nous transformons en polarisation rectiligne au moyen d'une lame quart-d'onde placée en aval du laser.

### 3.2.2 Diode laser de pompe

L'ion ytterbium possède son plus fort pic d'absorption aux alentours de 976 nm. Nous choisissons donc une diode laser émettant à 980 nm en régime continu pour pomper le cœur dopé de la fibre FMAS-Yb. La sortie fibrée de la diode est soudée à un isolateur optique de manière à protéger la source. L'évolution de la puissance, en amont et en aval de l'isolateur, en fonction de l'intensité appliquée à la diode est présentée Figure 3.6a. L'isolateur fait perdre près de 25 %

de la puissance pour une intensité de 1070 mA (limite du contrôleur *Thorlabs CLD1015* de la diode), ce qui permet finalement de disposer d'une puissance maximale de 508 mW à 20 °C pour pomper la fibre amplificatrice. Il est à noter que la température de la diode influe peu sur le niveau de puissance émise, avec une diminution de puissance inférieure à 2 % pour une augmentation de 20 °C (Figure 3.6b).

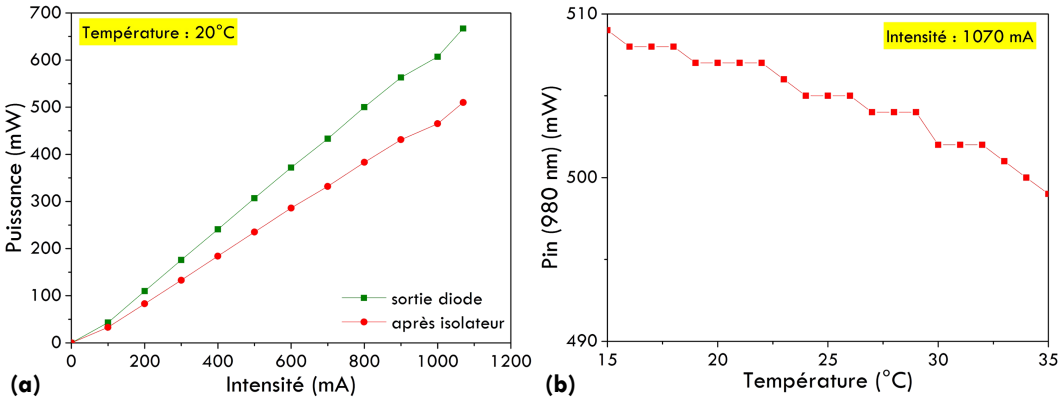



**Figure 3.6** – Caractéristiques de la diode de pompe à 980 nm : (a) évolution de la puissance en fonction de l'intensité (avant et après l'isolateur) ; (b) évolution de la puissance en fonction de la température.

### 3.2.3 Paramètres de la fibre microstructurée active

Dans le but d'obtenir l'émission d'un supercontinuum de forte densité spectrale de puissance en utilisant un pompage cœur des ions ytterbium, nous avons opté pour un diamètre de cœur relativement grand. Celui-ci doit être suffisamment large pour transporter la puissance nécessaire mais il doit aussi garder des dimensions assez petites pour posséder une dispersion chromatique proche du centre de la zone d'empreinte digitale (1160 nm – 1320 nm) lors d'une expérience M-CARS avec une onde de pompe à 1064 nm. Par conséquent, le choix des paramètres optogéométriques est crucial.

#### 3.2.3.1 Microstructure et taux de dopage

La fibre que nous avons dessinée et que nous nommerons dans la suite de ce manuscrit FMAS-Yb, est une fibre microstructurée à large cœur, fabriquée par PERFOS à partir d'une préforme réalisée par IXFIBER. Des photographies de la section transverse de cette fibre, réalisées au microscope électronique à balayage (MEB) sont présentées sur la Figure 3.7. Elle possède un cœur de 7,6 µm de diamètre, dopé à un taux de 0,7 % par la méthode MCVD décrite dans la section 3.1.1.2de ce chapitre. Ce dopage induit une absorption de 850 dB/km à 980 nm. La microstructure est quant à elle constituée d'un arrangement hexagonal de cinq rangées de trous d'air. L'ensemble des caractéristiques optogéométriques de la fibre sont indiquées dans le Tableau 3.2.

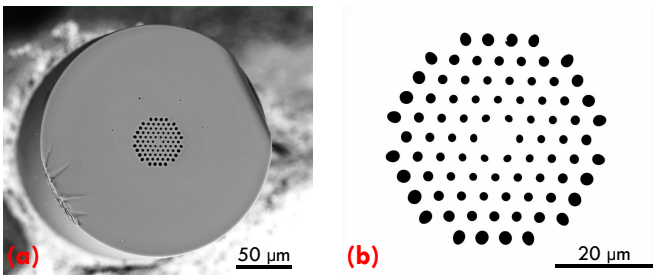



**Figure 3.7** – Photographies MEB : (a) de la section transverse de la fibre FMAS-Yb ; (b) de la partie centrale de cette fibre (cœur dopé et microstructure).

**Tableau 3.2** – Principaux paramètres de la fibre FMAS-Yb.

| Fibre FMAS-Yb | |
|---|---|
| Diamètre des trous de la microstructure **d** | 1,8 µm |
| Diamètre du cœur **a** | 7,6 µm |
| Pitch **Λ** | 4,6 µm |
| Rapport **d/Λ** | 0,39 |
| Diamètre externe de la microstructure | 42 µm |
| Diamètre de la fibre **b** | 200 µm |
| Taux de dopage Ytterbium du cœur | 0,7 % |

#### 3.2.3.2 Zéro de dispersion de la fibre

Le ZDW est un paramètre qui joue un rôle essentiel dans la génération de supercontinuum dans la mesure où sa position relative par rapport à la longueur d'onde de signal influera fortement sur la forme du spectre final. Les paramètres géométriques tels que le diamètre de cœur influent sur la dispersion du guide Dg tandis que le dopage de la silice du cœur de la fibre a un effet sur la dispersion du matériau Dm. Une étape de simulation basée sur la méthode des éléments finis [117] et nécessitant une photographie MEB du cœur de la fibre, permet de prendre en compte l'ensemble de ces paramètres pour finalement évaluer la dispersion chromatique et donc connaitre la longueur d'onde de dispersion nulle.

Le logiciel *COMSOL Multiphysics* permet ainsi de calculer l'indice effectif $n_e$ (tenant compte à la fois de la propagation du mode dans le guide et de l'indice du matériau déterminé par la relation de Sellmeier) du mode fondamental à toutes les longueurs d'onde. À partir de cet indice effectif, on déduit la dispersion chromatique sur la bande spectrale considérée à l'aide de la formule suivante :

$$D_C(\lambda) = -\frac{\lambda}{c}\frac{d^2 n_e}{d\lambda^2} \tag{3.1}$$

Ainsi, les simulations ont permis de montrer que le ZDW se situe à 1200 nm dans la fibre FMAS-Yb (courbe de dispersion chromatique en rouge sur la Figure 3.8). Celui-ci est parfaitement placé au centre de la zone d'empreinte digital, permettant ainsi d'envisager la formation d'un spectre plus ou moins symétriques autour du ZDW.

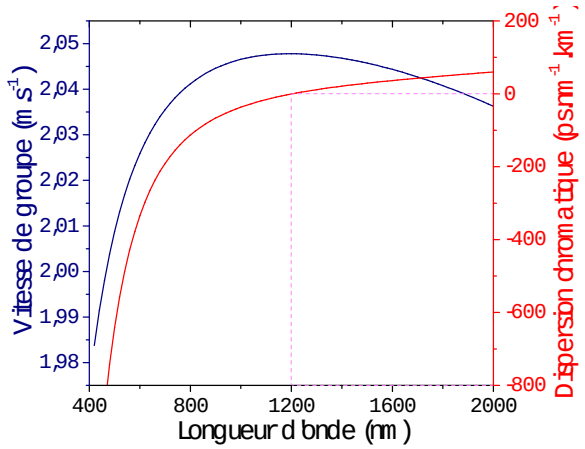



**Figure 3.8** – Vitesse de groupe et dispersion chromatique simulées du mode fondamental de la fibre FMAS-Yb.

La vitesse de groupe, également représentée (en bleu) sur la Figure 3.8, est déduite des simulations à l'aide de la formule suivante :

$$v_g(\lambda) = \frac{c}{\mathrm{n_e} - \lambda \dfrac{\mathrm{dn_e}}{\mathrm{d}\lambda}} \tag{3.2}$$

Le fait de placer le ZDW et donc le maximum de vitesse de groupe à 1200 nm, c'est-à-dire au milieu de la bande spectrale désirée, permet de minimiser la variation de vitesse de groupe sur cette bande et ainsi de favoriser la synchronisation de l'ensemble des composantes spectrales. On déduit de la courbe une différence maximale de vitesse de groupe de l'ordre de $3,9 \times 10^4$ m.s$^{-1}$ entre les composantes spectrales les plus rapides, au centre de la bande considérée (de 1160 nm à 1320 nm), et les composantes les plus lentes, au bord de la bande. Au total, la dispersion chromatique induit un retard maximal de l'ordre de 20 ps.m$^{-1}$ entre les composantes spectrales de la bande complète (1160 nm - 1600 nm). On considère que l'ensemble des composantes du supercontinuum pourront être synchronisées avec l'onde signal si le décalage temporel entre elles n'excède pas 25 % de la durée des impulsions. Dans la mesure où l'on utilise des impulsions $\Delta$t = 750 ps, il convient donc de fixer une longueur de fibre limite de 10 m pour éviter les problèmes de désynchronisation.

## 3.3 Génération de supercontinuum dans la fibre FMAS-Yb

Le montage expérimental est représenté sur la Figure 3.9. La polarisation circulaire du faisceau à 1064 nm émis est rendue rectiligne grâce au passage à la traversée d'une lame quart-d'onde.

Ce faisceau franchit un système de contrôle de puissance composé d'un cube séparateur de polarisation placé en aval d'une lame demi-onde. Le cube séparateur pourra être utilisé par la suite pour prélever une partie du signal en guise d'onde de pompe pour le système CARS. Une deuxième lame demi-onde, placée après le cube, est utilisée pour orienter la polarisation du faisceau. L'onde est ensuite injectée dans la première entrée d'un multiplexeur (MUX) monomode 980/1060 nm. La deuxième entrée permet d'injecter l'onde pompe à 980 nm en configuration copropagative.

La sortie du multiplexeur est soudée à la fibre sous test à l'aide d'une soudeuse *VYTRAN FFS-2000* à gradient de température. Il est indispensable d'utiliser un gradient de température plutôt qu'un arc électrique pour éviter l'effondrement de la microstructure de la fibre sous test. La sortie du multiplexeur (fibre optique OFS 980, diamètre de cœur a = 5 $\mu$m ; diamètre de gaine b = 125 $\mu$m) ayant une taille très différente de la fibre FMAS-Yb, il est très difficile de réaliser une bonne soudure, c'est-à-dire une soudure qui ne provoque pas de pertes excessives. Lorsque l'on soude deux tronçons de fibres de dimensions transverses équivalentes, les pertes n'excèdent pas 0,01 dB. Dans les faits, la soudure réalisée pour nos tests entraine des pertes supérieures à 4 dB.

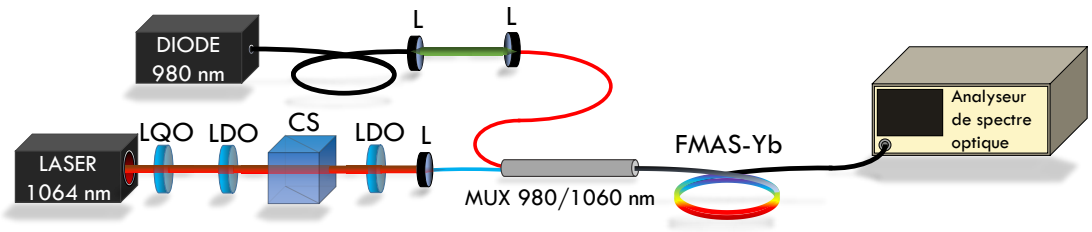



**Figure 3.9** – Représentation schématique du montage expérimental d'analyse spectrale en sortie de fibre FMAS-Yb excitée simultanément à 1064 nm et 980 nm (pompage co-propagatif). LQO : lame quart-d'onde ; LDO : lame demi-onde ; CS : cube séparateur ; L : lentille ; MUX : multiplexeur.

Le maintien de la puissance adressée sur la face d'entrée de la fibre en dessous du seuil de destruction et les pertes d'insertion à la soudure, limitent la puissance maximale de signal à 1064 nm réellement injectée dans la FMAS-Yb à 125 mW (6,1 kW crête) et celle de la pompe (CW) à 980 nm à 150 mW.

Le faisceau en sortie de la fibre FMAS-Yb est analysé spectralement à l'aide d'un analyseur de spectre optique (OSA) ANDO 6315A, capable de mesurer des spectres entre 350 nm et 1750 nm. Dans la suite de ce manuscrit, la résolution de l'OSA est de 0,05 nm (sauf indication contraire sur les résultats de mesures). Le faisceau en sortie de fibre peut également être adressé sur un mesureur de puissance OPHIR Nova ou sur une photodiode ultrarapide reliée à un oscilloscope LECROY WaveMaster 820 Zi (20 GHz) pour des mesures temporelles.

### 3.3.1 Formation du spectre large sans amplification

Sans amplification, la puissance crête véhiculée par l'onde signal en régime de dispersion normale subit, dans un premier temps, l'effet de l'automodulation de phase, ce qui augmente la largeur du spectre de quelques nanomètres. Très vite, l'effet Raman initie une conversion de fréquence

à 1118 nm et 1172 nm, correspondant aux première et seconde raies Stokes. La conversion à 1172 nm est alors très proche de la longueur d'onde de dispersion nulle ce qui permet l'apparition de mélanges paramétriques à quatre ondes de part et d'autre du ZDW, donnant lieu à une déplétion et un étalement de la raie initiale. Du côté de la dispersion anormale, l'instabilité de modulation favorise l'apparition de propagations solitoniques et un autodécalage vers les hautes longueurs d'onde grâce au gain Raman (de 1200 nm à 1300 nm). Un exemple de l'évolution du spectre est donné sur la Figure 3.10.

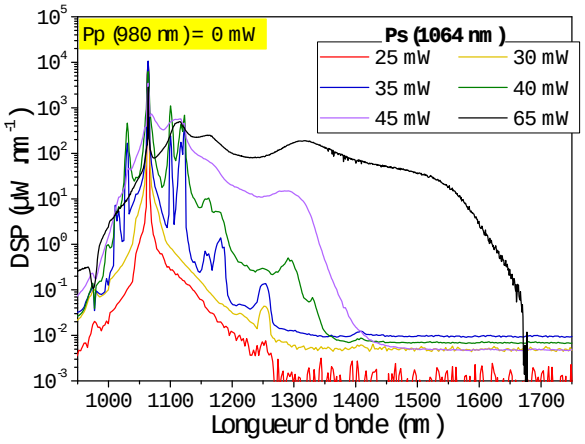



**Figure 3.10** – Spectres mesurés en sortie d'un tronçon de 4 m de fibre FMAS-Yb, dans lequel est injecté un signal à 1064 nm (puissance variable), sans pompage à 980 nm.

### 3.3.2 Impact de l'amplification sur l'élargissement spectral

Dans le but d'analyser l'impact de l'amplification sur l'élargissement spectral, j'ai utilisé un tronçon de 3 m de FMAS-Yb. La puissance de signal à 1064 nm injecté est de 75 mW tandis que la puissance de pompe à 980 nm varie entre 0 mW (pas d'amplification) et 150 mW (amplification maximale permise dans notre dispositif). Le résultat de l'étude est présenté en Figure 3.11.

Lorsque les ions $Yb^{3+}$ ne sont pas pompés, il n'y a pas d'amplification du signal à 1064 nm. Au contraire, une partie des photons signal est absorbée par ces ions, entrainant des pertes plus importantes. Dans ces conditions, on constate que le spectre du signal n'est élargi que jusqu'à 1300 nm. Lorsque l'on pompe les ions $Yb^{3+}$, le signal est régénéré tout au long de sa propagation dans la fibre ce qui permet de générer davantage d'effets non linéaires : la longueur d'interaction est plus importante. Il en résulte un spectre beaucoup plus élargi, jusqu'à plus de 1600 nm. La puissance de signal se répartit sur une plus grande bande spectrale et l'amplification entraine une amélioration de la platitude du spectre, notamment après le premier pic Raman à 1118 nm (écart maximal de 5 dB sur la bande 1150 nm – 1600 nm). La densité spectrale moyenne de puissance est aussi augmentée grâce à l'amplification, essentiellement pour les plus grandes longueurs d'onde (jusqu'à 15,5 dB aux plus hautes longueurs d'onde).

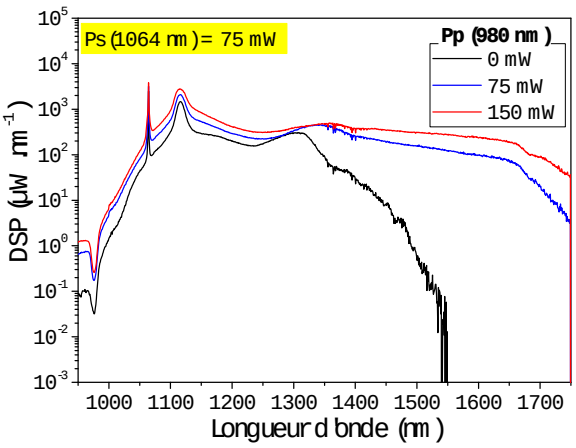



**Figure 3.11** – Spectres mesurés en sortie d'un tronçon de 3 m de fibre FMAS-Yb, dans lequel sont injectés un signal à 1064 nm (75 mW) et une pompe à 980 nm (puissance variable).

L'action simultanée des non-linéarités pour l'élargissement et de l'amplification permet d'augmenter à la fois la DSP et la largeur spectrale. Il faut cependant noter que les non-linéarités dépendent fortement du milieu, en l'occurrence de la fibre FMAS-Yb. La présence des ions ytterbium et de leurs codopants modifie la structure de ce milieu, ce qui entraine une modification de son comportement linéaire (augmentation d'indice et décalage de la dispersion). De plus, l'excitation des ions ytterbium par le pompage à 980 nm engendre des transferts d'énergie et une modification du nuage électronique (changement de niveau d'énergie des électrons). Ceux-ci pourraient éventuellement influencer voire perturber les effets non-linéaires responsables de l'élargissement.

Pour le savoir, il convient de dissocier les effets du pompage des ions $Yb^{3+}$ de ceux de l'amplification. Cette dissociation est impossible à réaliser avec le signal actuel puisque le pompage engendre l'amplification à 1064 nm, qui influe inévitablement sur l'élargissement par l'augmentation de la puissance du signal. Un moyen d'y arriver est donc de remplacer le signal à 1064 nm par un signal à une longueur d'onde située en dehors de la bande d'émission des ions ytterbium ($\lambda_2$). Ainsi, le nouveau signal générera des effets non-linéaires dans le cœur de la fibre, dont les ions de terre rare pourront être pompés (= excités) ou non sans que cela ait d'effet sur la puissance de ce signal (Figure 3.12). Les éventuelles modifications du spectre avec et sans pompage des ions $Yb^{3+}$ devront donc être imputées uniquement à l'état d'excitation de ces derniers. Il faut noter que cela suppose de considérer comme négligeables les interactions entre le signal à $\lambda_2$ et le signal autour de 1064 nm qui sera émis spontanément par les ions $Yb^{3+}$ lorsqu'ils seront pompés à 980 nm. Cette hypothèse peut être faite avec raison puisque ces deux signaux se propagent à des vitesses différentes et aucun accord de phase n'est possible entre eux pour la génération d'onde dans notre zone de test.

Pour cette étude, le laser à 1064 nm est remplacé par une source laser à blocage de mode émettant des impulsions à $\lambda_2 = 1546$ nm (20 MHz, 3 ps, 150 mW). En conséquence, le multiplexeur initial est remplacé par un multiplexeur monomode 980/1550 nm.

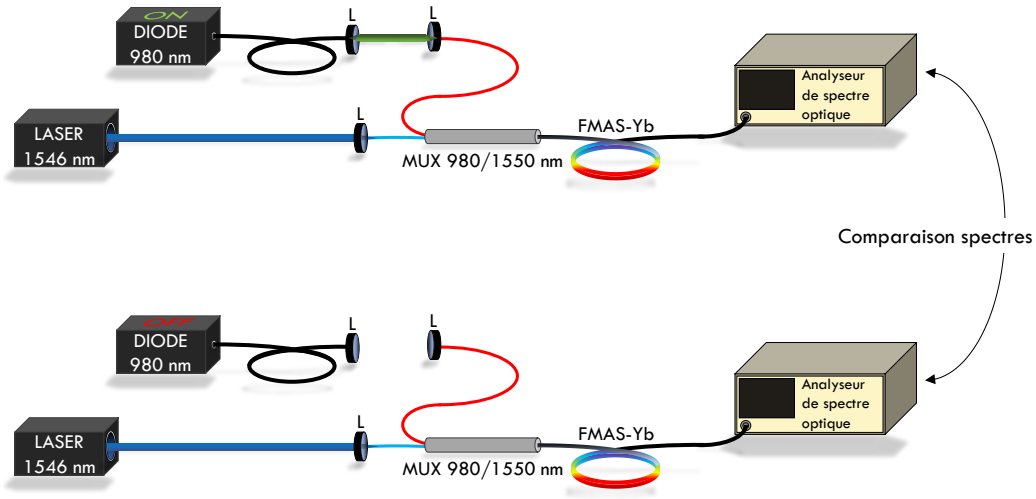



**Figure 3.12** – Représentation schématique du principe de la vérification qualitative de l'impact du pompage des ions $Yb^{3+}$ sur la non-linéarité engendrée dans la fibre : excitation de la fibre FMAS-Yb par un signal à 1546 nm (en dehors de la bande d'amplification) et par une pompe à 980 nm (pompage copropagatif). L : lentille ; MUX : multiplexeur.

Les spectres obtenus pour des puissances de pompe variant entre 0 mW et 300 mW (Figure 3.13) montrent que la forme globale du spectre n'est pas fortement modifiée par le pompage. Les effets de SPM que l'on remarque autour de 1546 nm sont très similaires de 0 dB à –15 dB. Une observation plus précise montre cependant des variations sur les parties basses du spectre, notamment à 1530 nm et 1560 nm, puis à 1518 nm et 1574 nm pour les niveaux en-dessous de –20 dB, qui peuvent être attribuées à une légère augmentation de la non-linéarité.

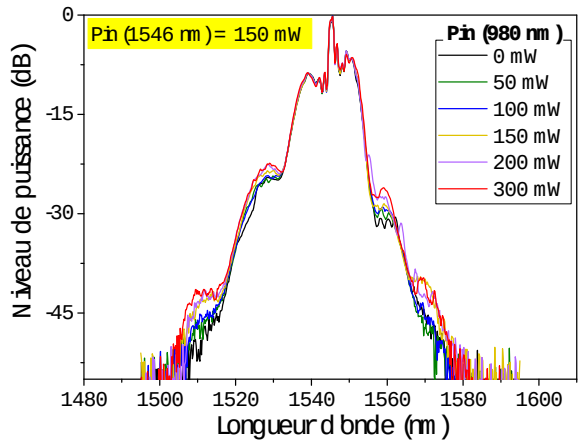



**Figure 3.13** – Spectres mesurés en sortie d'un tronçon de 3 m de fibre FMAS-Yb, dans lequel sont injectés un signal à 1546 nm (P = 150 mW) et une pompe à 980 nm de puissance variable.

### 3.3.3 Étude spectral

Les spectres présentés en Figure 3.11 montrent que le pompage des ions à 150 mW permet une amplification du signal qui se traduit par une amélioration sensible de l'élargissement spectral. L'ensemble des mesures à venir est donc réalisé en maintenant le pompage à ce niveau de puissance maximal.

Pour améliorer le spectre, notamment en termes de platitude, nous savons que les paramètres de puissance de signal et de longueur de fibre sont primordiaux. Nous optons donc pour le test d'un tronçon de 10 m de fibre (longueur maximale que nous nous sommes fixés dans la section 3.2.3.2) et nous faisons varier la puissance de signal à 1064 nm entre 5 mW et 125 mW. Les spectres correspondants sont présentés en Figure 3.14a.

Au-delà de 30 mW, la puissance de signal injectée ne modifie plus la forme du spectre. L'augmentation de la puissance permet au-delà de ce niveau une augmentation de la DSP de l'ordre de 0,1 mW.nm$^{-1}$, jusqu'à atteindre une valeur moyenne de 0,3 mW.nm$^{-1}$.

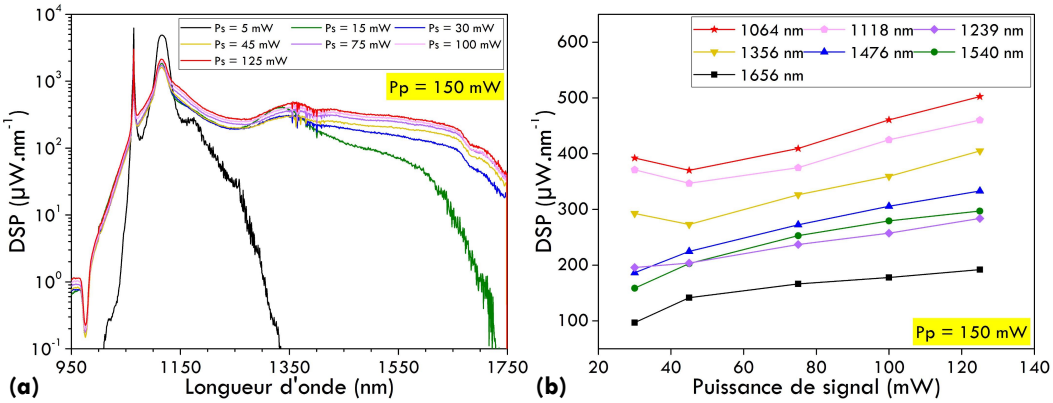



**Figure 3.14** – Spectres mesurés en sortie d'un tronçon de 10 m de fibre FMAS-Yb, pompé par un signal à 1064 nm (puissance variable) et une pompe à 980 nm (150 mW) ; (b) Evolution de la densité spectrale de puissance à différentes longueurs d'onde du spectres mesuré en sortie d'un tronçon de 10 m de fibre FMAS-Yb pompé à 980 nm (150 mW) en fonction de la puissance de signal injectée. Pour le confort des lecteur·rice·s, les valeurs des densités de puissance à 1064 nm et 1118 nm ont respectivement été divisées par un facteur 12 et 5 sur le graphique.

La Figure 3.14b représente l'évolution de la DSP prise à quelques longueurs d'onde du spectre en fonction de la puissance de signal injecté. Elle met en évidence l'augmentation quasi-identique de la DSP sur l'ensemble du spectre quand la puissance du signal injecté augmente.

Dans l'optique de la mise en œuvre d'un système M-CARS, nous savons que l'onde Stokes large-bande doit être synchronisée avec l'onde pompe à l'aide d'une ligne à retard placée sur le chemin de cette dernière. Avec une fibre FMAS-Yb de 10 m, la ligne à retard en espace libre doit approximativement mesurer 14,5 m, ce qui est considérable et difficile à mettre en œuvre. Il est donc nécessaire de réduire au maximum la longueur de fibre FMAS-Yb pour pouvoir utiliser une ligne à retard plus courte. Nous comparons pour cela les spectres obtenus en pompant à 1064 nm (Ps = 125 mW) et 980 nm (Pp = 150 mW) des tronçons de 3 m, 4 m, 7 m et 10 m de

fibre FMAS-Yb. Les courbes sont reportées en Figure 3.15.

Ces mesures montrent qu'il est nécessaire d'utiliser un tronçon de fibre de longueur supérieure à 3 m pour améliorer l'élargissement vers les plus grandes longueurs d'onde. Entre 4 m et 10 m, l'élargissement obtenu est tout à fait similaire, avec une DSP supérieure à 0,18 mW.nm$^{-1}$ sur l'ensemble de la bande 1160 nm – 1600 nm. Concernant la forme du spectre, on note qu'il persiste un creux entre le premier pic Raman à 1118 nm et un pic aux alentours de 1400 nm. Celui-ci peut être expliqué par sa position qui et loin du ZDW ce qui ne permet pas d'induire de mélanges paramétriques importants dans cette zone et par la présence du pic Raman à 1118 nm qui crée un contraste de niveau important. Il se trouve que le minimum de DSP est positionné à 1245 nm, c'est-à-dire juste après le ZDW. Ce creux peut donc en partie s'expliquer par le fait que seuls l'automodulation de phase et les effets solitoniques permettent l'alimentation de cette zone spectrale.

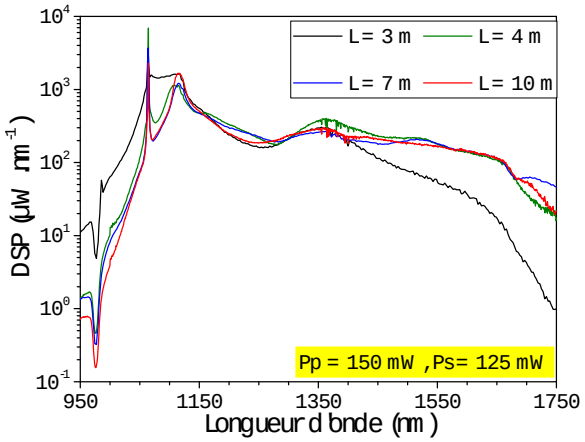



**Figure 3.15** – Spectres mesurés en sortie de tronçons de fibre FMAS-Yb de longueurs variables, dans lesquelles sont injectés un signal à 1064 nm (Ps = 125 mW) et une pompe à 980 nm (Pp = 150 mW).

La fibre FMAS-Yb de 4 m semblant permettre de réduire la profondeur de ce creux, je choisis pour la suite de travailler avec cette longueur de fibre, en conservant les puissances de pompe et signal maximales que nous avons préalablement déterminées (Ps = 225 mW, Pp = 150 mW). Il est important de noter que lors de la génération d'une cascade de raies Raman, la puissance de l'onde incidente ne joue pas le même rôle que la longueur de fibre. Dans ces conditions, le raccourcissement de la fibre peut fortement modifier le profil spectral en sortie. Cette évolution particulière sera expliquée en détail dans le Chapitre 4.

Tous les spectres mesurés présentent une diminution de leur DSP pour les plus hautes longueurs d'onde, notamment à partir de 1550 nm. Pour tenter d'éviter cette diminution, j'ai remplacé la fibre FMAS-Yb par une fibre microstructurée codopée Erbium–Ytterbium (appelée dans la suite du document « FMAS-ErYb »), fabriquée par PERFOS. Dans cette situation de codopage, les ions $Yb^{3+}$ permettent d'améliorer l'efficacité de l'erbium (Figure 3.16) [203]. Dans ces conditions de codopage Erbium–Ytterbium, une partie de l'énergie de la pompe absorbée par l'ytterbium est transmise vers l'erbium pour obtenir une amplification supplémentaire autour de 1550 nm,

tout en conservant celle vers 1080 nm.

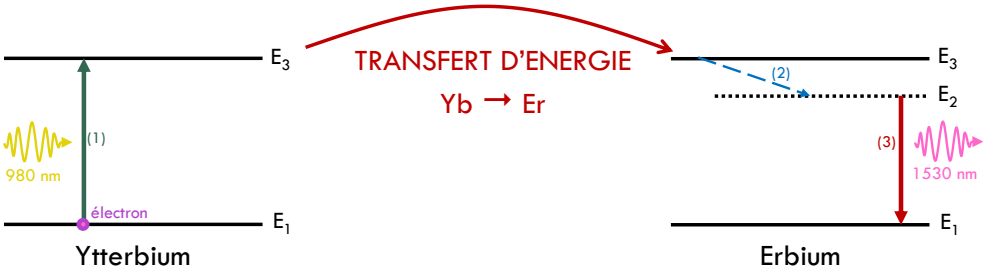



**Figure 3.16** – Représentation énergétique du codopage Erbium–Ytterbium. Le photon de pompe à 980 nm est absorbé par l'ytterbium (1). L'énergie est transférée vers l'ion erbium où l'énergie est perdue par transition non-radiative (2) puis par émission d'un photon à 1530 nm (3).

Les caractéristiques principales de la fibre FMAS-ErYb sont données dans le Tableau 3.3. Une photographie de sa section transverse, prise au MEB, est présentée sur les Figures 3.17a et 3.17b tandis que les spectres mesurés en sortie d'un tronçon de 4 m sont reportés en Figure 3.17c. Les puissances injectées dans la fibre sont encore une fois limitées par la soudure (pertes de l'ordre de 5 dB) réalisée entre le MUX et la fibre : la puissance de signal injecté est de 75 mW et la puissance de pompe varie entre 0 mW et 100 mW.

**Tableau 3.3** – Paramètres principaux de la fibre FMAS-ErYb.

| Fibre FMAS-ErYb | |
|---|---|
| Diamètre des trous de la microstructure d | 1,6 µm |
| Diamètre du cœur a | 6,8 µm |
| Pitch Λ | 4,4 µm |
| Rapport d/Λ | 0,4 |
| Diamètre externe de la microstructure | 40 µm |
| Diamètre de la fibre b | 200 µm |
| Taux de dopage Erbium et Ytterbium du cœur | non fourni par le fabricant |

La présence de l'erbium permet effectivement d'augmenter la DSP aux grandes longueurs d'onde, et notamment après un pic important autour de 1530 nm. Notons d'ailleurs que l'erbium est actif alors même que la diode de pompe à 980 nm est éteinte, comme le montre la présence du double pic à 1535 nm et 1545 nm sur la courbe noire de la Figure 3.17c. L'émission à ces deux longueurs d'onde est possible grâce à la puissance apportée par l'onde signal à 1064 nm qui s'élargit par effet non linéaire et couvre alors une part de la zone d'absorption de l'ion ytterbium.

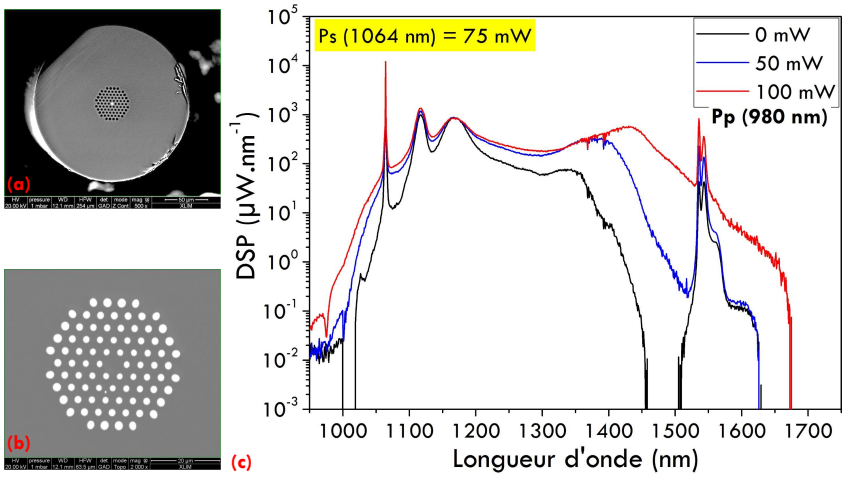



**Figure 3.17** – Photographies MEB (a) de la section transverse de la fibre FMAS-ErYb et (b) de la partie centrale de cette fibre (cœur dopé et microstructure) ; (c) Spectres mesurés en sortie d'un tronçon de 4 m de fibre FMAS-ErYb (puissance de signal : 75 mW, puissance de pompe variable).

Cependant, cette amélioration est obtenue au détriment de la platitude dans la mesure où le pompage à 980 nm sert davantage à amplifier le signal à 1530vnm que le signal à 1064 nm. Par conséquent, le spectre présente un creux important entre 1200 nm et 1400 nm. Qui plus est, bien que cela puisse être compensé en injectant davantage de puissance de signal dans la fibre, les pics Raman à 1118 nm et 1172 nm sont très marqués. La fibre FMAS-Yb semble donc mieux répondre à notre cahier des charges que la fibre FMAS-ErYb, que ce soit en termes de platitude et de DSP.

Dans la troisième section de cette partie, nous allons nous intéresser à la synchronisation des composantes spectrales du supercontinuum généré dans la fibre FMAS-Yb. Après avoir décrit le montage optique nécessaire à une analyse spectrotemporelle, je présenterai les principaux résultats.

### 3.3.4 Synchronisation des composantes spectrales du supercontinuum

Un montage spectrotemporel a pour objectif de mesurer le retard de chaque composante spectrale par rapport à une référence. Le montage que j'ai utilisé est décrit schématiquement sur la Figure 3.18. La première partie du montage consiste en un dispositif permettant d'injecter à la fois l'onde de pompe à 980 nm et l'onde signal à 1064 nm dans la fibre optique FMAS-Yb, de manière à générer un supercontinuum, comme nous l'avons vu sur la Figure 3.11. Un cube séparateur de polarisation placé sur le chemin de l'onde signal nous permet de prélever une partie de ce signal pour l'adresser sur une photodiode Thorlabs InGaAs (pour les mesures IR), reliée à un oscilloscope LECROY WaveMaster 820 Zi. Ce signal servira de référence temporelle, pilotant le déclenchement de l'oscilloscope. Toutes les mesures de retard temporel d'autres signaux adressés sur l'oscilloscope seront donc effectuées par rapport à cette référence.

Le supercontinuum généré en sortie de la fibre FMAS-Yb est adressé sur un réseau de diffraction (830 traits/mm) de manière à séparer spatialement ses composantes spectrales. Une fente

étroite placée dans le champ diffracté par ce réseau orientable sélectionne une petite bande spectrale du continuum. Le faisceau transmis à travers la fente est divisé en deux parties, l'une envoyée vers l'analyseur de spectre ANDO AQ6315A pour mesurer son spectre (longueur d'onde centrale, largeur de bande) et l'autre vers une deuxième photodiode reliée à l'oscilloscope. Cette deuxième photodiode est soit une photodiode ultrarapide InGaAs EOT ET-3500 de chez *Electro-Optics Technology* pour des mesures dans l'infrarouge ou soit une photodiode ultrarapide GaAs EOT ET-4000 du même fabriquant pour des mesures aux longueurs d'onde visibles. Les impulsions mesurées par cette deuxième photodiode sont enregistrées par l'oscilloscope et les données sont ensuite traitées de manière à obtenir des figures spectrotemporelles similaires à celles présentées en Figure 3.19a.

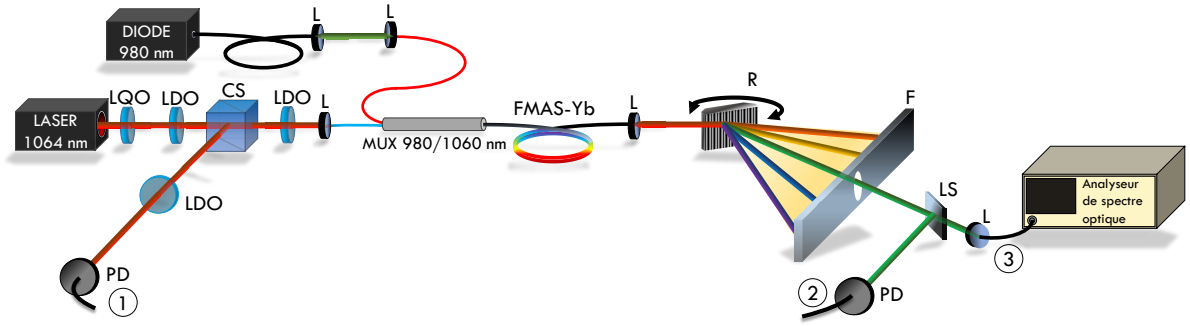



**Figure 3.18** – Représentation schématique du montage expérimental de mesures spectrotemporelles. LQO : lame quart-d'onde ; LDO : lame demi-onde ; CS : cube séparateur ; L : lentille ; R : réseau ; F : fente ; MUX : multiplexeur ; LS : lame séparatrice ; PD : photodiode. Réalisation de trois mesures simultanées : (1) Déclenchement de l'oscilloscope par la mesure d'une impulsion initiale ; (2) Mesure temporelle d'une impulsion à la longueur d'onde sélectionnée par le système Réseau-Fente ; (3) Identification de la longueur d'onde sélectionnée.

La Figure 3.19a représente la figure spectrotemporelle d'un supercontinuum mesuré en sortie d'un tronçon de 4 m de fibre FMAS-Yb (Pp = 150 mW, Ps = 125 W). Quelques impulsions mesurées à des longueurs d'onde comprises entre 1064 nm et 1610 nm sont directement représentées en Figure 3.19b pour le confort des lecteur·rice·s.

On peut déjà constater que la répartition d'énergie est homogène sur l'ensemble du spectre entre 1100 nm et 1600 nm. Seule une déplétion importante est visible sur l'onde de pompe qui est alors divisée en deux sous impulsions. Au-delà de 1130 nm, des effets de FWM près du ZDW et les effets solitoniques obtenus en régime de dispersion anormale permettent une distribution équilibrée de l'énergie tout au long du spectre. Ces mesures montrent également que le décalage temporel entre les différentes composantes spectrales reste inférieur à 60 ps (plage 1160 nm – 1600 nm) dans une fibre de 4 m de long (Figure 3.19c), c'est-à-dire beaucoup plus petit que la durée de l'impulsion du signal (750 ps). Dans ce cas, la synchronisation de la pompe CARS, dont la durée est représentée entre les pointillés sur la Figure 3.19a, avec toutes les composantes de l'onde Stokes large-bande est obtenue parfaitement.

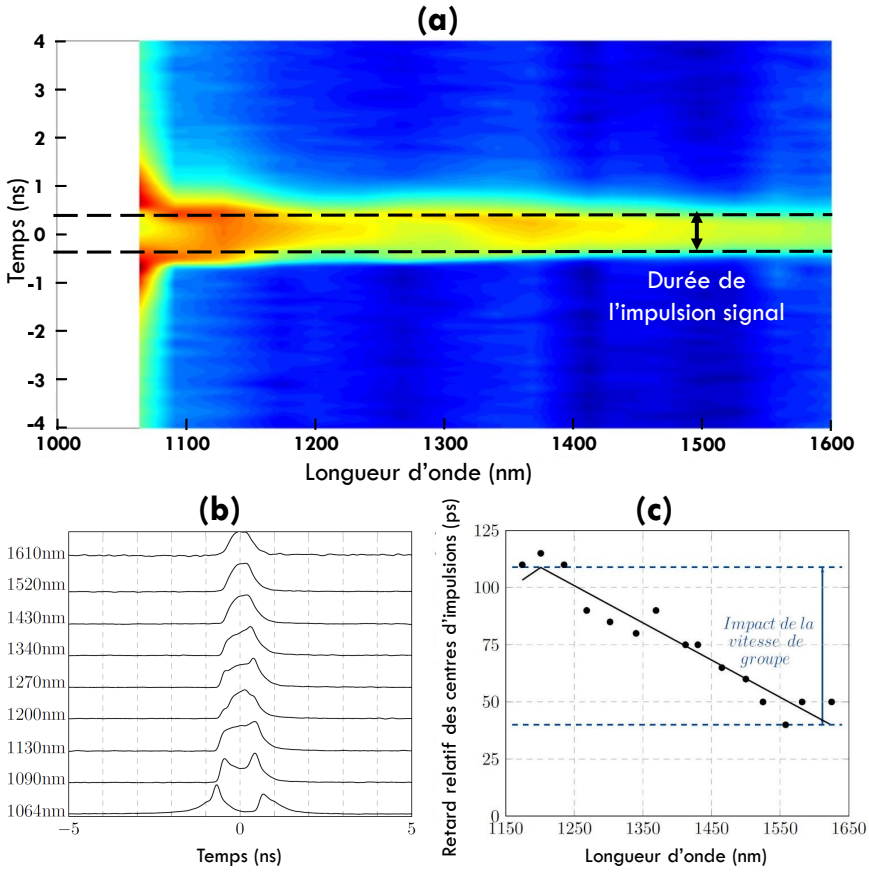



**Figure 3.19** – Mesures spectrotemporelles du continuum généré par un tronçon de 4 m de fibre FMAS-Yb (signal 125 mW, pompe 150 mW) : (a) synchronisation des composantes du spectre avec l'impulsion signal ; (b) impulsions prises à différentes longueurs d'onde ; (c) retard relatif des impulsions dû à la dispersion chromatique.

## 3.4 Conclusion sur la mise au point d'une source de supercontinuum basée sur l'emploi d'une fibre optique microstructurée amplificatrice pour la spectroscopie M-CARS

Nous avons démontré dans ce chapitre la possibilité d'utiliser une FMAS à gros cœur dopé à l'ytterbium pour la génération de supercontinuum entre 1064 nm et 1600 nm. La FMAS a été conçue pour minimiser la dépendance spectrale de la vitesse du groupe sur cette gamme de longueurs d'onde. Dans le même temps, l'amplification de l'onde signal à 1064 nm a permis d'augmenter la DSP du spectre du continuum émergent (de 0,03 mW.nm-1 à 0,21 mW.nm-1 sur la gamme 1064 nm – 1650 nm). Il en résulte un spectre aplati avec une forte densité de puissance, ce qui est une caractéristique très intéressante pour la spectroscopie M-CARS. En revanche, l'utilisation d'un codopage erbium-ytterbium permettant une double amplification vers 1100 nm et 1550 nm ne conduit pas à améliorer significativement les caractéristiques de platitude et de DSP du supercontinuum.

Les mesures spectrotemporelles montrent que le décalage temporel entre les différentes composantes spectrales reste inférieur à 60 ps, à la sortie d'une fibre de 4 m, c'est-à-dire qu'il est beaucoup plus court que la durée des impulsions utilisées pour fournir à la fois l'onde de signal injectée dans la fibre et la pompe du processus CARS (750 ps). Ainsi, toutes les composantes spectrales de cette source à large bande peuvent être synchronisées avec la pompe, comme cela est requis dans les systèmes de spectroscopie M-CARS (sub)nanosecondes. La source ainsi créée respecte la plupart des paramètres nécessaires à une utilisation dans un système de spectroscopie M-CARS.

**Tableau 3.4** – Comparaison des caractéristiques de la source basée sur l'utilisation de la FMAS-Yb et des paramètres fixés dans le cahier des charges.

| **Paramètres** | **Cahier des charges** | **Caractéristiques de la source basée sur l'utilisation de la fibre FMAS-Yb** | **Respect du cahier des charges** |
|---|---|---|---|
| **Longueur de fibre** | < 10 m | 4 m | |
| **Bande spectrale exploitable du supercontinuum** | 1160 nm – 1600 nm | 1064 nm – 1650 nm | |
| **DSP dans le supercontinuum** | > 0,03 $mW.nm^{-1}$ | 0,21 $mW.nm^{-1}$ | |
| **Platitude du spectre dans la bande spectrale exploitable** | < 5 dB | 5,197 dB | |
| **Décalage temporel maximal des composantes spectrales en sortie de fibre** | < 200 ps | 60 ps | |

Les performances de notre source sont comparées au cahier des charges dans le Tableau 3.4. Le paramètre de la platitude n'est pas tout à fait respecté. On peut toutefois nuancer ce constat du fait que la puissance injectée dans la fibre optique reste relativement faible. En effet, tout comme la DSP, la platitude pourrait être sensiblement améliorée en résolvant le point technologique de la soudure réalisée entre le multiplexeur et la fibre FMAS-Yb, qui limite pour le moment les puissances de signal et de pompe injectées.

Cette étude a permis d'évaluer les performances que l'on peut atteindre avec des fibres microstructurées dopée ytterbium et erbium-ytterbium à pompage cœur. Le système d'excitation de la fibre est plus simple que les systèmes proposés pour exciter des fibres à double gaine, et permet d'obtenir de meilleures performances, alors même que les conditions d'injection ne sont pas optimales.

# Chapitre 4

# Elargissement spectral dans les fibres standards par diffusion Raman stimulée


Introduction ..... 130
4.1 Effet Raman cascadé ..... 130
4.1.1 Principe de la diffusion Raman stimulée ..... 130
4.1.2 Effet de cascade Raman ..... 132
4.2 Génération de supercontinuum par cascade Raman dans une fibre optique monomode passive conventionnelle ..... 134
4.2.1 Montage expérimental ..... 134
4.2.2 Étude spectrale du supercontinuum généré dans la fibre SMF-Ge ..... 136
4.2.3 Étude spectrotemporelle du supercontinuum généré dans la fibre SMF-Ge 139
4.2.4 Conclusion sur l'utilisation de la fibre SMF-Ge pour l'élargissement spectral ..... 141
4.3 Génération de supercontinuum par cascade Raman dans une fibre optique multimode passive conventionnelle ..... 144
4.3.1 Nettoyage spatial par effet Kerr ..... 144
4.3.2 Montage expérimental ..... 146
4.3.3 Étude spectrale du supercontinuum généré dans la fibre MMF-Ge ..... 147
4.3.4 Étude spatiale du supercontinuum généré dans la fibre MMF-Ge ..... 149
4.3.5 Étude spectrotemporelle du supercontinuum généré dans la fibre MMF-Ge ..... 150
4.3.6 Étude temporelle du rayonnement de sortie à 1064 nm ..... 152
4.3.7 Conclusion sur l'utilisation de la fibre MMF-Ge pour l'élargissement spectral ..... 154

# Introduction

Depuis l'avènement des fibres optiques microstructurées à la fin des années 1990, il est apparu évident pour tous les spécialistes de l'élargissement spectral que ces fibres étaient les plus pertinentes pour générer un supercontinuum. Cependant, pendant très longtemps, ce sont des fibres conventionnelles qui ont été utilisées, comme je l'ai évoqué dans la section 2.4.1.2.1 du Chapitre 2.

Les fibres conventionnelles offrent moins de possibilités dans la gestion du ZDW puisque les modifications géométriques qu'elles peuvent subir sont très limitées. L'augmentation de la taille du cœur de la fibre aurait pour effet principal de permettre le guidage de plusieurs modes et par conséquent, de générer un speckle en sortie de fibre. Le ZDW en revanche resterait proche de la longueur d'onde de dispersion nulle fixée par le matériau (dans le cas de la silice pure, autour de 1280 nm).

Nous avons vu que la seule possibilité de modification du ZDW dans les fibres optiques conventionnelles était de modifier la nature ou la concentration du dopage de la fibre, et toujours dans le sens d'un décalage vers les plus hautes longueurs d'onde. En conséquence, l'utilisation de ces fibres a toujours été rejetée lorsque l'objectif était de générer un continuum à partir d'un signal à 1064 nm et cela à cause de la dispersion chromatique. Comme je l'ai expliqué dans la section 2.3.5 du Chapitre 2, dans ce régime, l'effet prépondérant dans l'élargissement spectral est la diffusion Raman stimulée (SRS), qui entraine la création d'un spectre discret en fonction du gain Raman du matériau, en l'occurrence de la silice.

Bien que cette situation ait rarement été mise en œuvre, j'ai souhaité revenir à l'utilisation de ces fibres conventionnelles en essayant de les pomper à forte puissance. À l'aide d'une fibre monomode conventionnelle fortement dopée, j'ai pu utiliser le phénomène de saturation du gain Raman, grâce auquel il est possible de générer un spectre plat à forte DSP sur une large bande en régime de dispersion normale. Pour cela, je me place dans le cadre d'une excitation à 1064 nm avec des impulsions subnanosecondes.

Après avoir brièvement décrit le phénomène de diffusion Raman en cascade, je présenterai, dans ce chapitre, l'ensemble de mes travaux sur la génération de supercontinuum en régime de dispersion normale à travers une fibre monomode non microstructurée. La dernière partie du chapitre sera consacrée à la mise à profit de ce phénomène dans une fibre multimode à gradient d'indice.

## 4.1 Effet Raman cascadé

### 4.1.1 Principe de la diffusion Raman stimulée

Comme cela a été évoqué dans la section 2.3.3 du Chapitre 2, la diffusion Raman qui se traduit, au-delà d'un certain seuil de puissance (seuil Raman), par l'excitation de vibrations moléculaires

dans le milieu traversé par la lumière et par la création de fréquences plus basses, se manifeste en particulier dans les fibres optiques. Les fréquences engendrées $\nu_R$ sont décalées, dans ces fibres en silice dopée, d'environ 13,2 THz par rapport à l'onde qui les génère (appelée « onde de pompe principale », de fréquence $\nu_P$). Pour les fréquences mises en jeu, on peut établir une courbe de gain Raman dont la forme, représentée sur la Figure 4.1, est directement issue du profil de la partie imaginaire du $\chi^{(3)}$ du matériau, à l'origine de la diffusion Raman (voir Figure du Chapitre 2). Le gain Raman dépend alors de divers paramètres tels que la densité moléculaire, le coefficient d'absorption, la fréquence optique et l'indice de réfraction [204]. De nombreuses études ont montré que le coefficient de gain Raman est inversement proportionnel à la longueur d'onde [205, 206, 207] et à l'aire effective du mode guidé [208], et qu'il dépend de la composition du matériau [209]. Sa représentation en fonction du décalage fréquentiel $\nu_P - \nu_R$ comprend un pic positif (côté Stokes) et un pic négatif (atténuation côté anti-Stokes).

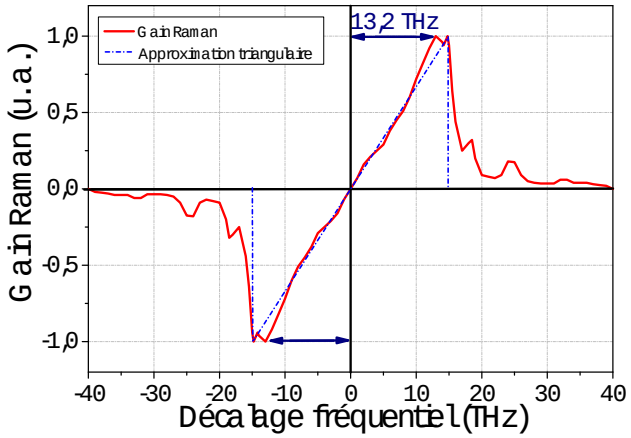



**Figure 4.1** – Gain Raman de la silice et son approximation triangulaire (d'après [210]).

L'évolution longitudinale de la puissance de pompe principale dépend à la fois de l'absorption de la fibre à la fréquence de cette pompe principale et du gain Raman, selon la relation [211] :

$$\frac{\mathrm{dP_{S_0}}}{\mathrm{d}z} = -\alpha_{S_0}\mathrm{P_{S_0}} - \frac{g_{R,S_0}}{\mathrm{A_{eff_{S_0}}}}\frac{\omega_{S_0}}{\omega_{S_1}}\mathrm{P_{S_0}P_{S_1}} \tag{4.1}$$

où $\mathrm{P_{S_0}}$ et $\mathrm{P_{S_0}}$ sont respectivement les puissances à la fréquence de pompe principale $\omega_{S_0}$ et à la fréquence Stokes $\omega_{S_1}$, et où $\alpha_{S_0}$ et $g_{R,S_0}$ sont respectivement l'absorption et le gain Raman à la fréquence de pompe principale.

Une description plus détaillée de la diffusion Raman peut être trouvée dans la Référence [212].

Dans le cas d'un effet Raman stimulé, le transfert de puissance de la pompe principale vers l'onde Stokes peut engendrer une déplétion importante et localisée de l'onde dans le domaine temporel. Du fait de la présence d'un seuil de déplétion, c'est l'énergie du centre de l'impulsion (partie la plus intense) qui subit le plus de conversion. La Figure 4.2 montre l'évolution de l'allure temporelle de l'impulsion mesurée en sortie de la fibre présentée dans la section 4.2.1.2

de ce chapitre, mesurée à 1064 nm, lorsque la puissance de pompe principale est augmentée. On observe bien qu'à plus forte puissance moyenne injectée (118 mW, soit 5,7 kW), le centre de l'impulsion à 1064 nm est totalement déplété. Une restructuration temporelle sévère de l'onde de pompe est alors obtenue.

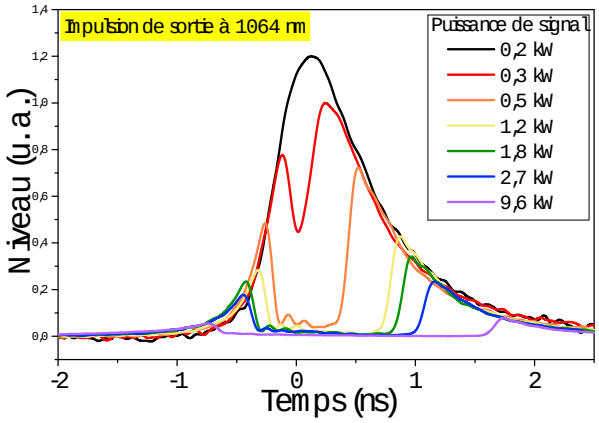



**Figure 4.2** – Évolution du profil de l'impulsion à 1064 nm en fonction de la puissance de pompe crête couplée dans la fibre SMF-Ge (décrite dans la section 4.2.1.2) et issue du microlaser présenté en section 3.2.1 du Chapitre 3. Le niveau de puissance de chaque impulsion a été artificiellement adapté par rapport à l'impulsion initiale pour une meilleure compréhension.

### 4.1.2 Effet de cascade Raman

Lorsque la pompe principale a transféré suffisamment de son énergie vers le premier pic Raman $S_1$ dans la fibre, celui-ci devient assez puissant pour déclencher à son tour un transfert d'énergie vers un deuxième pic $S_2$, décalé du même écart Raman par rapport à lui (13,2 THz dans la silice). Le phénomène se répète ainsi tant que le pic $S_{i-1}$ est suffisamment puissant pour engendrer le pic $S_i$. C'est cette cascade qui donne leur forme spécifique aux spectres générés en régime de dispersion normale présentés dans le Chapitre 2 et composés de raies discrètes. L'évolution des puissances des premiers pics est régie par les relations suivantes [213] :

$$\frac{\mathrm{dP_{S_1}}}{\mathrm{d}z} = -\alpha_{S_1}\mathrm{P_{S_1}} + \frac{g_{R,S_0}}{\mathrm{A_{eff_{S_0}}}}\frac{\omega_{S_0}}{\omega_{S_1}}\mathrm{P_{S_0}P_{S_1}} - \frac{g_{R,S_1}}{\mathrm{A_{eff_{S_1}}}}\frac{\omega_{S_1}}{\omega_{S_2}}\mathrm{P_{S_1}P_{S_2}} \tag{4.2}$$

$$\frac{\mathrm{dP_{S_2}}}{\mathrm{d}z} = -\alpha_{S_2}\mathrm{P_{S_2}} + \frac{g_{R,S_1}}{\mathrm{A_{eff_{S_1}}}}\frac{\omega_{S_1}}{\omega_{S_2}}\mathrm{P_{S_1}P_{S_2}} - \frac{g_{R,S_2}}{\mathrm{A_{eff_{S_2}}}}\frac{\omega_{S_2}}{\omega_{S_3}}\mathrm{P_{S_2}P_{S_3}} \tag{4.3}$$

$$\frac{\mathrm{dP_{S_3}}}{\mathrm{d}z} = -\alpha_{S_3}\mathrm{P_{S_3}} + \frac{g_{R,S_2}}{\mathrm{A_{eff_{S_2}}}}\frac{\omega_{S_2}}{\omega_{S_3}}\mathrm{P_{S_2}P_{S_3}} - \frac{g_{R,S_3}}{\mathrm{A_{eff_{S_3}}}}\frac{\omega_{S_3}}{\omega_{S_4}}\mathrm{P_{S_3}P_{S_4}} \tag{4.4}$$

Notons que chacun des pics générés est plus large que le pic précédent, car il résulte de la convolution du pic précédent avec la courbe de gain Raman. Pour illustrer ce mécanisme, j'ai proposé une simulation simplifiée du phénomène de cascade Raman, pour laquelle j'ai utilisé l'approximation triangulaire du gain Raman, issue de [210] et représentée sur la Figure 4.1.

L'élargissement est représenté dans ma simulation par une fonction rectangulaire de largeur croissante (Figure 4.3a). La largeur de chaque rectangle a été déterminée expérimentalement à l'aide d'un spectre discret généré par cascade Raman et mesuré par Vincent Tombelaine [214]. La convolution du gain Raman de la Figure 4.1 par cette fonction donne naissance à plusieurs composantes, chacune décalée de 13,2 THz et de formes légèrement différentes (représentation colorée de la Figure 4.3b).

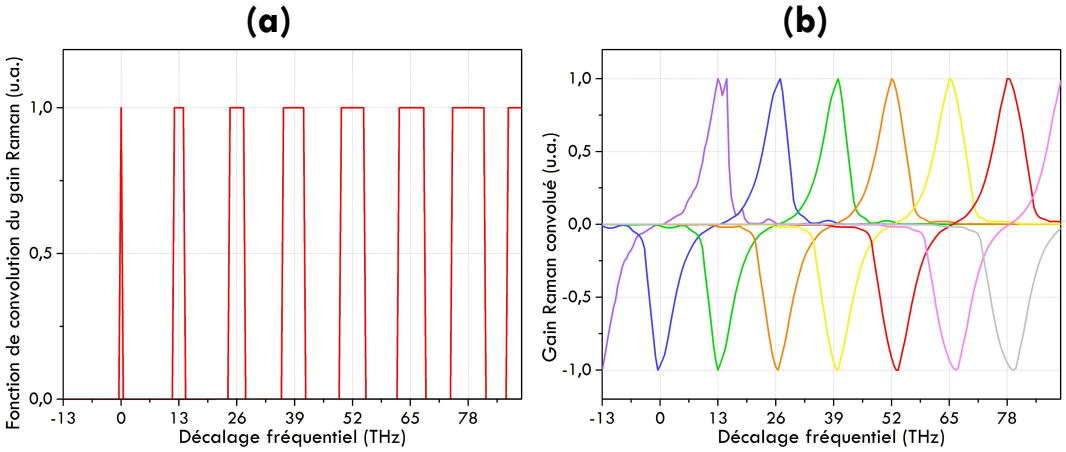



**Figure 4.3** – (a) Fonction représentant l'évolution de la largeur de l'onde pompe pour une cascade Raman ; (b) Résultat de la convolution du gain Raman par la fonction présentée en Figure 3a.

La somme de l'ensemble de ces composantes est représentée en noir sur la Figure 4.4. Le gain Raman obtenu montre alors de larges modulations, alternativement positives et négatives, qui définissent respectivement les bandes spectrales d'amplification et de pertes par absorption. La superposition avec un spectre (en vert) mesuré en sortie de la fibre présentée dans la section 4.2.1.2 permet de mettre en évidence la correspondance entre les zones positives du gain Raman et les pics Raman du spectre. On remarque aussi que le gain théorique apparait « fortement négatif » à la longueur d'onde de pompe principale (1064 nm), ce qui est cohérent avec la réalité puisque c'est à cette longueur d'onde qu'est prélevée toute la puissance : celle-ci est donc fortement atténuée, comme le montre le spectre mesuré. La courbe de gain Raman issue de la simulation comporte trois pics positifs, correspondant aux pics Raman $S_1$ (1118 nm), $S_2$ (1172 nm) et $S_3$ (1226 nm) mais aussi des zones négatives où la déplétion des ondes engendrées par effet Raman est importante (1080 nm, 1150 nm, 1200 nm, 1275 nm).

L'élargissement progressif des différents pics Raman laisse entrevoir la possibilité de générer un spectre quasi-continu dans la mesure où un fort élargissement pourrait permettre de combler les creux entre les pics. Comme je l'ai déjà dit, la diffusion Raman stimulée apparait au-delà d'un seuil de puissance. En augmentant suffisamment la puissance injectée dans la fibre, on peut espérer combler les creux jusqu'au niveau maximal de puissance de chaque pic généré. Pour arriver à cela, il est nécessaire de mettre en place un système de génération de supercontinuum à forte puissance à travers une fibre dont le ZDW est placé au-delà de 1600 nm (longueur d'onde maximale de notre bande d'intérêt) pour que l'ensemble du spectre soit généré par la cascade

Raman. Dans cet objectif, nous proposons d'engendrer un supercontinuum à travers une fibre monomode conventionnelle, en régime de dispersion normale.

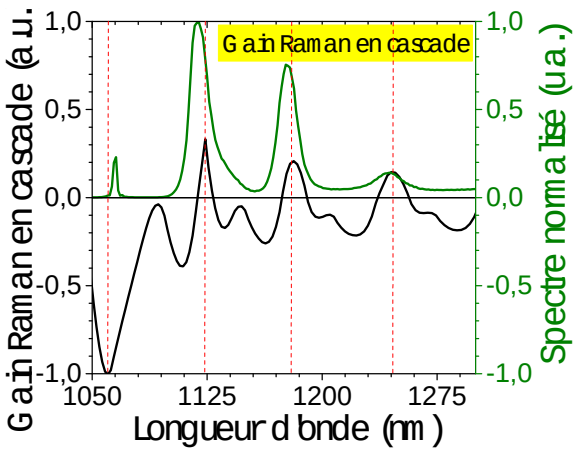



**Figure 4.4** – Superposition de la cascade Raman simulée (en noir) et d'un spectre (en vert) mesuré à la sortie d'un tronçon de 20 m de fibre SMF-Ge pompé par des impulsions à 1064 nm de puissance crête égale à 20 kW.

## 4.2 Génération de supercontinuum par cascade Raman dans une fibre optique monomode passive conventionnelle

Cette partie présente les résultats de l'étude que j'ai menée sur la possibilité de générer un spectre plat par cascade Raman en régime de dispersion normale à l'aide d'une fibre monomode passive conventionnelle à saut d'indice.

### 4.2.1 Montage expérimental

#### 4.2.1.1 Source laser de signal

La source laser utilisée pour pomper la fibre est la source présentée dans la section 2.2.1 du Chapitre 3. Il s'agit d'un microlaser Nd:YAG à déclenchement passif émettant des impulsions à 1064 nm de 750 ps de durée à une cadence de 27,5 kHz.

Dans la mesure où l'injection est réalisée dans la fibre sans utiliser de multiplexeur, la puissance n'est plus limitée par celui-ci comme cela était le cas dans le Chapitre 3. L'injection est réalisée par une lentille convergente (focale 50 mm), placée en amont d'une microlentille de collimation installée par le fabriquant sur la face d'entrée de la fibre. La seule limitation de puissance dépend ici du seuil de destruction de la silice qui compose le cœur de la fibre optique. Dans ces conditions, il est possible d'atteindre des puissances en entrée de fibre jusqu'à 700 mW, c'est-à-dire 34 kW crête. Dans les meilleures conditions d'injection, 60 % de cette puissance (20 kW) sont réellement injectés.

#### 4.2.1.2 Description de la fibre SMF-Ge

La fibre utilisée dans cette étude est une fibre fabriquée par CORNING sous la dénomination « Hi980 », et nommée SMF-Ge dans la suite de ce manuscrit. Il s'agit d'une fibre à saut d'indice, monomode à partir de 930 nm, dont le cœur est dopé au Germanium à hauteur de 3 mol.% en poids. Ce dopage crée une différence d'indice $\Delta n = 14 \times 10^{-3}$. La fibre possède un cœur de diamètre 3,5 µm et une ouverture numérique de 0,21.

L'indice effectif du mode fondamental dans cette fibre a été calculé en fonction de la longueur d'onde, à l'aide de la méthode des éléments finis décrite dans la Référence [117]. De ces calculs, on tire facilement la courbe la vitesse de groupe en fonction de la longueur d'onde, représentée sur la Figure 4.5 (voir relation 2.28). Dans la bande spectrale d'intérêt pour la microspectroscopie CARS, c'est-à-dire entre 1160 nm et 1600 nm, la variation de vitesse de groupe est de $5 \times 10^5$ m.s$^{-1}$. Celle-ci entraine ainsi un retard de l'ordre de 30 ps.m$^{-1}$ entre les deux composantes extrêmes de cette bande. Tout comme dans le Chapitre 3, nous fixons comme objectif un décalage inférieur à 25 % de la largeur temporelle de l'onde de pompe, soit un décalage temporel inférieur à 200 ps, pour garantir la synchronisation de toutes les composantes spectrales. Cela impose de ne pas utiliser de tronçons de fibre de longueur supérieure à 6 m.

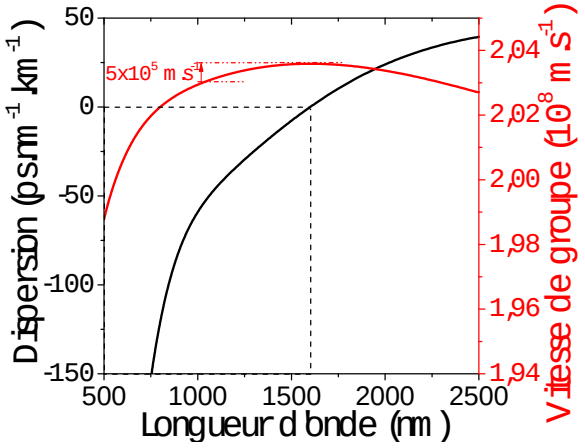



**Figure 4.5** – Courbes de dispersion chromatique et de vitesse de groupe calculées pour la fibre monomode SMF-Ge.

À l'aide des mêmes résultats de simulations, on calcule dans un deuxième temps la dispersion chromatique de la fibre en fonction de la longueur d'onde, en utilisant les relations 2.28 et 2.31 du Chapitre 2. La courbe obtenue montre que cette dispersion chromatique est continument croissante sur toute la plage des calculs (500 nm – 2500 nm), avec une valeur du ZDW évaluée à 1600 nm (Figure 4.5). Ainsi, la longueur d'onde de pompe de la fibre (1064 nm), tout comme l'ensemble du spectre d'intérêt pour la spectroscopie M-CARS (1160 nm – 1600 nm) se situent dans le domaine de dispersion normale. Dans ces conditions, l'effet non linéaire prépondérant dans la construction du spectre est la diffusion Raman, engendrant une cascade de raies Stokes telle que décrite dans les sections précédentes.

### 4.2.2 Étude spectrale du supercontinuum généré dans la fibre SMF-Ge

Comme je l'ai évoqué précédemment, le système d'injection du signal dans la fibre par double lentille permet d'injecter une forte puissance dans la fibre (jusqu'à 60 % de la puissance dans les meilleures conditions). Par souci de clarté, j'appellerai « signal » l'onde à 1064 nm injectée dans la fibre, comme dans le Chapitre 3.

Dans un premier temps, un tronçon de fibre SMF-Ge de 1 m est utilisé pour élargir le signal. La Figure 4.6 présente les spectres mesurés à la sortie de ce tronçon pour des impulsions injectées de puissances variant entre 2,9 kW et 14,2 kW. Jusqu'à 7 kW, les pics Raman du côté Stokes et anti-Stokes se démarquent clairement du reste du spectre. Les creux entre chacun des pics se comblent à mesure que la puissance augmente. Finalement, au-delà de 8 kW, les creux sont comblés et disparaissent, laissant place à un élargissement spectral continu et lisse. À partir de 11,6 kW, on peut considérer que la platitude du spectre est satisfaisante, avec une variation de DSP inférieure à 1 dB sur la bande d'élargissement 1064 nm – 1130 nm (courbe rose).

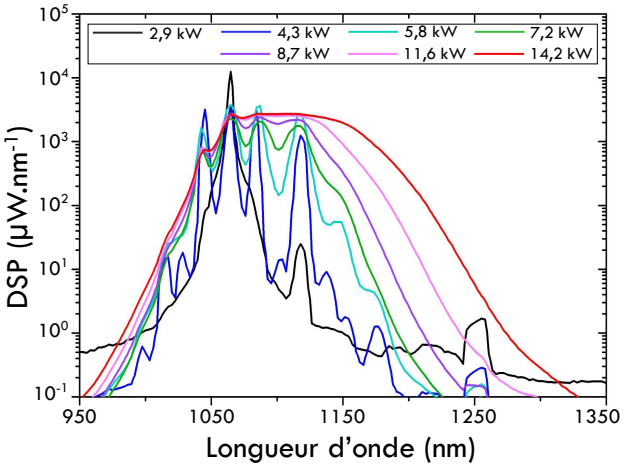



**Figure 4.6** – Spectres mesurés à la sortie d'un tronçon de 1 m de fibre SMF-Ge pour différentes puissances de signal injectées.

Cependant, même si le spectre est plat avec une forte DSP (supérieure à 1 mW.nm$^{-1}$), toute la bande nécessaire pour la spectroscopie M-CARS n'est pas couverte. Il est donc nécessaire d'augmenter la longueur de fibre pour obtenir un spectre plus large.

La Figure 4.7 présente les spectres mesurés à la sortie de tronçons de fibre SMF-Ge de longueur variant entre 1 m et 6 m, dans lesquels la puissance de signal injectée est de 20,2 kW. L'augmentation de la longueur permet bien d'étendre le spectre jusqu'à 1600 nm (à partir d'une longueur de 4 m). Cet élargissement se fait cependant au détriment de la platitude du spectre puisqu'on voit les pics Raman $S_1$ et $S_2$ émerger à nouveau pour les plus grandes longueurs de la fibre.

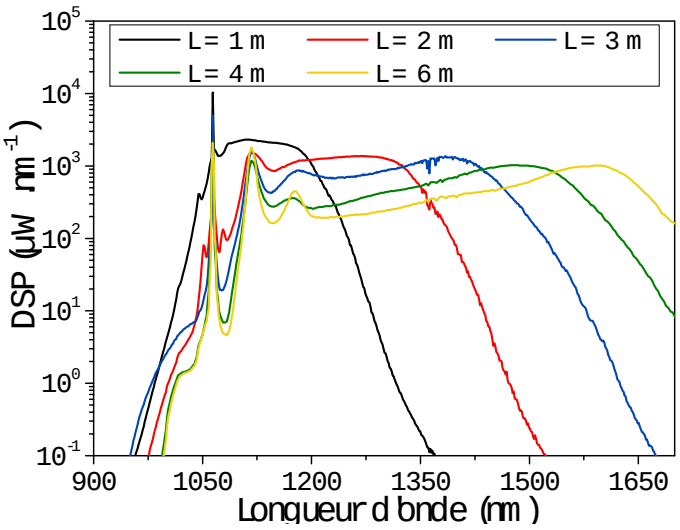



**Figure 4.7** – Spectres mesurés à la sortie de tronçons de fibre SMF-Ge de différentes longueurs, pompés avec des impulsions de 20 kW.

Dans un deuxième temps, je me suis intéressé plus particulièrement au tronçon le plus long (6 m), dans lequel l'élargissement est le plus important. Les spectres mesurés à la sortie de ce tronçon en fonction de la puissance injectée sont montrés Figure 4.8. On constate bien, comme cela était prévisible, que la puissance injectée ne suffit plus pour engendrer des effets Raman assez intenses pour combler les creux entre chaque pic Raman, lorsque la longueur de fibre dépasse une certaine limite.

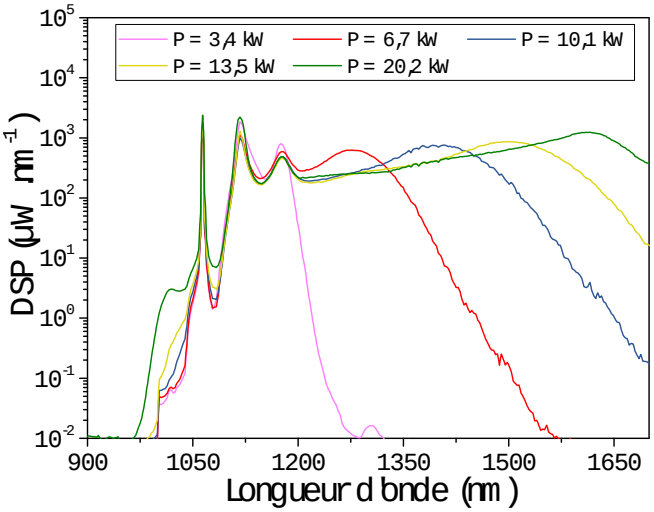



**Figure 4.8** – Spectres mesurés à la sortie d'un tronçon de 6 m de fibre SMF-Ge pour différentes puissances de signal injectées.

Cette étude démontre que l'impact de l'augmentation de la longueur de fibre diffère de celui d'une augmentation de la puissance de signal, sur la forme du spectre. Pour confirmer ce comportement, j'ai tracé l'évolution de la puissance à quatre longueurs d'onde dans le continuum émergent, d'abord en fonction de la puissance injectée dans un tronçon de longueur fixe (Figure 4.9a) puis

en fonction de la longueur de fibre, la puissance d'entrée restant inchangée (Figure 4.9b). Pour faciliter la discussion des résultats, j'adopte les dénominations suivantes : le $n^{e}$ pic Raman est appelé $S_n$, le creux qui le précède est appelé $C_{n-1}$ et leurs longueurs d'onde sont respectivement $\lambda_{S_n}$ et $\lambda_{C_{n-1}}$. Les quatre longueurs d'onde étudiées sont : $\lambda_{C_0} = 1072$ nm, $\lambda_{S_1} = 1118$ nm, $\lambda_{C_1} = 1145$ nm et $\lambda_{S_2} = 1172$ nm.

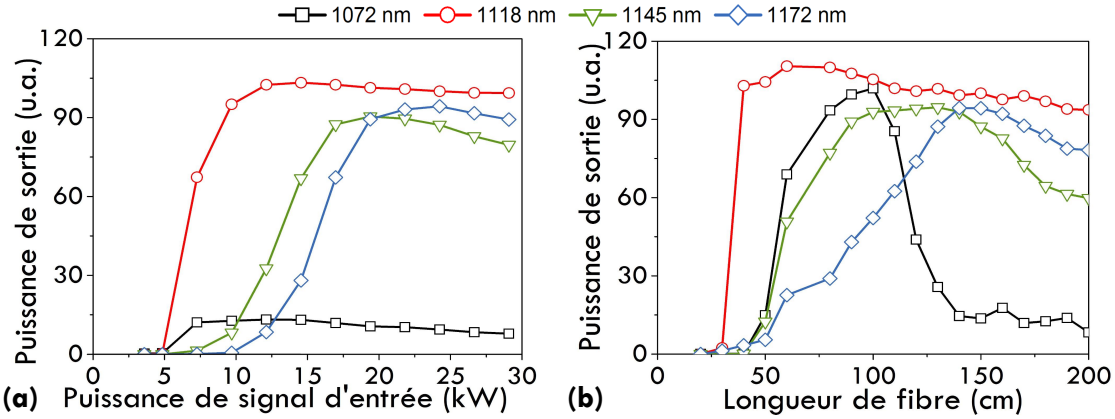



**Figure 4.9** – Évolution des puissances de sortie aux longueurs d'onde $\lambda_{C_0}$, $\lambda_{S_1}$, $\lambda_{C_1}$ et $\lambda_{S_2}$ : (a) en fonction de la puissance crête de signal d'entrée (longueur de fibre : 1,5 m) ; (b) en fonction de la longueur de fibre (puissance d'entrée : 14,5 kW).

Lorsque la puissance injectée augmente (longueur de fibre constante : ici, 1,5 m), les puissances à $\lambda_{S_1}$, $\lambda_{S_2}$ et $\lambda_{C_1}$ saturent, ce qui les amène à toutes converger vers cette valeur (approximativement 90 u.a. sur la Figure 4.9a), entrainant ainsi un aplatissement du spectre. En revanche, lorsque la puissance est fixée (14,5 kW) et que la longueur de fibre augmente (Figure 4.9b), une déplétion de l'énergie située entre les raies Stokes est fortement visible (creux $C_0$ et $C_1$).

En d'autres termes, cela signifie que le gain et les pertes engendrées aux niveaux des pics et des creux sont différents. Toutes les longueurs d'onde positionnées à 13,2 THz (pic du gain Raman) l'une de l'autre, en partant de la position de l'onde signal, verront tour à tour un gain maximum puis une déplétion correspondant à la création d'une raie Stokes supplémentaire. Celle-ci est alors induite par la dynamique du phénomène SRS sous l'action de la propre puissance de l'onde. Dans ces conditions, un équilibre entre gain et pertes permet de garantir une énergie minimum résiduelle à ces longueurs d'onde et cela à cause du niveau non nul du seuil Raman.

En revanche, pour les radiations positionnées entre ces maxima, le même phénomène physique peut se mettre en place mais en ajoutant un phénomène d'absorption Raman (voir Figure 4.4). Dans ces conditions, le mécanisme dominant induit par l'effet de cascade correspond à des pertes, ce qui diminue fortement le niveau énergétique et fait apparaitre, par contraste, la cascade discrète de raies Stokes.

Néanmoins, dans le cas d'une fibre courte (1 m), c'est-à-dire d'une cascade Raman limitée à deux voire trois raies Stokes, les parties négatives du gain Raman associé aux longueurs d'onde de pompe 1064 nm et 1118 nm sont respectivement positionnées autour de 1010 nm et 1064 nm. Toutes les longueurs d'onde au-delà de 1064 nm verront donc un gain positif sur plus de

40 THz. Seul le dépassement de la puissance seuil Raman agira comme régulateur de puissance, permettant d'obtenir en chaque point du spectre un niveau limite de la densité spectrale de puissance. On obtient alors un spectre plat entre 1118 nm et 1350 nm pour des puissances extrêmes (Figure 4.7).

Dans le cas d'une fibre plus longue, un nombre plus important de raies Stokes est engendré. Les zones à gain Raman négatif sont alors davantage décalées vers les hautes longueurs d'onde. Ceci a pour effet de creuser périodiquement le spectre et d'ainsi lui redonner un profil périodique dans la zone spectrale que nous visons (Figure 4.7).

Dans cette section, l'ensemble des spectres a été représenté à partir de 900 nm. En réalité, la propagation dans la fibre engendrait également la création de longueurs d'onde visibles. Celles-ci étaient essentiellement dues au doublage de fréquence du signal à 1064 nm. Cet effet, également appelé génération de second harmonique, apparait spontanément sous l'action de la très forte puissance crête injectée à 1064 nm. Cela permet d'induire un marquage fort du cœur de la fibre par battement cohérent entre l'onde signal et son second harmonique. Dans le but de garder une certaine cohérence dans l'évolution de ce manuscrit, ces travaux sont présentés en **Annexe C**.

### 4.2.3 Étude spectrotemporelle du supercontinuum généré dans la fibre SMF-Ge

Nous avons vu précédemment que la spectroscopie M-CARS nanoseconde nécessitait une synchronisation de l'ensemble des composantes spectrales du supercontinuum avec l'onde pompe monochromatique. La variation de vitesse de groupe calculée (Figure 4.5) étant relativement faible dans cette fibre, on s'attend à ce que les effets de dispersion soient négligeables pour les longueurs de fibre inférieures à 6 m. Pour le confirmer, j'ai mené une étude spectrotemporelle des supercontinuums générés dans des tronçons de fibre SMF-Ge de différentes longueurs. Le principe de l'étude est similaire à celui présenté dans la section 3.3.3 du Chapitre 3. L'injection du signal à 1064 nm est réalisée directement, comme cela a été présenté au début de ce chapitre. Les mesures en sortie de 1 m, 4 m et 6 m de fibre sont présentées en Figure 4.10.

Dans le cas d'une longueur de fibre de 1 m, aucun impact de la dispersion de la fibre n'est visible. Par contre, la conversion Raman stimulée déplète fortement l'impulsion de signal à 1064 nm, créant une restructuration temporelle avec un résidu synthétisé par deux impulsions latérales significativement plus courtes que celle de départ. On peut également noter que la création de nouvelles longueurs d'onde est obtenue avec une réduction significative de la durée de l'impulsion. Ce phénomène est assez compréhensible du fait de la dynamique non linéaire du SRS ce qui favorise la création des hautes longueurs d'onde avec la partie supérieure de l'impulsion. En d'autres termes, c'est le sommet des impulsions qui voit sa puissance transférée vers les plus hautes longueurs d'onde tandis que les pieds ne subissent pas de conversion de fréquence.

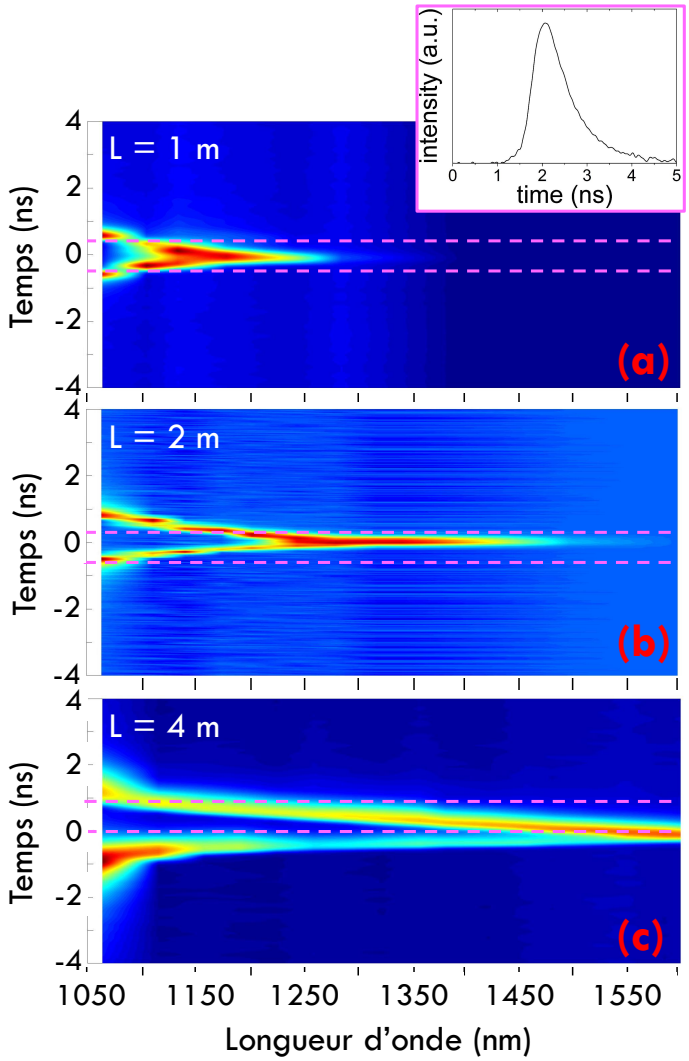



**Figure 4.10** – Mesures spectrotemporelles du faisceau à la sortie de tronçons de 1 m (a) ; 2 m (b) ; 4 m (c) de fibre SMF-Ge pompée avec des impulsions de puissance crête égale à 20 kW. Les lignes pointillées roses représentent les instants de début et de fin de l'impulsion de pompe CARS (largeur à mi-hauteur). Insert : Profil temporel de l'impulsion injectée dans la fibre.

Pour 4 m de fibre, le mécanisme non linéaire et identique mais avec une plus grande amplitude au niveau des longueurs d'onde infrarouges. Toutes les composantes spectrales qui sont engendrées subissent une forte déplétion (centre des impulsions) ne laissant que les parties latérales intactes, comme illustré sur la Figure 4.11. Du fait de la non-symétrie de l'impulsion d'entrée à 1064 nm, on obtient une évolution spectrotemporelle conique telle que représentée sur la Figure 4.10c.

Dans ces conditions, la forme de l'impulsion de pompe est en quelque sorte dupliquée dans le domaine spectral, donnant naissance à la fois à un important décalage entre les différentes composantes spectrales du continuum (environ 1 ns entre 1064 nm et 1550 nm) et à de courtes impulsions de durées inférieures à 200 ps constituées des bords non convertis des impulsions. Cette désynchronisation est un obstacle à l'utilisation de cette fibre pour la spectroscopie M-CARS telle que je l'ai présentée dans le Chapitre 1. Néanmoins, cette organisation atypique de l'énergie optique contenue dans le supercontinuum pourrait permettre de réaliser un système

de microspectroscopie M-CARS sans avoir besoin d'une analyse spectrale du fait de l'affichage des différentes longueurs d'onde dans le temps. Une analyse du rayonnement M-CARS avec une simple photodiode ultrarapide permettrait d'obtenir le spectre CARS dans son ensemble. Une exacerbation de la pente temporelle pourrait également améliorer la résolution spectrale de ce système. Il est important de noter que ce genre de système est appliqué en régime femtoseconde du fait de la forte différence de vitesse de groupe qui sépare les composantes spectrales du supercontinuum mais nécessite l'utilisation d'une ligne à retard [215].

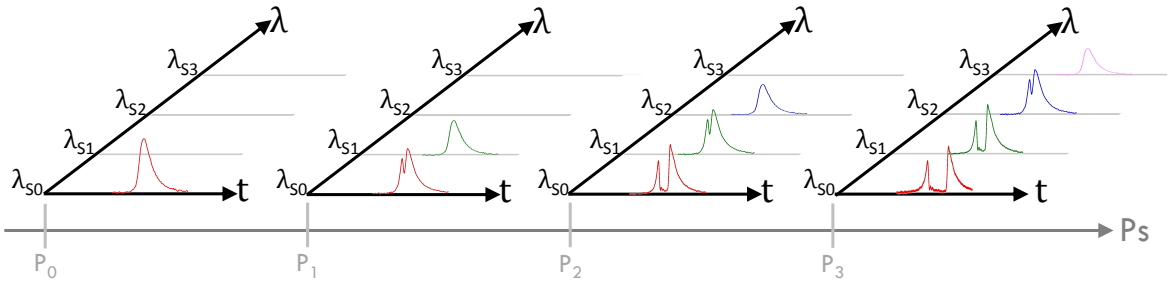



**Figure 4.11** – Illustration des conversions Raman en cascade conduisant à la déplétion de la pompe principale ($\lambda_{S_0}$) et des pompes secondaires (pics Raman aux longueurs d'onde $\lambda_{S_n}$) lors de l'augmentation de la puissance de signal $P_S$ injecté dans la fibre. Le déclenchement du transfert d'énergie d'une longueur d'onde $\lambda_{S_{n-1}}$ à une longueur d'onde $\lambda_{S_n}$ est associé à une puissance moyenne de signal dans la fibre $P_n$.

### 4.2.4 Conclusion sur l'utilisation de la fibre SMF-Ge pour l'élargissement spectral

L'étude présentée dans ce chapitre montre que les meilleures performances des sources de continuum réalisées ont été obtenues avec 2 m et 4 m de fibre SMF-Ge. Ces performances sont rappelées dans les Tableau 4.1 (source avec une fibre de 2 m) et Tableau 4.2 (source avec une fibre de 4 m), en regard des attendus du cahier des charges initial.

En utilisant un tronçon de 2 m de fibre SMF-Ge, les performances obtenues en termes de DSP et de platitude sont largement supérieures à celles visées par le cahier des charges, mais la bande spectrale exploitable est nettement plus étroite que celle souhaitée. Cependant, il est possible d'utiliser un tel spectre réduit pour créer un dispositif de spectroscopie M-CARS spécialement destiné à l'analyse de la zone d'empreinte digitale des échantillons, pour laquelle il est nécessaire d'obtenir un spectre entre 1160 nm et 1320 nm.

Le décalage temporel induit entre les composantes spectrales du supercontinuum est proche de la durée des impulsions de la pompe CARS (750 ps). De ce fait, l'ensemble des composantes de l'onde Stokes ne serait pas synchronisé avec le sommet des impulsions de la pompe CARS. Le niveau de puissance de pompe CARS vu par l'échantillon serait très disparate d'un couple de longueurs d'onde (pompe CARS + bande spectrale de l'onde Stokes) à l'autre. Le décalage temporel entre les différentes composantes spectrales est en l'état une vraie limite à l'utilisation de cette source pour la spectroscopie M-CARS nanoseconde telle que je l'ai présentée dans le Chapitre 1.

**Tableau 4.1** – Comparaison des caractéristiques de la source basée sur l'utilisation d'un tronçon de 2 m de fibre SMF-Ge et des paramètres fixés dans le cahier des charges.

| Paramètres | Cahier des charges | Caractéristiques de la source basée sur l'utilisation de la fibre SMF-Ge | Respect du cahier des charges |
|---|---|---|---|
| **Longueur de fibre** | < 10 m | 2 m | |
| **Bande spectrale exploitable du supercontinuum** | 1160 nm – 1600 nm | 1100 nm – 1390 nm | |
| **DSP dans le supercontinuum** | > 0,03 $mW.nm^{-1}$ | 1 $mW.nm^{-1}$ | |
| **Platitude du spectre dans la bande spectrale exploitable** | < 5 dB | 1 dB | |
| **Décalage temporel maximal des composantes spectrales en sortie de fibre** | < 200 ps | 675 ps | |

**Tableau 4.2** – Comparaison des caractéristiques de la source basée sur l'utilisation d'un tronçon de 4 m de fibre SMF-Ge et des paramètres fixés dans le cahier des charges.

| Paramètres | Cahier des charges | Caractéristiques de la source basée sur l'utilisation de la fibre SMF-Ge | Respect du cahier des charges |
|---|---|---|---|
| **Longueur de fibre** | < 10 m | 4 m | |
| **Bande spectrale exploitable du supercontinuum** | 1160 nm – 1600 nm | 1064 nm – 1600 nm | |
| **DSP dans le supercontinuum** | > 0,03 $mW.nm^{-1}$ | 0,6 $mW.nm^{-1}$ | |
| **Platitude du spectre dans la bande spectrale exploitable** | < 5 dB | 6 dB | |
| **Décalage temporel maximal des composantes spectrales en sortie de fibre** | < 200 ps | 950 ps | |

Au regard des performances obtenues avec le tronçon de 4 m et synthétisées dans le Tableau 4.2, la platitude du spectre de 6 dB n'est pas aussi bonne que souhaitée. Puisque l'étude que j'ai menée a montré que la platitude, comme la DSP, dépendait de la puissance de signal injectée, on peut penser qu'elle pourrait être améliorée en augmentant la puissance du signal. Le petit diamètre du cœur de la fibre ne permet malheureusement pas d'injecter plus de puissance. Or,

j'ai montré dans le Chapitre 3 que la puissance de signal transportée dans une fibre non-linéaire pouvait être considérablement augmentée grâce à une amplification par des ions ytterbium incorporés dans le cœur. Une solution, que je développerai dans les perspectives présentées à la fin de ce manuscrit, pourrait donc être d'utiliser une fibre optique conventionnelle monomode, de dimensions similaires à celles de la fibre SMF-Ge pour conserver le régime de dispersion normale, et dont le cœur serait dopé à l'ytterbium.

Par ailleurs, le décalage temporel entre les composantes est accru avec cette longueur de fibre, atteignant jusqu'à 950 ps. Il est alors impossible, avec cette source, d'espérer acheminer simultanément sur l'échantillon l'ensemble des composantes de l'onde Stokes et de la pompe CARS.

Pour rappel, nous avons vu dans la section 1.2.4.5 du Chapitre 1 qu'il existait des systèmes de spectroscopie CARS femtoseconde résolue en temps. Dans ces systèmes, la désynchronisation des composantes spectrales, induite par la dispersion chromatique, est utilisée pour réduire le fond non-résonnant.

Comme le décalage temporel induit par la dispersion chromatique entre les différentes composantes spectrales est négligeable pour de faibles longueurs de fibre en comparaison d'impulsions nanosecondes, la résolution temporelle n'existe pas en régime nanoseconde. Or, la source que je propose ici permet de créer une désynchronisation des différentes composantes spectrales, par la déplétion Raman. Ainsi, l'utilisation de la fibre SMF-Ge ouvre la voie à une nouvelle méthode de spectroscopie M-CARS nanoseconde et résolue en temps. La longueur d'onde de l'onde Stokes pourrait être par exemple codée temporellement par l'intermédiaire de ce décalage temporel créé par la cascade Raman (visible par la pente présente pour les temps positifs sur la Figure 4.10c, par exemple). Par le réglage adéquat de la ligne à retard placée sur le chemin de l'onde de pompe CARS, on pourrait synchroniser la pompe CARS avec la partie désynchronisée des composantes de l'onde Stokes. L'analyse du milieu sondé pourrait alors être réalisée avec une simple photodiode mesurant le signal CARS engendré par les différentes composantes spectrales atteignant successivement l'échantillon. Il est à noter que pour obtenir une bonne résolution spectrale, il serait alors nécessaire d'accroitre le décalage temporel entre les composantes. Pour cela, il est nécessaire d'utiliser une fibre plus longue. Cependant, même avec la fibre de 4 m, le décalage engendré n'est que de 950 ps, ce qui augmente la difficulté de mise en place de ce système de spectroscopie M-CARS codée temporellement. Une autre solution, complémentaire, est de remplacer la source d'onde signal par un microlaser délivrant des impulsions beaucoup plus dissymétriques (voir section 2.1.2.2 du Chapitre 2).

## 4.3 Génération de supercontinuum par cascade Raman dans une fibre optique multimode passive conventionnelle

La saturation du gain Raman peut également être exploitée dans une fibre multimode qui, grâce à un cœur plus large, est capable de transporter des puissances beaucoup plus importantes. Cependant, dans le cas général, la brillance du faisceau émergent n'est pas supérieure à celle de celui obtenu en régime monomode à cause du caractère multimode spatial de ce faisceau. Pour augmenter cette brillance, il faut que la puissance portée par les modes d'ordres supérieurs tout au long de la propagation dans la fibre soit transférée dans le mode fondamental au niveau la face de sortie. Ce transfert d'énergie non-réciproque, qui aboutit à une forme de « nettoyage spatial » du faisceau émis, peut être obtenu en tirant profit de l'effet Kerr. Ce nettoyage spatial permet de profiter d'une forte brillance du faisceau, rendant ainsi le spectre large-bande utilisable pour la spectroscopie M-CARS.

Dans cette partie, je vais d'abord décrire le principe du nettoyage spatial par effet Kerr dans les fibres optiques multimodes, étudié dans le cadre d'une collaboration entre l'Institut de Recherche XLIM, l'Université de Brescia et l'Institut Carnot de Bourgogne. Je présenterai ensuite les spectres large-bandes à très forte densité spectrale de puissance, générés à travers une fibre conventionnelle multimode.

### 4.3.1 Nettoyage spatial par effet Kerr

Depuis des décennies, on est capable de limiter le nombre de modes guidés dans une fibre multimode, en réduisant la dimension du cœur ou la différence d'indice entre le cœur et la gaine, ou bien en exploitant le gain Raman [144, 216, 217]. Ces solutions reviennent à empêcher des modes de se propager mais elles ne permettent pas de transférer l'énergie présente sur les modes d'ordres élevés vers le mode fondamental sans changer la longueur d'onde initiale. Cependant, les expériences menées dernièrement à l'Institut de Recherche XLIM ont montré que l'effet Kerr dans une fibre multimode à gradient d'indice permettait d'éviter l'apparition d'un speckle, conduisant à l'obtention d'un faisceau de sortie spatialement propre, et insensible aux contraintes mécaniques appliquées aux fibres [104]. La fibre multimode à gradient d'indice (diamètre de cœur : 50 µm) utilisée dans la Référence [104] peut théoriquement guider plus de 200 modes. L'étude a montré que, tout au long de sa propagation, l'énergie présente sur ces 200 modes est transférée vers le mode fondamental, jusqu'à obtenir en sortie du tronçon de fibre un profil d'intensité proche d'un faisceau gaussien (Figure 4.12), dont la qualité est confirmée par la valeur du facteur $M^2$ égal à 20 sur la Figure 4.12b et égal à 2 sur la Figure 4.12f[1].

1. Le facteur $M^2$ est une mesure de la dégradation du faisceau par rapport au mode fondamental. Plus il est proche de 1, plus le profil mesuré est semblable à un mode $LP_{01}$. Il est calculé à partir de la mesure de la divergence du faisceau et de diamètre au col (« waist »), à une longueur d'onde donné [218].

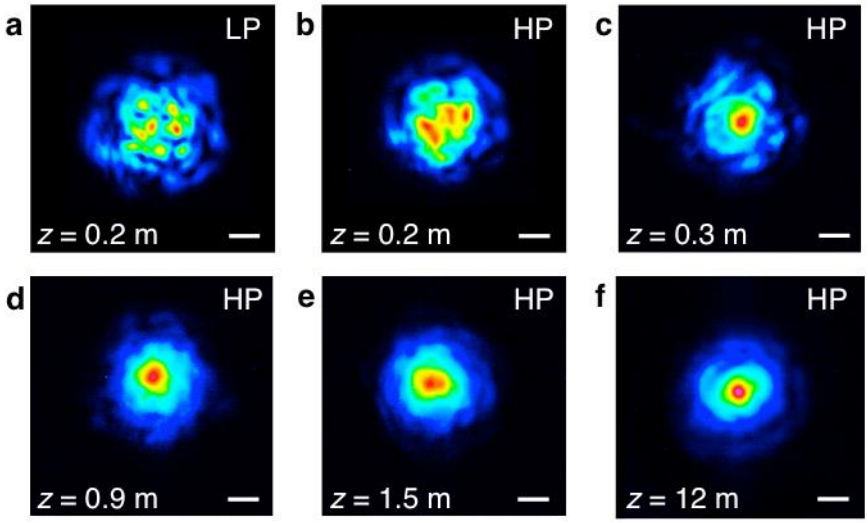



**Figure 4.12** – Images en champ proche enregistrées à la longueur d'onde du signal (1064 nm) à la sortie de tronçon de différentes longueurs de fibre MMF-Ge [104], montrant la formation d'un faisceau de mieux en mieux « nettoyé » au fur et à mesure de la propagation. La puissance crête du signal de sortie à $z = 12$ m est de 44 kW. HP : haute puissance ; LP : faible puissance. Barre d'échelle : 10 µm.

La Figure 4.13 montre également l'évolution spatiale du faisceau en sortie d'un tronçon de 12 m de fibre multimode à gradient d'indice (fibre « MMF-Ge », présentée en section 4.3.2.2 de ce chapitre) lorsque l'on augmente la puissance de signal. Le profil d'intensité se rapproche de celui du mode fondamental, tout en présentant un diamètre de faisceau important (20 µm). De cette manière, il est possible d'atteindre des densités de puissance spectrales bien plus importantes que celles que l'on peut espérer obtenir avec une fibre monomode à la longueur d'onde de travail, du fait d'une taille de cœur beaucoup plus large.

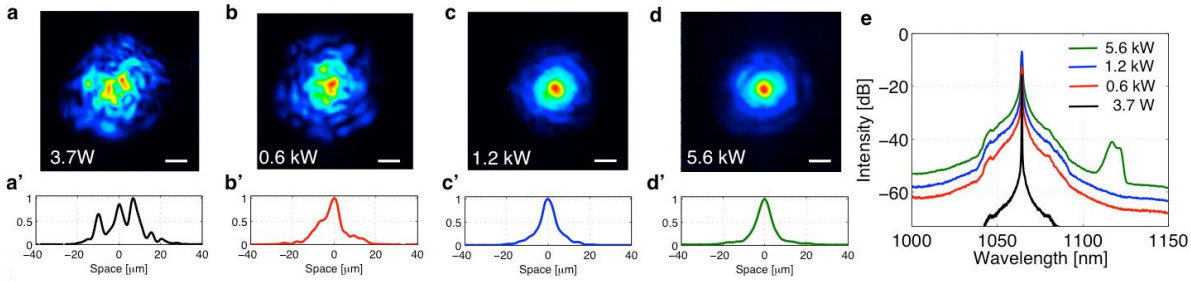



**Figure 4.13** – Dynamiques spatiale et spectrale expérimentale dans la fibre MMF-Ge de longueur 12 m [104] : (a) - (d) : Images en champ proche du faisceau en sortie de la fibre MMF-Ge à la longueur d'onde de signal à 1064 nm montrant l'auto-organisation, par l'augmentation de la puissance de signal, du faisceau spatial vers une distribution en cloche bien définie (barre d'échelle : 10 µm) ; (a') - (d') : Profils spatiaux des faisceaux correspondants (en intensité normalisée) en fonction de $x$ (pour $y = 0$) ; (e) : Spectres correspondants mesurés en sortie.

Lors du nettoyage spatial, l'énergie présente sur les modes d'ordres élevés est transférée de manière irréversible vers le mode fondamental grâce à l'implantation de mélanges à quatre ondes dans le domaine spatial. Ceux-ci sont accordés en phase par une imagerie périodique spécifiquement obtenue dans les fibres à gradient d'indice. A cause de la convergence de l'énergie

sur le mode fondamental, une modulation de phase auto-induite rompt la réversibilité du système de mélange paramétrique emprisonnant définitivement la puissance sur le mode fondamental [104]. Ainsi, on retrouve en sortie un profil d'intensité proche de celui du mode $LP_{01}$ alors que plusieurs modes peuvent se propager.

Dans l'étude de Krupa et coll. sur une fibre multimode à gradient d'indice de 12 m [219], le nettoyage spatial démarre à partir d'une puissance crête de l'ordre de 0,6 kW, c'est-à-dire avant que ne commence l'élargissement par cascade Raman, dont la puissance seuil est proche de 5,6 kW. Dans la suite de ce chapitre, je présenterai mes travaux visant à coupler le nettoyage spatial et l'élargissement spectral par cascade Raman, de manière à générer un supercontinuum répondant au cahier des charges que nous avons fixé dans la section 1.4.2 du Chapitre 1.

### 4.3.2 Montage expérimental

#### 4.3.2.1 Source laser de signal

Cette étude est réalisée à l'aide du microlaser présenté dans la section 3.2.1 du Chapitre 3. Pour rappel, il délivre des impulsions à 1064 nm, de durée 750 ps, à une fréquence de répétition de 27,5 kHz. Le système d'amplification multipassages permet d'atteindre des puissances moyennes de plusieurs watts et des puissances crêtes supérieures à 100 kW.

#### 4.3.2.2 Description de la fibre MMF-Ge

La fibre utilisée est une fibre multimode à gradient d'indice de diamètre de cœur 50 µm et dont l'ouverture numérique vaut 0,2. L'injection du signal dans la fibre est réalisée à l'aide d'une lentille de focale 50 mm. Étant donné que la taille du cœur est beaucoup plus grande que celle des fibres monomodes utilisées dans les expériences précédentes, il est possible d'injecter des puissances beaucoup plus fortes. Expérimentalement, la limite de puissance moyenne des impulsions injectées, avant destruction de la silice, a été évaluée à 1,3 W (63 kW crête).

Dans les fibres multimodes, la dispersion du guide est quasi-nulle (sauf pour les modes les plus élevés). Par conséquent, leur dispersion chromatique est proche de la dispersion du matériau et le ZDW du mode fondamental se trouve autour de 1300 nm. Il est à noter que, dans les fibres multimodes, on raisonne rarement en termes de dispersion chromatique du fait que chaque mode possède sa propre dispersion. Dans le cas du nettoyage spatial, il peut être délicat d'utiliser la notion de dispersion chromatique dans la mesure où le profil obtenu en sortie n'est pas à proprement parlé un mode $LP_{01}$ mais un mélange de tous les modes transportés dans la fibre. Cependant, le poids très faible des modes autres que le fondamental permet d'assimiler le faisceau émergent au mode fondamental. Dans ce cas, l'élargissement est obtenu en régime de dispersion normale jusqu'à 1300 nm et en régime de dispersion anormale au-delà.

### 4.3.3 Étude spectrale du supercontinuum généré dans la fibre MMF-Ge

Dans un premier temps, un tronçon de 6 m de fibre MMF-Ge est utilisé pour élargir spectralement le signal. La Figure 4.14 présente les spectres mesurés à la sortie de ce tronçon pour des puissances injectées variant entre 11 kW et 45,2 kW crêtes. Comme je l'ai indiqué dans la section 4.3.1, le nettoyage est déjà opérant à 1064 nm avec ces puissances. On verra dans la section 4.3.4 qu'il est également effectué aux autres longueurs d'onde du spectre.

Jusqu'à 18,5 kW, seul le premier pic Raman est généré du côté Stokes. Tout comme dans la fibre SMF-Ge, le creux entre la pompe principale $S_0$ et le pic $S_1$ se comble à mesure que la puissance augmente. Au-delà de 18,5 kW, le spectre continue à s'élargir de plus en plus avec la puissance, tout en conservant une très bonne platitude (variation de puissance inférieure à 1 dB sur la bande 1160 nm – 1400 nm). Cependant, même à la puissance maximale de 45,2 kW en sortie, le continuum généré ne s'étend pas jusqu'à 1600 nm. Il est donc indispensable d'augmenter la longueur de fibre pour atteindre cet objectif.

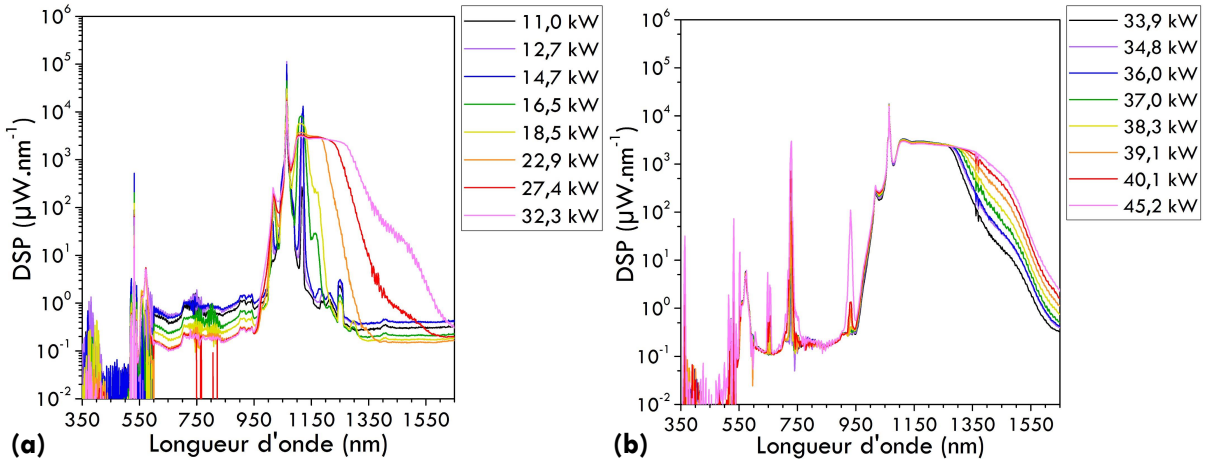



**Figure 4.14** – Spectres mesurés à la sortie d'un tronçon de 6 m de fibre MMF-Ge pour différentes puissances de signal de sortie : (a) entre 11,0 kW et 32,3 kW crête ; (b) entre 33,9 kW et 45,2 kW crête.

J'ai donc réalisé, dans un second temps, une étude sur l'évolution des spectres mesurés en sortie de tronçons de différentes longueurs (par cutback). Avant chaque mesure, l'injection était réadaptée de manière à maintenir les meilleures conditions de nettoyage spatial possibles. Les spectres enregistrés entre 1,5 m et 30 m de fibre MMF-Ge, pompée avec des impulsions de 60 kW crête, sont présentés sur la Figure 4.15.

Les mesures montrent qu'il est possible d'élargir le spectre jusqu'à 1600 nm en conservant une bonne platitude (variations inférieures à 1 dB) à partir de 12 m de fibre (Figure 4.15d). Cette longueur de fibre est aussi le seuil à partir duquel les effets de la cascade Raman apparaissent plus clairement. La présence du creux $C_0$ par exemple est de plus en plus marquée, comme le montre la Figure 4.15d sur laquelle on voit se creuser le spectre à 1145 nm jusqu'à engendrer une modulation de 5 dB à cette longueur d'onde.

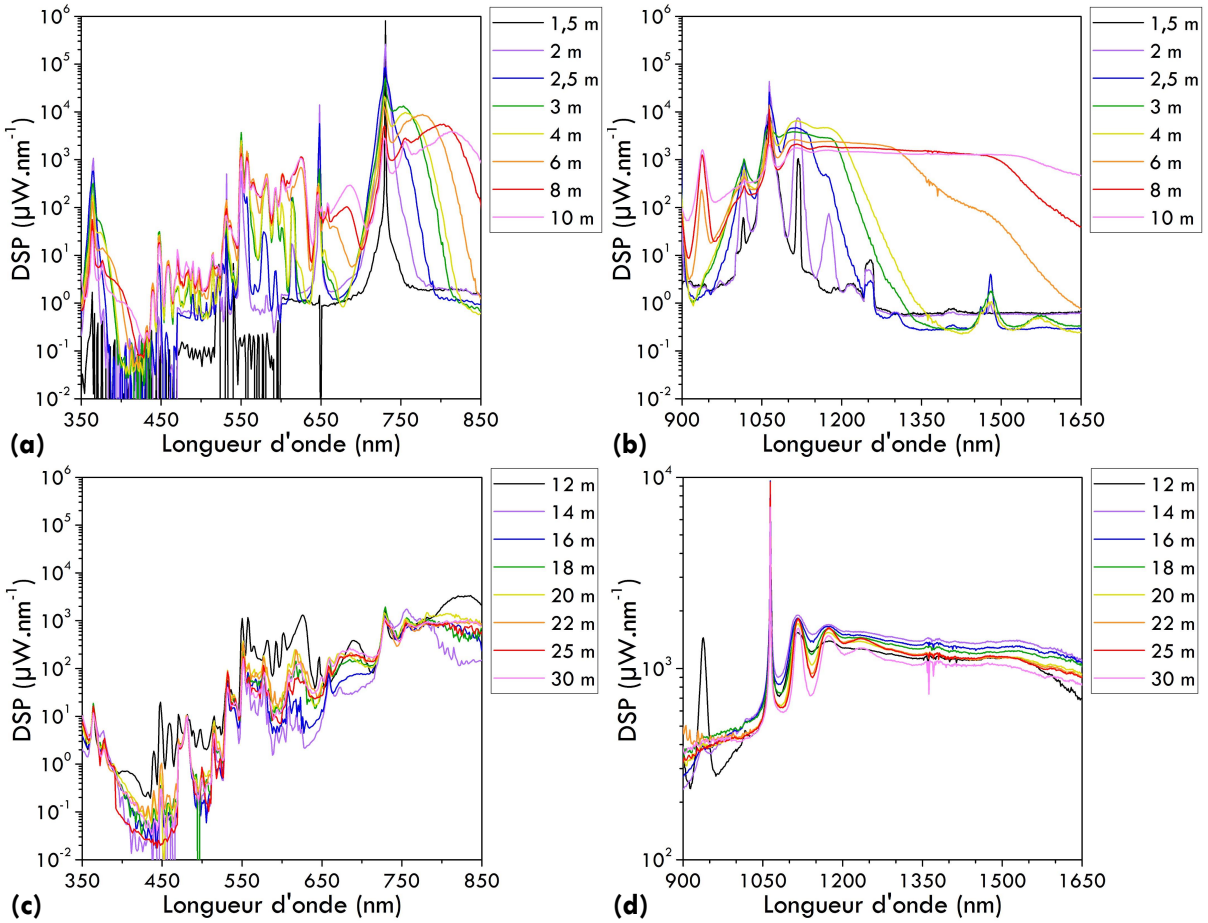



**Figure 4.15** – Spectres mesurés à la sortie de la fibre MMF-Ge pompée avec des impulsions de 60 kW crête en fonction de la longueur du tronçon : entre 1,5 m et 10 m sur la bande 350 nm – 850 nm (a) et la bande 900 nm – 1650 nm (b) ; entre 12 m et 30 m sur la bande 350 nm – 850 nm (c) et la bande 900 nm – 165  nm (d).

Par ailleurs, la DSP mesurée sur la bande spectrale utile, au-delà de 10 m de fibre, est supérieure à 1 mW.nm$^{-1}$, atteignant jusqu'à 1,35 mW.nm$^{-1}$ pour L = 12 m. Cette valeur place cette source à l'état de l'art des sources pour la spectroscopie M-CARS, en termes de densité de puissance. Cette DSP est quasi-constante sur toute la bande d'intérêt (1160 nm – 1600 nm). On confirme là l'intérêt d'utiliser une fibre à très gros cœur, dans lequel il a été possible d'injecter une très forte puissance.

Pour confirmer la similitude des caractéristiques d'élargissement dans cette fibre et dans la fibre SMF-Ge, j'ai tracé l'évolution de la puissance à quelques longueurs d'onde en fonction de la longueur de fibre (Figure 4.16a) et de la puissance injectée (Figure 4.16b). Ces longueurs d'onde sont : 1072 nm ($\lambda_{C_0}$), 1118 nm ($\lambda_{S_1}$), 1145 nm ($\lambda_{C_1}$), 1172 nm ($\lambda_{S_2}$), ainsi que trois longueurs d'onde prises plus loin dans le spectre, avant le ZDW (1276 nm) et au-delà du ZDW du mode fondamental (1320 nm et 1500 nm).

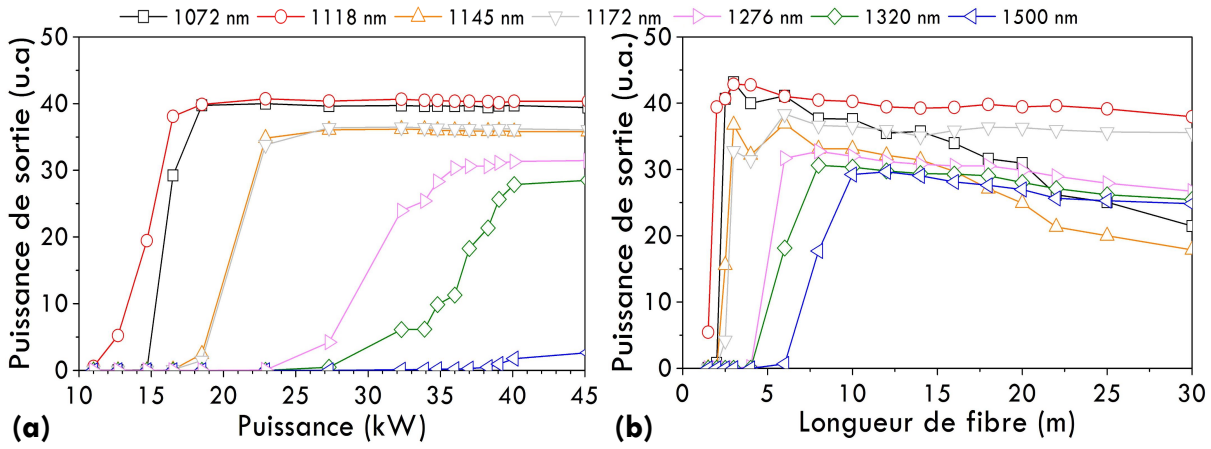



**Figure 4.16** – Évolution des puissances de sortie aux longueurs d'onde $\lambda_{C_0}$, $\lambda_{S_1}$, $\lambda_{C_1}$, $\lambda_{S_2}$ et à trois longueurs d'onde plus loin dans le spectre (1276 nm, 1320 nm et 1500 nm) : (a) en fonction de la puissance de signal d'entrée (longueur de fibre : 6 m) ; (b) en fonction de la longueur de fibre (puissance d'entrée : 60 kW).

Comme c'était le cas sur la Figure 4.9 qui concernait la fibre SMF-Ge, on remarque un effet de saturation des puissances à toutes les longueurs d'onde sélectionnées lorsque la puissance injectée augmente. L'effacement des creux est d'ailleurs tout à fait visible puisque l'on voit la saturation au même niveau de $C_0$ et $S_1$ (respectivement courbes noire et rouge de la Figure 4.16a), ainsi que de $C_1$ et $S_2$ (respectivement courbes jaune et grise de la Figure 4.16a). Lorsque la puissance est fixée à 60 kW, on retrouve une évolution différente des puissances sélectionnées en fonction de la longueur de fibre. Les puissances aux longueurs d'onde $\lambda_{S_1}$ et $\lambda_{S_2}$ subissent un effet de saturation tandis que les puissances à $\lambda_{C_0}$ et $\lambda_{C_1}$ décroissent lentement. Tout comme pour la fibre SMF-Ge, l'énergie nécessaire à l'élargissement est puisée autour des pics Raman lorsque que la longueur de fibre parcourue augmente. Il est à noter qu'à l'approche de 1300 nm, ZDW du mode fondamental dans la fibre, et au-delà, les puissances ne décroissent pas aussi vite que les puissances des creux $C_0$ et $C_1$. Leur évolution se rapproche de celle des pics Raman.

### 4.3.4 Étude spatiale du supercontinuum généré dans la fibre MMF-Ge

Les tracés de la Figure 4.17 montrent les images en champ lointain [2] à différentes longueurs d'onde à la sortie d'un tronçon de 30 m de fibre MMF-Ge, mesurées en utilisant une série de filtres passe-bande (bande passante $\delta\lambda = 10$ nm) avec différentes longueurs d'onde centrales. Les profils spatiaux mesurés ont tous la même forme, proche de celle du mode fondamental ($M^2 = 2$). On peut en conclure que la propreté du faisceau obtenue à 1064 nm est efficacement transférée sur l'ensemble du spectre du supercontinuum et cela grâce à la conjugaison du nettoyage par effet Kerr et du gain Raman.

2. Dans les fibres à gradient d'indice, les modes sont Laguerre Gaussiens [220]. De ce fait, les profils en champ lointain et en champ proche sont identiques. Il est ainsi possible de mesurer indifféremment le profil du champ dans l'une ou l'autre de ces conditions.

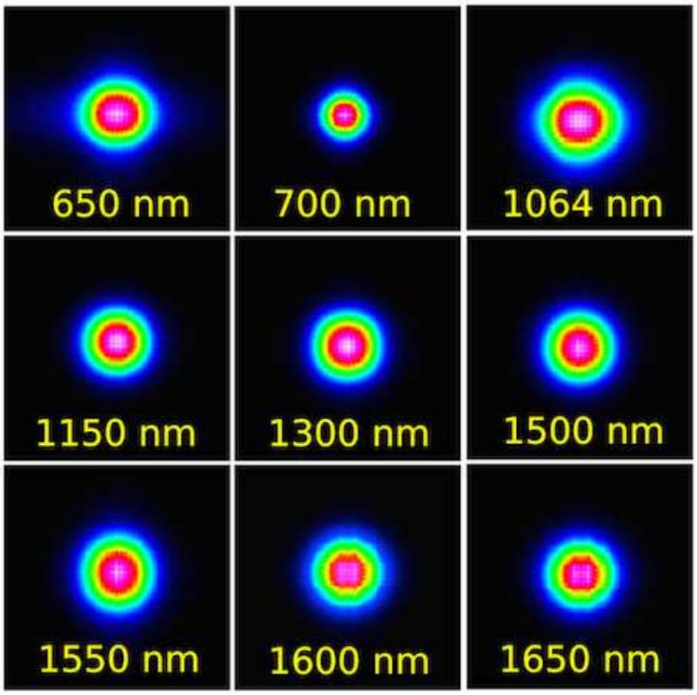



**Figure 4.17** – Profils d'intensité en champ lointain mesurés en sortie d'un tronçon de 30 m de fibre dans lequel sont injectées des impulsions signal de puissance crête égale à 60 kW, après filtrage par différents filtres passe-bande ($\delta\lambda = 10$ nm). Les longueurs d'onde centrales de chaque filtre sont indiquées sur les figures correspondantes [219].

### 4.3.5 Étude spectrotemporelle du supercontinuum généré dans la fibre MMF-Ge

Pour compléter l'étude de cette source, j'ai mené une étude spectrotemporelle des supercontinuums générés dans des tronçons de fibre MMF-Ge de différentes longueurs (6 m, 12 m et 30 m). Le montage expérimental est similaire à celui présenté dans la section 3.3.3 du Chapitre 3. La puissance de signal injecté dans la fibre est de 60 kW crête. Les mesures pour ces trois tronçons de fibre sont présentées en Figure 4.18.

Pour la partie infrarouge, le résultat pour L = 6 m est tout à fait similaire aux mesures réalisées avec la fibre SMF-Ge (Figure 4.10) : Les impulsions mesurées en filtrant spectralement autour de différentes longueurs d'onde du spectre (tous les 20 nm) sont déplétées pour générer le pic suivant, et ce jusqu'à la propagation en régime de dispersion anormale pour lequel les effets solitoniques apparaissent. Par contre dans la partie visible, des raies paramétriques bien plus courtes que la durée de l'impulsion initiale sont engendrées. Celles-ci sont la résultante de conversions paramétriques accordées en phase par le même effet de réseau d'indice responsable du nettoyage spatial et obtenu par effet d'imagerie périodique couplé à l'effet Kerr [221].

Les mesures réalisées avec une fibre de longueur L = 12 m montrent le même phénomène de déplétion est obtenu pour les longueurs d'onde entre 1064 nm et 1300 nm (Figure 4.18b). Seule une bande latérale d'énergie est visible pour les temps positifs. Cela s'explique par le fait que la majorité de l'énergie se propage sur le mode fondamental (après nettoyage spatial) en régime de dispersion normale. Dans ces conditions, seul l'effet Raman stimulé domine ce qui revient à une propagation similaire à celle exposée dans la fibre unimodale. Au-delà de 1300 nm, le régime de dispersion devient anormal. L'impulsion se transforme sous l'effet de l'automodulation de phase, de la dispersion et de l'instabilité de modulation pour atteindre le régime solitonique. Le spectre infrarouge entre 1300 nm et 1700 nm est alors engendré par l'autodécalage solitonique. On retrouve également dans la partie visible du spectre les mêmes raies paramétriques.

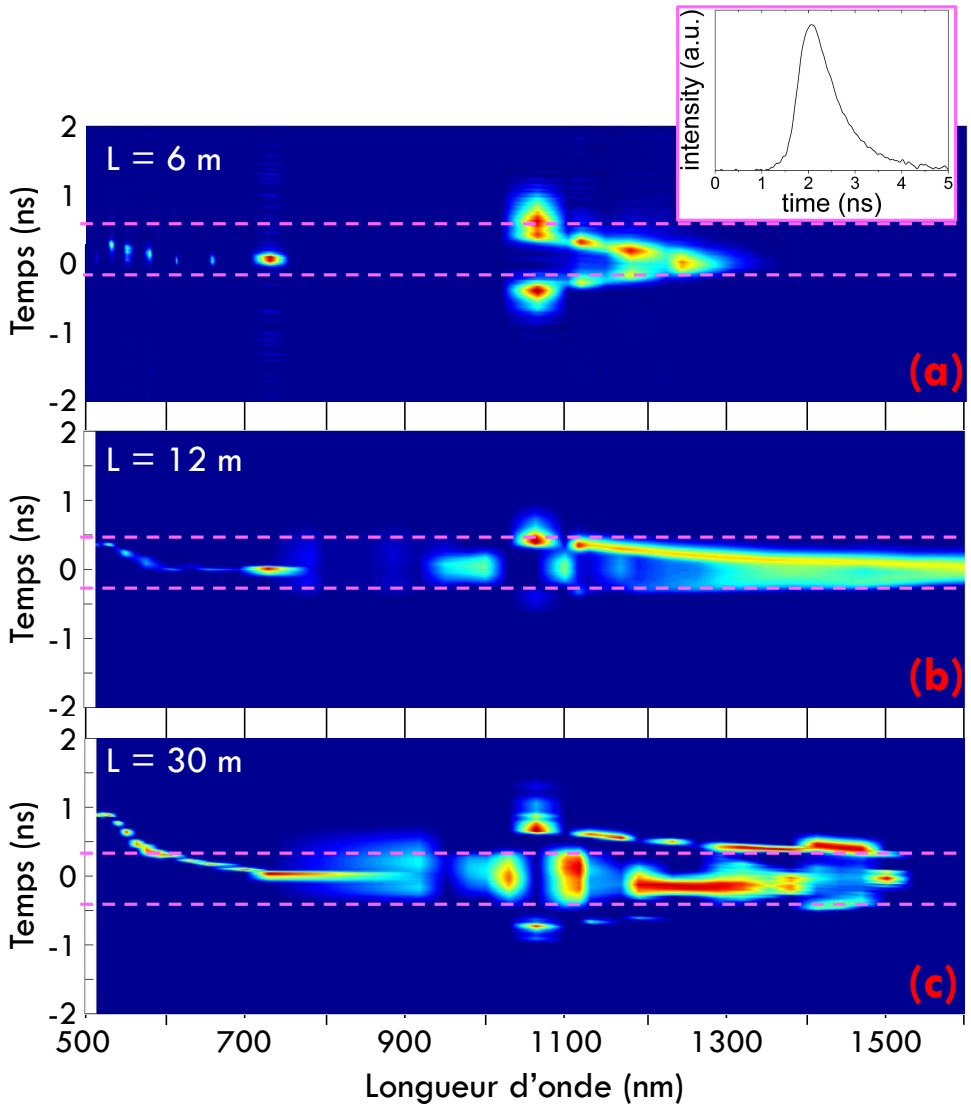



**Figure 4.18** – Mesures spectrotemporelles du faisceau à la sortie de tronçons de 6 m (a), 12 m (b) et 30 m (c) de fibre MMF-Ge pompée par des impulsions de puissance crête égale à 60 kW. Les lignes pointillées roses représentent les instants de début et de fin des impulsions signal (à mi-hauteur). Insert : Profil temporel de l'impulsion de pompe injectée dans la fibre.

Pour une longueur de fibre de 30 m, les mêmes effets non linéaires que ceux identifiés pour des fibres plus courtes sont visibles. À cela nous pouvons ajouter une conversion paramétrique dans la région visible qui permet d'obtenir une génération quasi continue entre 950 nm et 600 nm. Celle-ci est imputable aux propagations solitoniques qui engendre des ondes dispersives dans la partie basse du spectre. Il semblerait également qu'une structuration plus forte soit obtenue sur le spectre infrarouge avec une relocalisation importante de l'énergie autour de 1100 nm. Nous n'avons pour l'instant aucune explication logique à ce comportement que nous devrons étudier plus en profondeur.

### 4.3.6 Étude temporelle du rayonnement de sortie à 1064 nm

Aucun lien n'a été pour le moment établi entre le nettoyage spatial et l'allure temporelle des impulsions. Afin de déterminer si cette allure était déformée par le déclenchement du nettoyage spatial, j'ai porté une attention particulière à l'évolution temporelle des impulsions à 1064 nm en sortie de fibre en fonction de la puissance injectée. Pour cela j'ai utilisé le banc de mesure spectrotemporelle pour sélectionner la longueur d'onde 1064 nm et enregistrer les impulsions pour différentes puissances injectées entre 0 mW et 250 mW (12,5 kW). Les résultats de cette étude sont présentés en Figures 4.19 et 4.20.

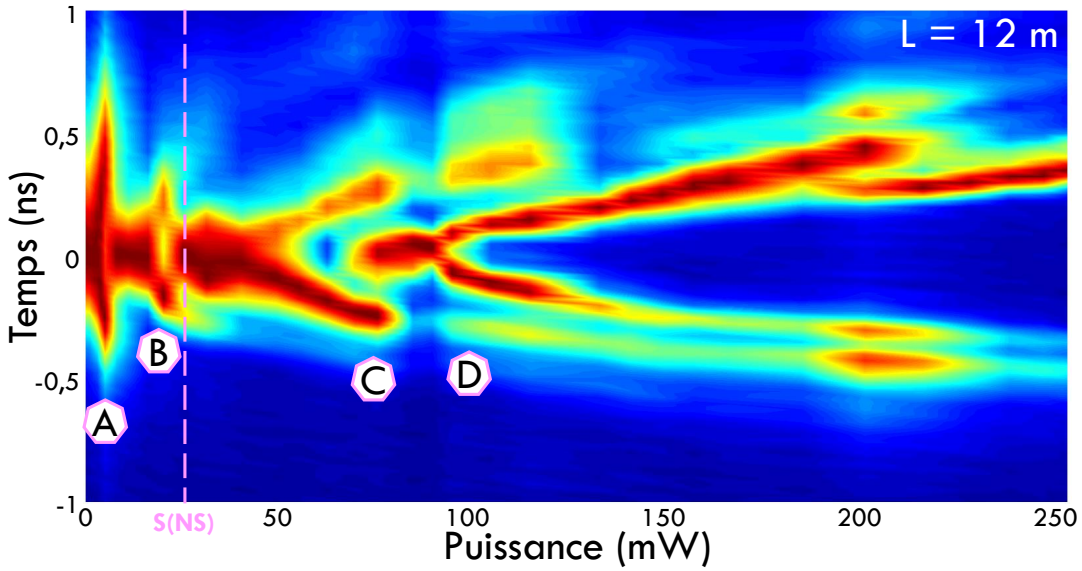



**Figure 4.19** – Évolution spectrotemporelle du faisceau à 1064 nm en sortie d'un tronçon de 12 m de fibre MMF-Ge en fonction de la puissance de signal en entrée. S(NS) : Puissance seuil du nettoyage spatial. Les repères A, B, C et D représentent respectivement les puissances 3 mW, 21 mW, 76 mW et 100 mW.

Les Figures 4.19 et 4.20 montrent que, pour des valeurs de puissance moyenne d'entrée inférieures à 2 mW, l'enveloppe temporelle de l'impulsion mesurée est similaire à la forme des impulsions délivrées par le microlaser. Cela prouve donc qu'aucun impact significatif de la différence de vitesse de groupe modale n'est visible pour la longueur de fibre utilisée. Une première distorsion

temporelle de l'impulsion apparaît lorsque la puissance d'entrée augmente jusqu'à 6 mW (0,3 kW crête) : comme on peut le voir, le sommet de l'impulsion est creusé, conduisant à une déformation importante de l'enveloppe et un allongement temporel de l'impulsion (Figure 4.19, repère A). En augmentant encore la puissance d'entrée jusqu'à 17 mW (0,8 kW), le processus s'inverse, avec une augmentation considérable du centre de l'impulsion, qui donne naissance à un seul pic compressé (avec des bords de faible puissance). La largeur totale de l'impulsion à mi-hauteur est alors fortement réduite (de 750 ps à 425 ps) par rapport à l'impulsion d'entrée. Lorsque l'on augmente encore la puissance d'entrée, cette modulation de l'enveloppe se répète une seconde puis une troisième fois (Figure 4.19, repère B puis repère C). Pour une puissance d'entrée de 90 mW (4,3 kW), la durée d'impulsion de sortie est réduite à seulement 175 ps, ce qui est plus de quatre fois plus court que la durée d'impulsion d'entrée.

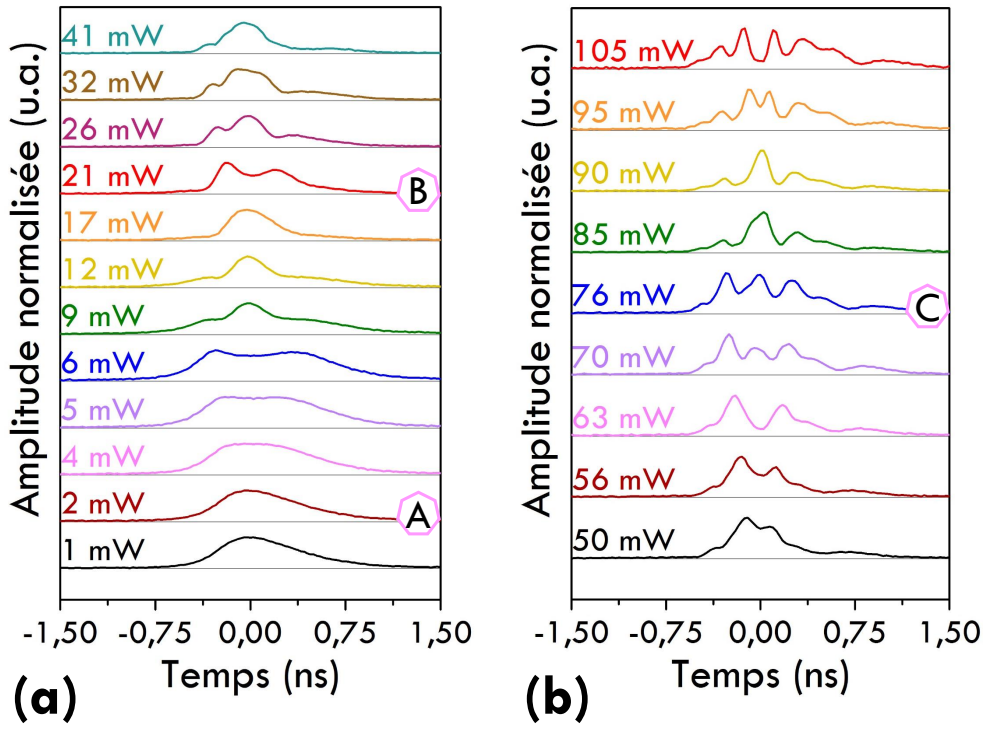



**Figure 4.20** – Profils temporels normalisés des impulsions à 1064 nm déformées par interférences modales, enregistrées en sortie d'un tronçon de 12 m de fibre MMF-Ge en fonction de la puissance de signal en entrée : (a) entre 1 mW et 41 mW ; (b) entre 50 mW et 105 mW. Les repères A, B et C représentent respectivement les puissances 3 mW, 21 mW et 76 mW.

Ce comportement, que l'on peut comparer à une respiration de l'enveloppe de l'impulsion, est similaire à celui qu'ont rapporté S. Trillo et S. Wabnitz en 1986 sur les instabilités de polarisation dans les fibres biréfringentes [222]. Dans notre cas, il s'agit d'une instabilité spatiale dans une fibre multimodale. Le mécanisme peut se comprendre comme des interférences dans le domaine temporel de plusieurs impulsions (cohérentes entre elles) se propageant sur différents modes spatiaux qui s'échangent de l'énergie.

On peut observer tout de même que, pour des puissances d'entrée supérieures à 100 mW (4,9 kW, Figure 4.19, Repère C), les impulsions mesurées sont efficacement déplétées par la diffusion Raman. Ceci a pour effet d'arrêter ce processus d'instabilité et d'engendrer le premier pic Raman à 1118 nm. La bande déplétée au centre de l'impulsion est, à 1064 nm comme à 1118 nm, de plus en plus large à mesure que la puissance de signal augmente.

### 4.3.7 Conclusion sur l'utilisation de la fibre MMF-Ge pour l'élargissement spectral

Le nettoyage spatial par effet Kerr dans les fibres multimodes à gradient d'indice offre la possibilité de générer un supercontinuum à très forte densité spectrale de puissance, dont le faisceau présente un profil d'intensité semblable à celui d'un faisceau gaussien, avec un facteur de qualité $M^2 = 2$. Ce nettoyage spatial s'opérant à partir d'un seuil de puissance relativement faible, l'ensemble des composantes spectrales qui composent le supercontinuum le subit, facilitant la focalisation du faisceau sur l'échantillon à analyser par spectroscopie M-CARS. La densité spectrale de puissance obtenue avec la source proposée, d'environ 1,35 $mW.nm^{-1}$, répond largement à notre cahier des charges puisqu'elle est plus de quarante-cinq fois supérieure à ce qui était demandé, c'est-à-dire à la DSP utilisée pour la microspectroscopie M-CARS dans la littérature [62].

L'étude de la source a montré qu'une longueur de 12 m était nécessaire pour couvrir l'ensemble de la bande spectrale requise pour la mise en œuvre d'un système M-CARS (1160 nm – 1600 nm), avec à la fois un élargissement spectral suffisant et de faibles modulations au niveau des premiers pics Raman. Bien que cette longueur soit légèrement supérieure à celle fixée initialement dans notre cahier des charges, elle reste acceptable dans la mesure où une variation de longueur de fibre de 2 m n'entraine pas un décalage temporel important en régime subnanoseconde. Il faut cependant rappeler que la longueur de la ligne à retard dans l'air que doit parcourir la pompe CARS pour être synchronisée avec le supercontinuum (onde Stokes), doit être $n_1$ fois plus longue que la fibre ($n_1 \approx 1{,}45$ étant l'indice du cœur de cette fibre), ce qui devient considérable (plus de 17 m pour une fibre de 12 m). Cette ligne à retard risque donc d'être encombrante ou sujette aux instabilités mécaniques si on réalise des repliements multiples avec des jeux de miroirs de renvoi. Une solution pour limiter l'encombrement induit par une telle longueur de ligne pourrait être de mettre en place une ligne à retard fibrée (LARF), constituée d'une fibre creuse ou même d'une fibre solide (peu non linéaire) qui serait alors de même longueur que la fibre utilisée pour la génération du supercontinuum.

La comparaison des caractéristiques de la source utilisant une fibre MMF-Ge de 12 m à celles prévues dans notre cahier des charges est présentée dans le Tableau 4.3.

**Tableau 4.3** – Comparaison des caractéristiques de la source basée sur l'utilisation d'un tronçon de 12 m de fibre MMF-Ge et des paramètres fixés dans le cahier des charges.

| Paramètres | Cahier des charges | Caractéristiques de la source basée sur l'utilisation de la fibre MMF-Ge | Respect du cahier des charges |
|---|---|---|---|
| **Longueur de fibre** | < 10 m | 12 m | |
| **Bande spectrale exploitable du supercontinuum** | 1160 nm – 1600 nm | 1064 nm – 1650 nm | |
| **DSP dans le supercontinuum** | > 0,03 $mW.nm^{-1}$ | 1,35 $mW.nm^{-1}$ | |
| **Platitude du spectre dans la bande spectrale exploitable** | < 5 dB | 1 dB | |
| **Décalage temporel maximal des composantes spectrales en sortie de fibre** | < 200 ps | 400 ps | |

Comme pour la fibre SMF-Ge, le décalage temporel entre les différentes composantes spectrales se révèle être le seul critère non-respecté du cahier des charges. La déplétion des impulsions par la cascade Raman jusqu'à 1300 nm pourrait rendre difficile la synchronisation de l'onde Stokes avec l'onde pompe CARS d'une durée de 750 ps, bien que la représentation de la durée de cette onde sur la Figure 4.18b laisse supposer la possibilité d'une synchronisation. Seule la mise en œuvre d'un banc de microspectroscopie M-CARS permettra de le confirmer.

# Conclusion générale et perspectives

Les travaux exposés dans cette thèse avaient pour but de concevoir de nouvelles sources lasers de supercontinuum optimisées en vue d'une utilisation en microspectroscopie Raman cohérente large-bande (M-CARS) appliquée à l'analyse d'échantillons biologiques.

L'étude bibliographique conduite dans les deux premiers chapitres a permis de préciser les performances à atteindre, concernant les trois caractéristiques suivantes : la largeur spectrale de la source, la densité spectrale de puissance et la platitude du spectre. J'ai ainsi établi un cahier des charges qui a guidé mes travaux :

- Une onde de pompe CARS monochromatique à 1064 nm et une onde Stokes large-bande couvrant la bande de 1160 nm à 1600 nm ;
- Une densité spectrale de puissance supérieure à 0,03 $\mathrm{mW.nm^{-1}}$ ;
- Une platitude du spectre inférieure à 5 dB, sur la bande 1160 nm - 1600 nm.

Pour répondre à ces exigences, j'ai proposé dans cette thèse trois sources de supercontinuum, dont l'étude et la mise au point sont rapportées dans la seconde partie de ce manuscrit. Chacune des sources a fait l'objet d'une étude spectrotemporelle poussée pour évaluer sa capacité à répondre aux conditions de superposition temporelle des impulsions pompe et sonde requises dans un système M-CARS.

La première source (Chapitre 3) est basée sur l'utilisation d'une fibre microstructurée air/silice dont le cœur de grand diamètre est dopé aux ions ytterbium. Ce dopage a permis de réamplifier le signal tout au long de sa propagation dans la fibre de manière à accroitre la densité spectrale de puissance, et à améliorer la platitude du spectre. Bien que le raccordement entre le multiplexeur utilisé et la fibre microstructurée occasionne des pertes importantes, cette source relativement simple présente des performances suffisantes pour concurrencer les sources du même type basées sur l'emploi d'une fibre à double gaine, qui sont sensiblement plus complexes à mettre en œuvre. La densité spectrale de puissance dans le spectre généré a pu atteindre 0,2 $\mathrm{mW.nm^{-1}}$ avec une platitude sur la bande 1064 nm – 1650 nm de 5,2 dB, très près du critère de 5 dB du cahier des charges.

La deuxième source (Chapitre 4) utilise une fibre à saut d'indice conventionnelle, monomode au-delà de 1 µm, dont le zéro de dispersion est décalé à 1600 nm. Ainsi, l'ensemble du spectre est généré en régime de dispersion normale. Dans ces conditions, le phénomène non linéaire prépondérant est la diffusion Raman stimulée, qui se traduit habituellement par la création d'un

spectre de raies profondément modulé, au-delà de la longueur d'onde de pompe. Dans cette thèse, j'ai cherché à aplatir ce spectre en tirant profit de la saturation du gain Raman dans une courte longueur de fibre fortement pompée. L'étude que j'ai menée a montré que l'on pouvait effectivement obtenir un spectre aplati, à condition que le couple longueur de fibre-puissance de pompe soit judicieusement choisi. Ainsi, à la sortie d'une fibre de 4 m pompée avec des impulsions de 20 kW de puissance crête, un spectre s'étendant de 1064 nm à 1600 nm (platitude de 6 dB), avec une densité spectrale de puissance de 0,6 mW.nm-1, soit vingt fois celle requise par le cahier des charges, a été obtenu. Il faut néanmoins noter que la déplétion des impulsions induite par la cascade Raman créé une désynchronisation des composantes spectrales du supercontinuum qui représente un inconvénient en vue de l'utilisation de cette source pour la microspectroscopie M-CARS mais peut être un avantage si l'on réalise une détection dans le domaine temporel du fait de l'affichage dans le temps des composantes spectrales du supercontinuum.

Enfin, dans le dernier chapitre, j'ai proposé de coupler le nettoyage spatial par effet Kerr auto-induit d'un faisceau guidé dans une fibre optique multimode conventionnelle à gradient d'indice (diamètre de cœur de 50 µm) avec le procédé de génération de continuum par diffusion Raman stimulée et saturation du gain Raman. Le nettoyage modal consiste en un transfert d'énergie non réciproque des modes d'ordres élevés vers le mode fondamental, de sorte que le faisceau émergent de la fibre possède un profil d'intensité proche de celui du mode fondamental $LP_{01}$ ($M^2 = 2$). Ce phénomène non linéaire intervient pour des puissances de pompe sensiblement inférieures à celles nécessaires pour déclencher la diffusion Raman stimulée. Ainsi, par un pompage intense, on peut à la fois obtenir un spectre élargi et aplati par saturation du gain Raman comme avec la fibre monomode et bénéficier du nettoyage modal. La densité spectrale de puissance dans le spectre atteint 1,5 $mW.nm^{-1}$, avec une modulation contenue dans une gamme de 5 dB sur tout le spectre entre 1064 nm et 1600 nm et le nettoyage modal observé est effectif sur l'ensemble de ce spectre. Cette nouvelle solution semble donc constituer un moyen très prometteur pour aboutir à la réalisation d'une source de continuum performante pour l'application à la spectroscopie M-CARS.

**Perspectives**

Les perspectives qu'ouvre ce travail concernent la finalisation des sources de continuum étudiées dans cette thèse, mais aussi la recherche en aval exploitant ces sources pour la construction effective de systèmes d'imagerie M-CARS performants et leur application à l'analyse d'échantillons chimiques et biologiques.

En ce qui concerne les sources, les solutions proposées dans cette thèse ont permis d'atteindre des densités spectrales de puissance nettement supérieures à celles habituellement rapportées dans la littérature, mais la platitude des spectres peut être encore améliorée. Pour cela, dans le cas de l'exploitation de l'émission Raman stimulée en cascade, en régime de saturation de gain Raman, il faut réussir à réduire les modulations du spectre engendré en accroissant la puissance de pompe propagée le long de la fibre. Pour cela, on peut imaginer une nouvelle source de supercontinuum

basée sur une fibre standard dopée aux ions ytterbium qui permettrait de combiner les avantages des différentes sources que j'ai proposées. L'amplification du signal tout au long de sa propagation dans une fibre (monomode ou multimode) conventionnelle devrait en effet contribuer à améliorer la platitude du spectre. Le raccordement de cette fibre au multiplexeur fibré nécessaire à la combinaison de l'onde signal à élargir et de l'onde destinée à pomper les ions $Yb^{3+}$ devra faire l'objet d'une attention particulière pour que les pertes à ce raccordement soient minimales, afin de ne pas affecter les performances de la source.

D'un autre côté, l'utilisation d'un microlaser générant des impulsions encore plus dissymétriques que celles utilisées dans cette thèse permettrait d'envisager la création d'un système de spectroscopie M-CARS nanoseconde résolu en temps, comme entrevu au chapitre 4.

La valorisation de ce travail de thèse passe évidemment par la construction de systèmes d'imagerie M-CARS fondés sur l'emploi des sources proposées. La forte densité spectrale de puissance produite dans la fibre multimode MMF-Ge avec nettoyage spatial devrait permettre de réaliser un système d'imagerie M-CARS tout fibré. En effet, il est possible d'utiliser cette fibre à la fois pour générer l'onde Stokes et pour servir de ligne à retard pour l'onde de pompe CARS. Le banc de mesure envisagé est présenté en Figure 1.

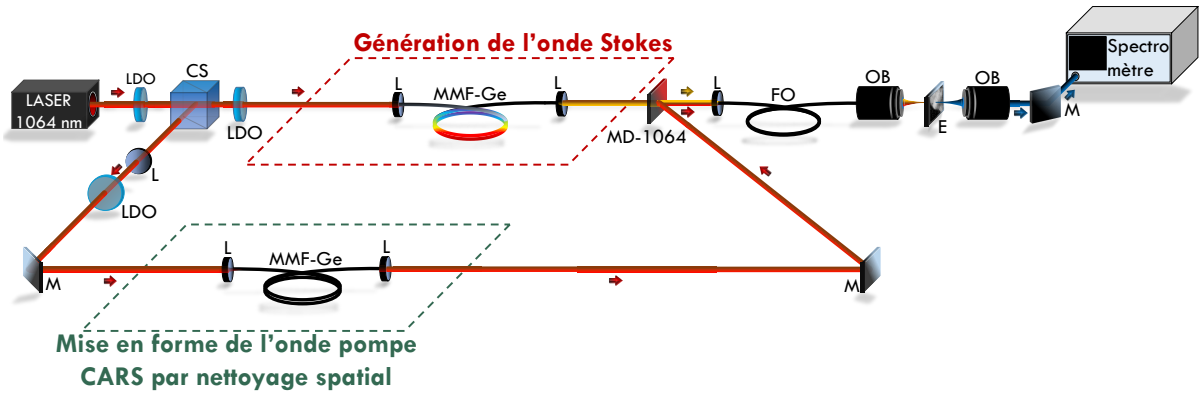



**Figure 1** – Représentation schématique d'un système de microspectroscopie M-CARS basée sur l'utilisation d'une fibre MMF-Ge à la fois pour la génération de l'onde Stokes (pompée à forte puissance pour provoquer le nettoyage spatial et l'élargissement spectral) et comme ligne à retard pour l'onde pompe CARS (pompée à faible puissance pour provoquer le nettoyage spatial uniquement). LDO : lame demi-onde ; L : lentille ; CS : cube séparateur ; M : miroir ; MD-1064 : miroir dichroïque à 1064 nm ; FO : fibre optique ; OB : objectif de microscope ; E : échantillon.

# Annexes

# Annexe A

# Éléments de théorie sur la dispersion du matériau et la dispersion du guide

## A.1 Rappel de l'expression de la dispersion chromatique

La dispersion chromatique, exprimée en général en ps.nm$^{-1}$.km$^{-1}$ est définie par :

$$\mathrm{D_c} = \frac{\tau}{L\,\Delta\lambda} \tag{A.1}$$

où $\tau$ est l'allongement temporel de l'impulsion, $L$ est la longueur de la fibre et $\Delta\lambda$ est la largeur spectrale de l'impulsion.

L'allongement temporel, vu comme la différence de temps de groupe $t_g(\lambda) = L/v_g(\lambda)$ aux deux longueurs d'onde extrêmes de la bande, s'écrit :

$$\tau = \frac{\mathrm{d}t_g}{\mathrm{d}\lambda}\Delta\lambda \tag{A.2}$$

Il vient alors, pour la dispersion chromatique, l'expression suivante :

$$\mathrm{D_c} = \frac{1}{L}\frac{\mathrm{d}t_g}{\mathrm{d}\lambda} \tag{A.3}$$

Par ailleurs, la dispersion chromatique est vue comme la somme de :
- la dispersion du matériau $\mathrm{D_m}$, due au fait que l'indice du matériau dépend de $\lambda$ (matériau dispersif) ;
- la dispersion du guide $\mathrm{D_g}$, due au fait que la constante de propagation varie avec $\lambda$, y compris dans un milieu non dispersif.

Nous allons maintenant exprimer ces deux dispersions.

## A.2 Dispersion du matériau

**Hypothèses**

- On considère le cas d'une onde plane, sans propagation guidée : $\mathrm{D_c} = \mathrm{D_m}$ ;
- On considère un milieu dispersif, dans lequel l'indice du cœur $\mathrm{n_1}$ dépend de la longueur d'onde $\lambda$ ;
- On considère l'élargissement temporel d'une impulsion de largeur spectrale $\Delta\lambda$.

Le temps de groupe $t_{g_m}$ de l'impulsion lors de sa propagation sur une longueur $L$ dans le milieu dispersif sans guidage est : :

$$t_{g_m} = \frac{L}{v_g} = \frac{L}{c} N_g = \frac{L}{c}\left(\mathrm{n_1} - \lambda \frac{\mathrm{dn_1}}{\mathrm{d}\lambda}\right) \tag{A.4}$$

L'allongement temporel correspondant s'écrit :

$$\tau_m = \frac{\mathrm{d}t_{g_m}}{\mathrm{d}\lambda}\Delta\lambda \tag{A.5}$$

La relation (A.4) permet d'écrire cet allongement temporel comme étant :

$$\begin{aligned} \tau_m &= \frac{L\Delta\lambda}{c}\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}\lambda}\left(\mathrm{n_1} - \lambda\frac{\mathrm{dn_1}}{\mathrm{d}\lambda}\right) \\ &= \frac{L}{c}\Delta\lambda\left[\frac{\mathrm{dn_1}}{\mathrm{d}\lambda} - \left(\frac{\mathrm{d}\lambda}{\mathrm{d}\lambda} + \lambda\frac{\mathrm{d^2n_1}}{\mathrm{d}\lambda^2}\right)\right] \\ &= -\frac{\lambda L}{c}\Delta\lambda\frac{\mathrm{d^2n_1}}{\mathrm{d}\lambda^2} \end{aligned} \tag{A.6}$$

Il vient alors, à partir de la relation (A.3), pour la dispersion du matériau :

$$\mathrm{D_c} = \mathrm{D_m} = -\frac{\lambda}{c}\frac{\mathrm{d^2n_1}}{\mathrm{d}\lambda^2} \tag{A.7}$$

## A.3 Dispersion du guide

**Hypothèses**

- On considère un milieu non-dispersif, c'est-à-dire dans lequel l'indice du cœur $\mathrm{n_1}$ ne dépend pas de la longueur d'onde $\lambda$ : $\mathrm{D_c} = \mathrm{D_g}$.
- On se place dans l'approximation du guidage faible, selon laquelle les indices du cœur $\mathrm{n_1}$ et de la gaine $\mathrm{n_1}$ sont proches : $\mathrm{n_1} + \mathrm{n_2} \simeq 2\mathrm{n_1}$ et $\mathrm{n_2} + \mathrm{n_e} \simeq 2\mathrm{n_1}$, où $\mathrm{n_e}$ est l'indice effectif du mode considéré (mode fondamental en régime monomode).

La relation (2.18) du manuscrit nous donne l'expression de la constante de propagation normalisée B :

$$\mathrm{B} = \frac{\beta^2 - k_0^2 \mathrm{n}_2^2}{k_0^2(\mathrm{n}_1^2 - \mathrm{n}_2^2)} \tag{A.8}$$

On rappelle également l'expression de la constante de propagation :

$$\beta = k_0 n_e \tag{A.9}$$

Il vient alors :

$$\mathrm{B} = \frac{\mathrm{n}_e^2 - \mathrm{n}_2^2}{\mathrm{n}_1^2 - \mathrm{n}_2^2} = \frac{(\mathrm{n}_e - \mathrm{n}_2)(\mathrm{n}_e + \mathrm{n}_2)}{(\mathrm{n}_1 - \mathrm{n}_2)(\mathrm{n}_1 + \mathrm{n}_2)} \tag{A.10}$$

D'après l'approximation du guidage faible, la constante B devient :

$$\mathrm{B} \simeq \frac{\mathrm{n}_e - \mathrm{n}_2}{\mathrm{n}_1 - \mathrm{n}_2} \tag{A.11}$$

Grâce à la relation (A.9), on peut alors écrire la constante de propagation $\beta$ en fonction de la constante normalisée B :

$$\beta = [\mathrm{B}(\mathrm{n}_1 - \mathrm{n}_2) + \mathrm{n}_2]\, k_0 \tag{A.12}$$

On a défini, dans le Chapitre 2, la différence relative d'indice comme étant $\Delta$, donné par :

$$\Delta = \frac{\mathrm{n}_1 - \mathrm{n}_2}{\mathrm{n}_1} \tag{A.13}$$

Il vient alors :

$$\beta = [\mathrm{n}_1 \Delta \mathrm{B} + \mathrm{n}_2]\, k_0 \tag{A.14}$$

Par ailleurs, on a vu que :

$$t_g = \frac{L}{v_g} = L\frac{\mathrm{d}\beta}{\mathrm{d}\omega} = \frac{L}{c}\frac{\mathrm{d}\beta}{\mathrm{d}k_0} \tag{A.15}$$

Le report de la relation (A.14) dans (A.15) permet d'exprimer le temps de groupe $t_{g_g}$ dans le cadre du guidage dans un milieu non dispersif par :

$$\begin{aligned} t_{g_g} &= \frac{L}{c}\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}k_0}\left[k_0 \mathrm{n}_2 + \mathrm{n}_1 \Delta k_0 \mathrm{B}\right] \\ &= \frac{L}{c}\left[\mathrm{n}_2 + \mathrm{n}_1 \Delta \frac{\mathrm{d}(k_0 \mathrm{B})}{\mathrm{d}k_0}\right] \end{aligned} \tag{A.16}$$

Si on introduit la fréquence spatiale normalisée $\mathrm{V} = k_0 \mathrm{A}$, avec $\mathrm{A} = a\mathrm{n}_1\sqrt{2\Delta}$ constante, on a :

$$\frac{\mathrm{d}(k_0 \mathrm{B})}{\mathrm{d}k_0} = \frac{\mathrm{d}(\mathrm{VB/A})}{\mathrm{dV/A}} = \frac{\mathrm{d}(\mathrm{VB})}{\mathrm{dV}} \tag{A.17}$$

On aboutit ainsi à une expression du temps de groupe $t_{g_g}$ :

$$t_{g_g} = \frac{L}{c}\left[\mathrm{n}_2 + \mathrm{n}_1\Delta\frac{\mathrm{d(VB)}}{\mathrm{dV}}\right] \tag{A.18}$$

L'allongement temporel d'une impulsion de largeur spectrale étroite $\Delta\lambda$ est alors donné par :

$$\tau_g = \frac{\mathrm{d}t_{g_g}}{\mathrm{d}\lambda}\Delta\lambda \tag{A.19}$$

La relation (A.18) permet d'écrire cet allongement temporel comme étant :

$$\begin{aligned}\tau_g &= \frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}\lambda}\left(\frac{L}{c}\left[\mathrm{n}_2 + \mathrm{n}_1\Delta\frac{\mathrm{d(VB)}}{\mathrm{dV}}\right]\right)\Delta\lambda \\ &= \frac{L}{c}\mathrm{n}_1\Delta\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}\lambda}\left[\frac{\mathrm{d(VB)}}{\mathrm{dV}}\right]\Delta\lambda \\ &= \frac{L}{c}\mathrm{n}_1\Delta\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{dV}}\left[\frac{\mathrm{d(VB)}}{\mathrm{dV}}\right]\frac{\mathrm{dV}}{\mathrm{d}\lambda}\Delta\lambda\end{aligned} \tag{A.20}$$

Or, d'après l'expression de V (relation (2.18)), on a :

$$\frac{\mathrm{dV}}{\mathrm{d}\lambda} = -\frac{2\pi}{\lambda^2}a\mathrm{ON} = -\frac{\mathrm{V}}{\lambda} \tag{A.21}$$

On obtient alors :

$$\tau_g = -\frac{L}{c}\mathrm{n}_1\Delta\frac{\mathrm{V}}{\lambda}\frac{\mathrm{d}^2\mathrm{VB}}{\mathrm{dV}^2}\Delta\lambda \tag{A.22}$$

Il vient alors, à partir de la relation (A.3), pour la dispersion du matériau :

$$\mathrm{D_g} = -\frac{\mathrm{n}_1\Delta}{c\lambda}\mathrm{V}\frac{\mathrm{d}^2\mathrm{VB}}{\mathrm{dV}^2} \tag{A.23}$$

# Annexe B

# Configuration électronique des lanthanides

Les lanthanides, également appelé terres rares, constituent une famille d'éléments chimiques (de numéros atomiques 57 à 71, voir Figure 3.1). Leur configuration électronique particulière en fait des candidats idéaux pour l'amplification de signal.

Pour comprendre leur intérêt, il est nécessaire de s'intéresser à la distribution des électrons autour du noyau de l'atome. Les électrons se disposent autour de ce noyau de sorte que leur niveau d'énergie soit le plus bas. Les couches électroniques sont ainsi remplies, selon la règle de Klechkowsky [223], dans l'ordre défini par la Figure 1. Sur cette Figure, n est le nombre quantique principal de la couche qui traduit un éloignement croissant au noyau, et les lettres $s$, $p$, $d$, $f$ et $g$ définissent le nombre quantique azimutal $l$, qui représente une sous-couche du niveau $n$. L'écart énergétique entre les différentes couches étant très faible, les couches « s'entremêlent ». C'est pourquoi l'ordre théorique de remplissage des orbitales n'est pas respecté. L'ordre défini par la règle de Klechkowsky correspond à un remplissage dans l'ordre des $(n + l)$ croissants puis, en cas d'égalité, par $n$ croissant.

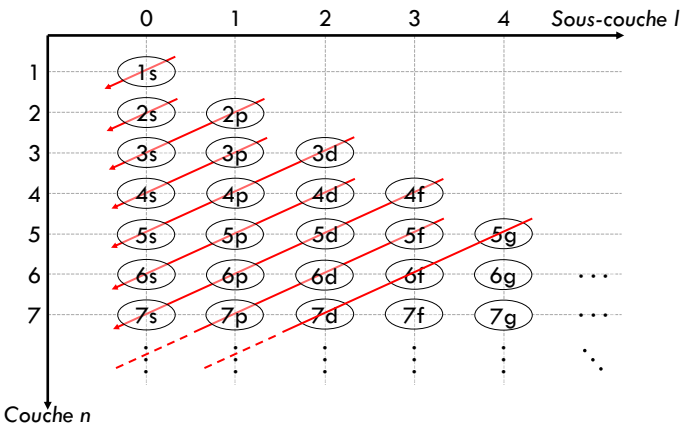



**Figure 1** – Définition de l'ordre de remplissage des orbitales d'un atome selon la règle de Klechkowsky.

Le principe d'exclusion de Pauli impose que chaque couche électronique ne peut garder au maximum que $2n^2$ électrons [224]. Par ailleurs, les orbitales s ne peuvent accueillir que 2 électrons, les orbitales $p$ n'accueillent au maximum que 6 électrons, les orbitales $d$ contiennent au maximum 10 électrons et les orbitales $f$ sont remplis avec 14 électrons [225]. Le nombre d'électrons sur une orbitale donnée est généralement indiqué en exposant. Les ions des lanthanides ont ainsi des configurations électroniques [1] de type [Xe] $4f^N\,5d^1\,6s^2$ avec $1 \leq N \leq 13$ qui, puisqu'elles sont semblables, leur confèrent des propriétés chimiques semblables [183]. En règle générale, ils perdent trois électrons pour donner des ions triplement ionisés (de type $Ln^{3+}$) et se vident des électrons des couches $5d$ et $6s$. L'orbitale $4f$ étant proche du noyau, les électrons qui s'y trouvent sont peu perturbés par l'environnement extérieur. Les transitions énergétiques des ions de terres rares du niveau $4f$ sont métastables, avec de très longues durées de vie sur le niveau excité (jusqu'à 10 ms), très favorables à l'inversion de population et donc à l'amplification [184].

Parmi toutes les propriétés des ions de terres rares, la plus importante pour l'amplification optique est leur fluorescence. Les ions de terres rares insérés dans des matrices cristallines présentent des transitions étroites alors que leurs spectres de fluorescence sont très étendus dans les matrices amorphes telles que les verres de silice. Ainsi, les ions de terres rares dans la silice présentent de larges bandes spectrales d'absorption et d'émission. Ces spectres sont évidemment propres à chaque élément de terres rares et dépendent des niveaux énergétiques qui le composent (Figure 2).

Le Tableau B.1 regroupent les longueurs d'onde d'absorption et d'émission de quelques lanthanides couramment utilisés en optique des lasers.

**Tableau B.1** – Longueurs d'onde d'absorption et d'émission d'ions de terres rares trivalents [226].

| Élément | Symbole | Numéro atomique | Longueur d'onde principale d'absorption | Longueur d'onde principale d'émission |
|---|---|---|---|---|
| **Néodyme** | Nd | 60 | **808 nm** | **1064 nm** |
| **Europium** | Eu | 63 | **356 nm** | **610 nm** |
| **Terbium** | Tb | 65 | **265 nm** | **540 nm** |
| **Holmium** | Ho | 67 | **1950 nm** | **2050 nm** |
| **Erbium** | Er | 68 | **980 nm** | **1550 nm** |
| **Thulium** | Tm | 69 | **1650 nm** | **1950 nm** |
| **Ytterbium** | Yb | 70 | **976 nm** | **1030 nm** |

1. Le terme [Xe] signifie que la répartition des électrons sur les premières orbitales est similaire à la configuration de xénon, c'est-à-dire : $1s^2\,2s^2\,2p^6\,3s^2\,3p^6\,3d^10\,4s^2\,4p^6\,4d^10\,5s^2\,5p^6$.

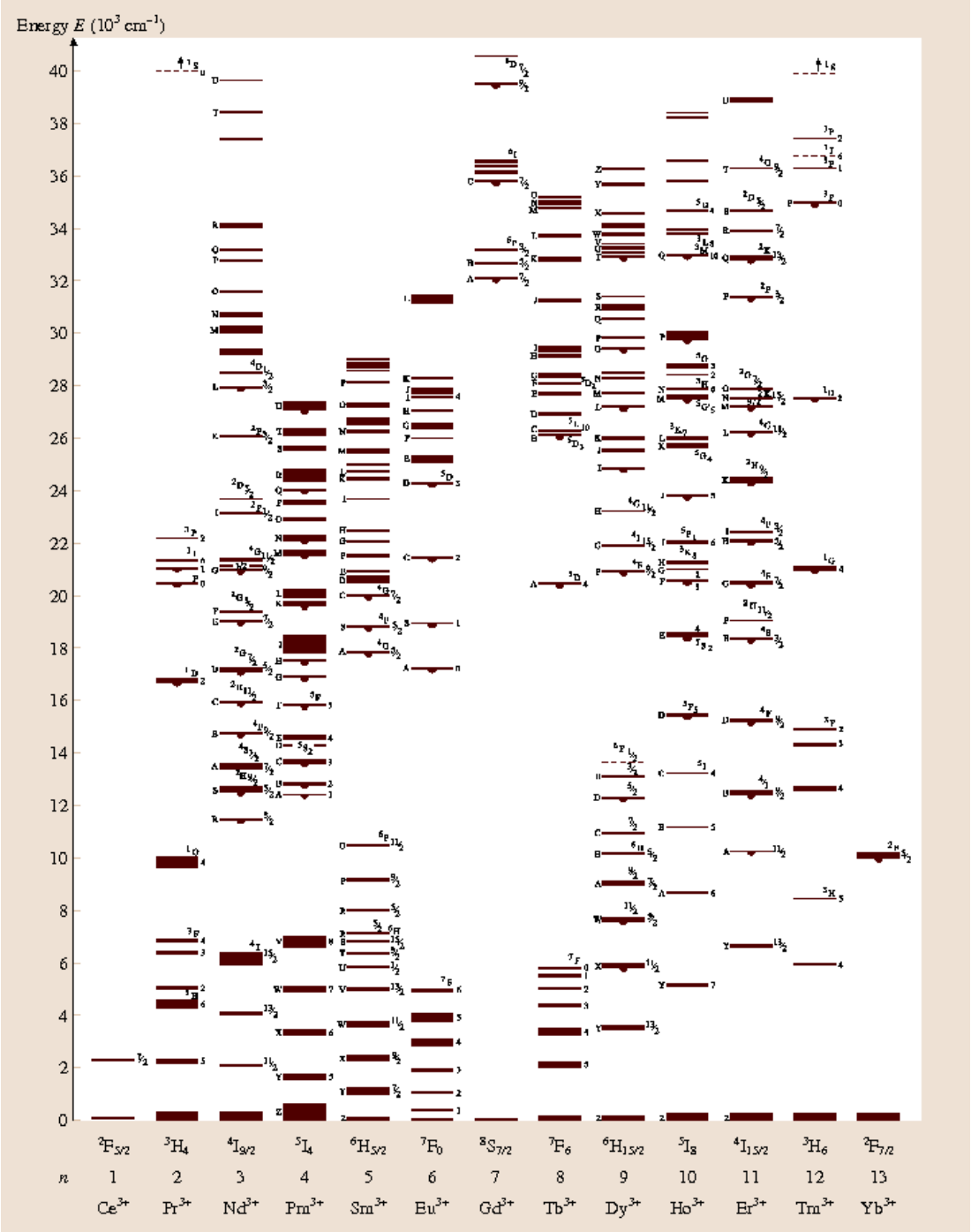



**Figure 2** – Diagrammes des niveaux d'énergie des ions de terres rares trivalents [226].

# Annexe C

# Génération de second harmonique dans la fibre SMF-Ge

## C.1 Principe de la génération de second harmonique

La susceptibilité non-linéaire d'ordre deux est nulle dans un matériau centrosymétrique comme la silice, rendant *a priori* impossible l'obtention d'effets non-linéaires d'ordre deux dans les fibres. Ils sont en revanche très présents dans les cristaux, où l'on retrouve des effets de mélange à trois ondes (somme et différence de fréquence), qui nécessitent un accord de phase de type :

$$\overrightarrow{k_1} + \overrightarrow{k_2} = \overrightarrow{k_3} \tag{C.1}$$

La génération de second harmonique (SHG) nécessite quant à elle un accord de phase de type :

$$2\overrightarrow{k(\omega)} + \overrightarrow{k(2\omega)} = \overrightarrow{0} \tag{C.2}$$

Toutefois, Österberg et Margulis ont montré en 1986 un effet de SHG dans des fibres dopées au Germanium [227]. Le doublage de fréquence est alors attribué à une rupture de la centrosymétrie de la silice par l'implantation d'ions [228].

En conséquence, lorsque l'on injecte une onde fondamentale et l'onde à la fréquence harmonique dans une fibre, le battement entre ces deux ondes peut entrainer la création d'un champ statique. Une modulation périodique de l'indice de réfraction du matériau est alors obtenue, permettant d'engendrer le second harmonique en régime de quasi-accord de phase [229]. Ce marquage périodique du milieu relève d'un processus d'inscription opto-optique qui perdure après la fin de l'excitation lumineuse.

L'inscription du réseau périodique, que l'on appelle « phase d'écriture », est illustrée sur la Figure 1a. La dynamique du processus d'écriture dépend de l'intensité et de l'absorption des deux ondes par le matériau ainsi que du temps d'exposition qui allongera la durée de vie pourtant

limitée de ce réseau photo-induit. En effet, celui-ci finit toujours par s'effacer progressivement lors d'une « phase de lecture », durant laquelle il permet de générer efficacement le second harmonique (Figure 1b) [187].

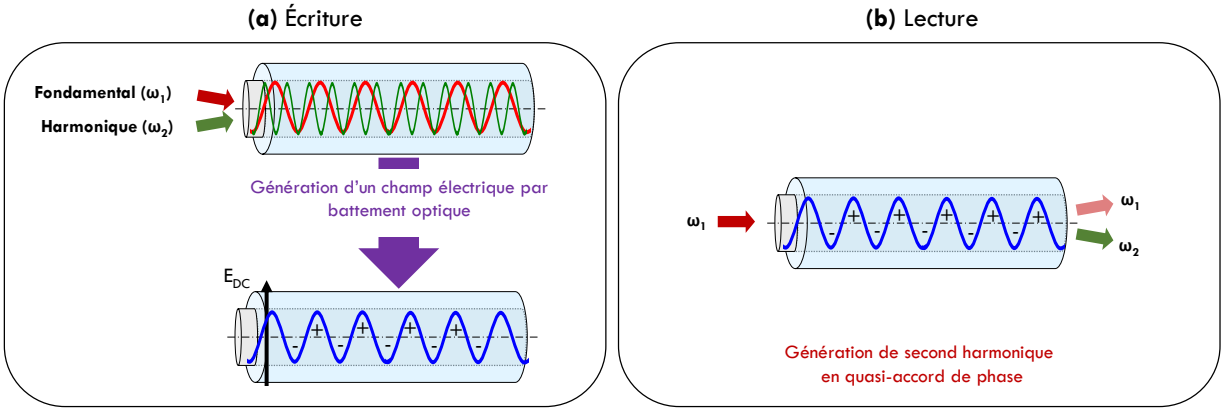



**Figure 1** – Description du phénomène de poling optique : (a) Écriture : création du réseau d'indice par le champ électrique statique généré par battement cohérent d'une onde à la fréquence fondamentale et de son second harmonique ; (b) Lecture : génération de second harmonique par le réseau d'indice éclairé par une onde à la fréquence fondamentale grâce au quasi-accord de phase obtenu par le réseau d'indice créé.

## C.2 Étude de la génération de second harmonique dans la fibre SMF-Ge

Le dopage au germanium du cœur de la fibre à hauteur de 3 mol.% engendre, comme nous l'avons indiqué précédemment, un effet de poling optique de la fibre. L'injection dans la fibre d'une forte puissance à 1064 nm (20 kW, soit une puissance moyenne de 400 mW) suffit à déclencher le processus d'écriture du réseau, qui se concrétise par l'apparition d'un faisceau à 532 nm. Après quelques minutes, la puissance moyenne du faisceau émergent à 532 nm est de l'ordre de 20 mW (rendement proche de 5 %).

Dans l'objectif de créer une source à intégrer dans un système de spectroscopie M-CARS, la présence d'une composante visible superposée spatialement à l'onde infrarouge peut être très utile. Je rappelle ici que la première démonstration de CARS multiplex utilisant un supercontinuum obtenu avec des impulsions subnanosecondes a été faite dans le visible grâce à un pompage à 532 nm [36].

Aux vues de la recherche bibliographique sur ce sujet, j'ai donc décidé d'étudier ce phénomène plus en profondeur. Pour cela, j'ai mesuré les spectres en sortie d'un tronçon de 2 m de fibre Hi980 à intervalles de temps régulier pendant 5 h (Figure 2). En dehors de l'augmentation conséquente de la puissance à 532 nm par SHG, les spectres demeurent quasi identiques dans la partie infrarouge. Seule une petite partie du signal à 1064 nm est convertie à 532 nm, ce qui entraine une légère diminution de l'élargissement spectral infrarouge, comme le montre la

Figure 2b (le spectre est plus étroit de 10 nm entre la courbe rouge et la courbe verte). Il est important de noter que des travaux précédemment, publiés par notre laboratoire, montraient que la puissance à 532 nm engendrée directement dans une fibre optique marquée, pouvait donner naissance à un spectre large dans le visible grâce à l'effet Raman et à la modulation de phase croisée entre l'onde fondamentale et son second harmonique [230, 231].

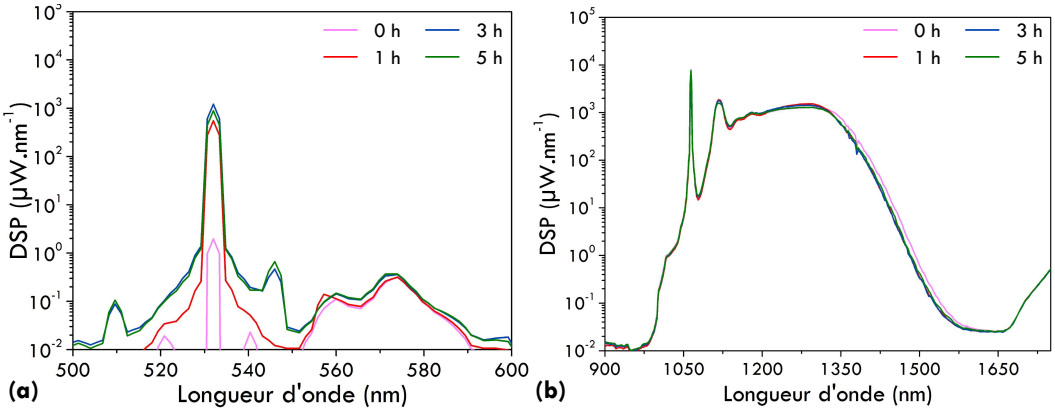



**Figure 2** – Spectres mesurés en sortie d'un tronçon de 2 m de fibre SMF-Ge dans lequel est injecté un signal à 1064 nm (P = 600 mW) après différents temps d'excitation : (a) entre 500 nm et 600 nm ; (b) : entre 900 et 1700 nm.

La fibre SMF-Ge n'étant monomode qu'à partir de 930 nm, le faisceau généré à 532 nm pourrait être potentiellement multimode. La fréquence spatiale normalisée calculée à 532 nm, égale à 4,34, est supérieure à la fréquence spatiale normalisée de coupure des modes $LP_{11}$ (= 2,405), $LP_{02}$ (= 3,83) et $LP_{21}$ (= 3,83). Ces trois modes peuvent donc se propager à 532 nm dans cette fibre. À cela s'ajoute le filtrage réalisé par le « poling optique », c'est-à-dire par la répartition spatiale de la non-linéarité d'ordre deux photo-inscrite. Il est donc important de caractériser l'émission à 532 nm d'un point de vue modal.

Pour vérifier la nature du mode, j'ai réalisé une image du champ proche de la sortie d'un tronçon de 4 m de fibre en incorporant un polariseur sur le trajet du faisceau au second harmonique. Un filtre passe-bande de 10 nm de large vient compléter cette expérience. J'ai alors fait varier la puissance de pompe entre 74 mW (3,6 kW) et 700 mW (34 kW). Les mesures sont présentées sur les Figures 3a et 3d.

Sans la sélection d'une polarisation particulière dans le faisceau de sortie, la forme spatiale qui se dégage est une superposition de plusieurs modes dont la résultante se rapproche de la forme d'un anneau modulé.

En sélectionnant une direction de polarisation correspondant à l'intensité maximale (« polarisation 0° », Figures 3b et 3e), puis en analysant l'axe perpendiculaire (« polarisation 90° », Figures 3c et 3f), on peut arriver à extraire les principales composantes spatiales du

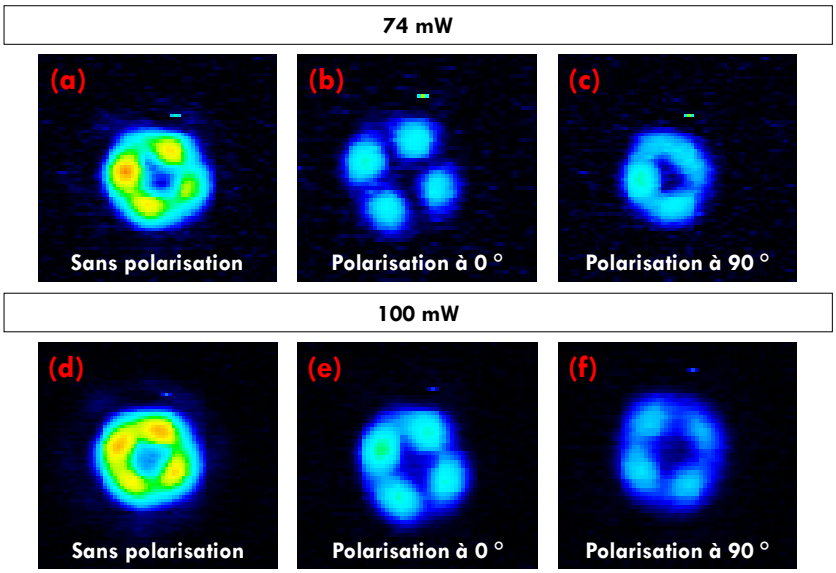



**Figure 3** – Profils d'intensités mesurés autour de 532 nm à la sortie d'un tronçon de 4 m de fibre SMF-Ge, après filtrage par un filtre passe bande ($\delta\lambda = 10$ nm), pour une puissance d'entrée de 74 mW ((a)-(c)) et pour une puissance d'entrée de 100 mW ((d)-(f)). Ces profils sont mesurés sans filtrage en polarisation ((a) et (d)), avec un filtrage par un polariseur rectiligne orienté à 0° ((b) et (e)) et à 90° ((c) et (f)).

faisceau. Les figures obtenues à ces deux positions particulières semblent indiquer que le champ est en réalité une combinaison linéaire de deux modes LP polarisés orthogonalement, c'est-à-dire une structure semblable aux modes hybrides $EH_{11}$ ou $HE_{31}$ [232] (qui composent le mode $LP_{21}$). Le champ représenté en Figure 2, sur laquelle quatre lobes apparaissent principalement démontre ainsi que le mode $LP_{21}$ polarisé selon l'axe 0° est le mode prépondérant de la combinaison linéaire.

# Production scientifique et bibliographie

# Production scientifique

**Brevets**

– C. Louot, D. Pagnoux, K. Krupa, B. M. Shalaby, A. Labruyère, A. Tonello, V. Couderc, « Dispositif de génération d'un faisceau de photons polychromatique et d'énergie sensiblement constante ».
*Brevet international WO2015139907 publié le 27 juillet 2017.*

**Publications dans des revues internationales à comité de lecture**

– E. Capitaine, N. Ould Moussa, C. Louot, S. M. Bardet, H. Kano, L. Duponchel, P. Lévêque, V. Couderc, and P. Leproux, « Fast epi-detected broadband multiplex CARS ans SHG imaging of mouse skull cells », Biomedical Optics Express **9**, 1 (December 2017).

– E. Capitaine, N. Ould Moussa, C. Louot, C. Lefort, D. Pagnoux, J.R. Duclère, J. F. Kaneyasu, H. Kano, L. Duponchel, V. Couderc, and P. Leproux, « Coherent anti-Stokes Raman scattering under electric field stimulation », Physical Review B **94**, 24 (December 2016).

– K. Krupa, C. Louot, V. Couderc, M. Fabert, R. Guenard, B. M. Shalaby, A. Tonello, D. Pagnoux, P. Leproux, A. Bendahmane, R. Dupiol, G. Millot, and S. Wabnitz, « Spatiotemporal Characterization of Supercontinuum Extending from the Visible to the Mid-Infrared in Multimode Graded-Index Optical Fiber », Optics Letters **41**, 24 (December 2016).

– B. M. Shalaby, C. Louot, E. Capitaine, K. Krupa, A. Labruyère, A. Tonello, P. Leproux, D. Pagnoux, and V. Couderc, « Spectro-temporal shaping of supercontinuum for subnanosecond time-coded Multiplex-CARS spectroscopy », Optics Letters **41**, 21 (October 2016).

– C. Louot, B. M. Shalaby, E. Capitaine, S. Hilaire, P. Leproux, D. Pagnoux, and V. Couderc, « Supercontinuum Generation in an Ytterbium-Doped Photonic Crystal Fiber for CARS Spectroscopy », IEEE Photonics Technology Letters **28**, 19 (October 2016).

**Communications à des congrès internationaux à comité de lecture**

– S. Wabnitz, K. Krupa, A. Tonello, A. Bendahmane, R. Dupiol, B. M. Shalaby, M. Fabert, C. Louot, R. Guenard, A. Barthelemy, G. Millot, and V. Couderc, « Spatiotemporal Nonlinear Beam Shaping », Latin America Optics and Photonics Conference 2016, paper **LTh2A.2**, Medellin, Colombia (August 2016).
*Communication orale avec publication dans les actes.*

– C. Louot, E. Capitaine, B. M. Shalaby, K. Krupa, A. Tonello, D. Pagnoux, C. Lefort, P. Leproux, and V. Couderc, « All-normal dispersion supercontinuum generation in the near-infrared by Raman conversion in standard optical fiber », Proc. SPIE 9731, Nonlinear Frequency Generation and Conversion : Materials, Devices, and Applications XV, **97310M**, Photonics West, San Francisco, USA (March 2016).
*Communication orale avec publication dans les actes (orateur).*

– E. Capitaine, C. Louot, N. Ould Moussa, C. Lefort, J. F. Kaneyasu, H. Kano, D. Pagnoux, V. Couderc, and P. Leproux, « M-CARS and EFISHG study of the influence of a static electric field on a non-polar molecule », Proc. SPIE 9712, Multiphoton Microscopy in the Biomedical Sciences XVI, **97120M**, Photonics West, San Francisco, USA (March 2016).
*Communication orale avec publication dans les actes.*

– F. El Bassri, C. Lefort, E. Capitaine, C. Louot, D. Pagnoux, V. Couderc, and P. Leproux, « Nanosecond coherent anti-Stokes Raman scattering for particle size characterization », Proc. SPIE 9703, Optical Biopsy XIV : Toward Real-Time Spectroscopic Imaging and Diagnosis, **970314**, Photonics West, San Francisco, USA (March 2016).
*Communication orale avec publication dans les actes.*

– D. Pagnoux, F. El Bassri, C. Louot, and V. Couderc, « Microwave assisted nanosecond CARS multiplex system », Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO) 2014, paper **SM3P.4**, San Jose, USA (June 2014).
*Communication orale avec publication dans les actes (orateur).*

**Communications à des congrès nationaux à comité de lecture**

– C. Louot, E. Capitaine, B. M. Shalaby, K. Krupa, P. Leproux, A. Tonello, D. Pagnoux et V. Couderc, « Génération de supercontinuum dans une fibre optique monomode standard en régime de dispersion normale par cascade Raman », 37$^{\text{ème}}$ édition des Journées Nationales d'Optique Guidée (JNOG'37), Rennes, France (Juillet 2017).
*Communication poster.*

– C. Louot, E. Capitaine, D. Pagnoux, P. Leproux, C. Lefort, A. De Angelis, V. Couderc, F. El Bassri et H. Kano, « Conversion de fréquence dans les fibres optiques : application à la microscopie non linéaire sous influence électrique », ENOVA, 4$^{\text{ème}}$ congrès des applications des Fibres Optiques, Paris, France (Septembre 2015).
*Communication orale invitée.*

– C. Louot, B. M. Shalaby, E. Capitaine, S. Hilaire, D. Pagnoux et V. Couderc, « Spectre infrarouge à forte densité spectrale de puissance dédiée à la spectroscopie CARS polychromatique », 35ème édition des Journées Nationales d'Optique Guidée (JNOG'35), Rennes, France (Juillet 2015).
*Communication orale (orateur).*
– C. Louot, E. Capitaine, F. El Bassri, D. Pagnoux, P. Leproux, H. Kano et V. Couderc, « Refroidissement moléculaire induit par champ électrique ; mise en évidence par spectroscopie non linéaire CARS », 14ème Colloque sur les Lasers et l'Optique Quantique (COLOQ 14), Rennes, France (Juillet 2015).
*Communication orale invitée.*

**Autres communications (workshops, symposiums et séminaires invités)**

– C. Louot, V. Couderc et D. Pagnoux, « Supercontinuum laser sources for Multiplex-CARS spectroscopy », Xlim - 6th Students Workshop, Limoges, France (Octobre 2016).
*Communication poster (présentateur).*
– K. Krupa, R. Guenard, A. Tonello, A. Bendahmane, R. Dupiol, B. M. Shalaby, M. Fabert, C. Louot, D. Pagnoux, P. Leproux, A. Barthélémy, G. Millot, S. Wabnitz et V. Couderc, « Coherent wavelength generation in multimode fibers », 4ème symposium du LAPHIA, Bordeaux, France (Septembre 2016).
*Communication orale.*
– P. Leproux, V. Couderc, E. Capitaine, N. Ould Moussa, C. Louot, C. Lefort, D. Pagnoux, H. Kano et J. F. Kaneyasu, « Multimodal imaging under supercontinuum illumination and electric field stimulation », 4ème symposium du LAPHIA, Bordeaux, France (Septembre 2016).
*Communication orale.*
– C. Louot, E. Capitaine, P. Leproux, D. Pagnoux et V. Couderc, « Supercontinuum laser sources for subnanosecond Multiplex-CARS spectroscopy », Université de Tsukuba, Japon (Décembre 2015).
*Séminaire invité dans le cadre d'un séjour de recherche à l'Université de Tsukuba, dans l'équipe de Hideaki Kano (orateur).*

# Bibliographie


[1] Jean-Marc Lévy-Leblond, *Impasciences* (Editions du Seuil, 2003).

[2] W. P. Griffith, "Advances in the Raman and infrared spectroscopy of minerals," Advances in spectroscopy **14**, 119–186 (1987).

[3] D. M. Mancini, L. Bolinger, H. Li, K. Kendrick, B. Chance, and J. R. Wilson, "Validation of near-infrared spectroscopy in humans," Journal of Applied Physiology **77**, 2740–2747 (1994).

[4] I. K. Lednev, T. Q. Ye, P. Matousek, M. Towrie, P. Foggi, F. V. R. Neuwahl, S. Umapathy, R. E. Hester, and J. N. Moore, "Femtosecond time-resolved UV-visible absorption spectroscopy of trans-azobenzene : dependence on excitation wavelength," Chemical Physics Letters **290**, 68–74 (1998).

[5] M Chen, X Wang, Y. H Yu, Z. L Pei, X. D Bai, C Sun, R. F Huang, and L. S Wen, "X-ray photoelectron spectroscopy and auger electron spectroscopy studies of Al-doped ZnO films," Applied Surface Science **158**, 134–140 (2000).

[6] A. Gillenwater, R. Jacob, and R. Richards-Kortum, "Fluorescence spectroscopy: A technique with potential to improve the early detection of aerodigestive tract neoplasia," Head & Neck **20**, 556–562 (1998).

[7] Y. Takagi and K. Kurihara, "Application of a microscope to Brillouin scattering spectroscopy," Review of Scientific Instruments **63**, 5552–5555 (1992).

[8] D. Pappas, B. W. Smith, and J. D. Winefordner, "Raman spectroscopy in bioanalysis," Talanta **51**, 131–144 (2000).

[9] C. V. Raman, "A change of Wavelength in Light scattering," Nature **121**, 619–619 (1928).

[10] A. K. Sood, J. Menéndez, M. Cardona, and K. Ploog, "Interface Vibrational Modes in GaAs-AlAs Superlattices," Physical Review Letters **54**, 2115–2118 (1985).

[11] R. S. Das and Y. K. Agrawal, "Raman spectroscopy : Recent advancements, techniques and applications," Vibrational Spectroscopy **57**, 163–176 (2011).

[12] D. I. Ellis and R. Goodacre, "Metabolic fingerprinting in disease diagnosis: biomedical applications of infrared and Raman spectroscopy," Analyst **131**, 875–885 (2006).

[13] J. R Baena and B. Lendl, "Raman spectroscopy in chemical bioanalysis," Current Opinion in Chemical Biology **8**, 534–539 (2004).

[14] A. V. Kachynski, A. N. Kuzmin, P. N. Prasad, and I. I. Smalyukh, "Coherent anti-Stokes Raman scattering polarized microscopy of three-dimensional director structures in liquid crystals," Applied Physics Letters **91**, 151905 (2007).

[15] L. G. Rodriguez, S. J. Lockett, and G. R. Holtom, "Coherent anti-stokes Raman scattering microscopy: A biological review," Cytometry Part A **69A**, 779–791 (2006).

[16] P. D. Maker and R. W. Terhune, "Study of Optical Effects Due to an Induced Polarization Third Order in the Electric Field Strength," Physical Review **137**, A801–A818 (1965).

[17] R. F. Begley, A. B. Harvey, and R. L. Byer, "Coherent anti Stokes Raman spectroscopy," Applied Physics Letters **25**, 387–390 (1974).

[18] P. R. Régnier and J. P. E. Taran, "On the possibility of measuring gas concentrations by stimulated anti Stokes scattering," Applied Physics Letters **23**, 240–242 (1973).

[19] R. J. Hall and L. R. Boedeker, "CARS thermometry in fuel-rich combustion zones," Applied Optics **23**, 1340–1346 (1984).

[20] R. D. Hancock, K. E. Bertagnolli, and R. P. Lucht, "Nitrogen and hydrogen CARS temperature measurements in a hydrogen/air flame using a near-adiabatic flat-flame burner," Combustion and Flame **109**, 323–331 (1997).

[21] P. Beaud, H. M. Frey, T. Lang, and M. Motzkus, "Flame thermometry by femtosecond CARS," Chemical Physics Letters **344**, 407–412 (2001).

[22] M. D. Duncan, J. Reintjes, and T. J. Manuccia, "Scanning coherent anti-Stokes Raman microscope," Optics Letters **7**, 350 (1982).

[23] A. Zumbusch, G. R. Holtom, and X. S. Xie, "Three-Dimensional Vibrational Imaging by Coherent Anti-Stokes Raman Scattering," Physical Review Letters **82**, 4142–4145 (1999).

[24] A. Rae, R. Stosch, P. Klapetek, A. R. Hight Walker, and D. Roy, "State of the art Raman techniques for biological applications," Methods : Tools and Methods for Cellular Localization and Measurements, **68**, 338–347 (2014).

[25] C. L. Evans and X. S. Xie, "Coherent Anti-Stokes Raman Scattering Microscopy : Chemical Imaging for Biology and Medicine," Annual Review of Analytical Chemistry **1**, 883–909 (2008).

[26] C. Heinrich, A. Hofer, A. Ritsch, C. Ciardi, S. Bernet, and M. Ritsch-Marte, "Selective imaging of saturated and unsaturated lipids by wide-field CARS-microscopy," Optics Express **16**, 2699–2708 (2008).

[27] X. Nan, E. O. Potma, and X. S. Xie, "Nonperturbative Chemical Imaging of Organelle Transport in Living Cells with Coherent Anti-Stokes Raman Scattering Microscopy," Biophysical Journal **91**, 728–735 (2006).

[28] E. O. Potma and X. S. Xie, "Detection of single lipid bilayers with coherent anti-Stokes Raman scattering (CARS) microscopy," Journal of Raman Spectroscopy **34**, 642–650 (2003).

[29] M. T. Cicerone, "Molecular imaging with CARS micro-spectroscopy," Current Opinion in Chemical Biology **33**, 179–185 (2016).

[30] C. L. Evans, E. O. Potma, M. Puoris'haag, D. Côté, C. P. Lin, and X. S. Xie, "Chemical imaging of tissue in vivo with video-rate coherent anti-Stokes Raman scattering microscopy," Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America **102**, 16807–16812 (2005).

[31] C. L. Evans, X. Xu, S. Kesari, X. S. Xie, S. T. C. Wong, and G. S. Young, "Chemically-

selective imaging of brain structures with CARS microscopy," Optics Express **15**, 12076 (2007).

[32] C. H. Camp Jr, Y. J. Lee, J. M. Heddleston, C. M. Hartshorn, A. R. Hight Walker, J. N. Rich, J. D. Lathia, and M. T. Cicerone, "High-speed coherent Raman fingerprint imaging of biological tissues," Nature Photonics **8**, 627–634 (2014).

[33] M. Lee, A ? Downes, Y.Y. Chau, B. Serrels, N. Hastie, A. Elfick, V. Brunton, M. Frame, and A. Serrels, "In vivo imaging of the tumor and its associated microenvironment using combined CARS / 2-photon microscopy," IntraVital **4**, e1055430 (2015).

[34] X. Chen, P. Gasecka, F. Formanek, J.-B. Galey, and H. Rigneault, "In vivo single human sweat gland activity monitoring using coherent anti-Stokes Raman scattering and two-photon excited autofluorescence microscopy," British Journal of Dermatology , n/a–n/a (2016).

[35] S. A. Akhmanov, N. I. Koroteev, and A. I. Kholodnykh, "Excitation of the coherent optical phonons of Eg-type in calcite by means of the active spectroscopy method," Journal of Raman Spectroscopy **2**, 239–248 (1974).

[36] M. Okuno, H. Kano, P. Leproux, V. Couderc, and H. Hamaguchi, "Ultrabroadband (>2000 cm ?1) multiplex coherent anti-Stokes Raman scattering spectroscopy using a subnanosecond supercontinuum light source," Optics Letters **32**, 3050–3052 (2007).

[37] Annalisa De Angelis, *Electro-optical pump-probe system suitable for the investigation of electroporated biological cells :*, Thèse de doctorat, Université de Limoges (2012).

[38] J. K. Ranka, R. S. Windeler, and A. J. Stentz, "Visible continuum generation in air-silica microstructure optical fibers with anomalous dispersion at 800 nm," Optics Letters **25**, 25–27 (2000).

[39] T. W. Kee and M. T. Cicerone, "Simple approach to one-laser, broadband coherent anti-Stokes Raman scattering microscopy," Optics Letters **29**, 2701–2703 (2004).

[40] J.X. Cheng, A. Volkmer, and X. S. Xie, "Theoretical and experimental characterization of coherent anti-Stokes Raman scattering microscopy," Journal of the Optical Society of America B **19**, 1363–1375 (2002).

[41] J.L. Oudar, R. W. Smith, and Y. R. Shen, "Polarization sensitive coherent anti Stokes Raman spectroscopy," Applied Physics Letters **34**, 758–760 (1979).

[42] J. J. Song, G. L. Eesley, and M. D. Levenson, "Background suppression in coherent Raman spectroscopy," Applied Physics Letters **29**, 567–569 (1976).

[43] J.X. Cheng, L. D. Book, and X. S. Xie, "Polarization coherent anti-Stokes Raman scattering microscopy," Optics Letters **26**, 1341–1343 (2001).

[44] F. El-Diasty, "Coherent anti-Stokes Raman scattering : Spectroscopy and microscopy," Vibrational Spectroscopy **55**, 1–37 (2011).

[45] Müller, Squier, De Lange, and Brakenhoff, "CARS microscopy with folded BoxCARS phasematching," Journal of Microscopy **197**, 150–158 (2000).

[46] J. A. Shirley, R. J. Hall, and A. C. Eckbreth, "Folded BOXCARS for rotational Raman studies," Optics Letters **5**, 380–382 (1980).

[47] J.X. Cheng, A. Volkmer, L. D. Book, and X. S. Xie, "An Epi-Detected Coherent Anti-

Stokes Raman Scattering (E-CARS) Microscope with High Spectral Resolution and High Sensitivity," The Journal of Physical Chemistry B **105**, 1277–1280 (2001).

[48] I. W. Schie, T. Weeks, G. P. McNerney, S. Fore, J. K. Sampson, S. Wachsmann-Hogiu, J. C. Rutledge, and T. Huser, "Simultaneous forward and epi-CARS microscopy with a single detector by time-correlated single photon counting," Optics Express **16**, 2168–2175 (2008).

[49] Erwan Capitaine, N. Ould Moussa, C. Louot, C. Lefort, D. Pagnoux, J.R. Duclère, J. F. Kaneyasu, H. Kano, L. Duponchel, V. Couderc, and P. Leproux, "Coherent anti-Stokes Raman scattering under electric field stimulation," Physical Review B **94** (2016), 10.1103/PhysRevB.94.245136.

[50] D. Pagnoux, F. El Bassri, C. Louot, and V. Couderc, "Microwave assisted nanosecond CARS multiplex system," in *CLEO: 2014*, OSA Technical Digest (online) (Optical Society of America, 2014) p. SM3P.4.

[51] M. Schmitt, G. Knopp, A. Materny, and W. Kiefer, "Femtosecond time-resolved coherent anti-Stokes Raman scattering for the simultaneous study of ultrafast ground and excited state dynamics : iodine vapour," Chemical Physics Letters **270**, 9–15 (1997).

[52] A. Volkmer, L. D. Book, and X. S. Xie, "Time-resolved coherent anti-Stokes Raman scattering microscopy : Imaging based on Raman free induction decay," Applied Physics Letters **80**, 1505–1507 (2002).

[53] C. Heinrich, C. Meusburger, S. Bernet, and M. Ritsch-Marte, "CARS microscopy in a wide-field geometry with nanosecond pulses," Journal of Raman Spectroscopy **37**, 675–679 (2006).

[54] H. Kano and H. Hamaguchi, "Femtosecond coherent anti-Stokes Raman scattering spectroscopy using supercontinuum generated from a photonic crystal fiber," Applied Physics Letters **85**, 4298–4300 (2004).

[55] M. Okuno, H. Kano, P. Leproux, V. Couderc, and H. Hamaguchi, "Quantitative coherent anti-Stokes Raman scattering microspectroscopy using a nanosecond supercontinuum light source," Optical Fiber Technology Fiber Supercontinuum sources and their applications, **18**, 388–393 (2012).

[56] C. Heinrich, S. Bernet, and M. Ritsch-Marte, "Wide-field coherent anti-Stokes Raman scattering microscopy," Applied Physics Letters **84**, 816–818 (2004).

[57] P.A. Champert, V. Couderc, P. Leproux, S. Février, V. Tombelaine, L. Labonté, P. Roy, C. Froehly, and P. Nérin, "White-light supercontinuum generation in normally dispersive optical fiber using original multi-wavelength pumping system," Optics Express **12**, 4366–4371 (2004).

[58] M. Okuno, H. Kano, P. Leproux, V. Couderc, and H. Hamaguchi, "Ultrabroadband multiplex CARS microspectroscopy and imaging using a subnanosecond supercontinuum light source in the deep near infrared," Optics Letters **33**, 923–925 (2008).

[59] M. Okuno, H. Kano, P. Leproux, V. Couderc, J. P. R. Day, M. Bonn, and H. Hamaguchi, "Quantitative CARS Molecular Fingerprinting of Single Living Cells with the Use of the Maximum Entropy Method," Angewandte Chemie International Edition **49**, 6773–6777

(2010).

[60] H. Mikami, M. Shiozawa, M. Shirai, and K. Watanabe, "Compact and fully collinear light source for broadband multiplex CARS microscopy covering the fingerprint region," Optics Express **23**, 17217 (2015).

[61] J. Vizet, S. Manhas, J. Tran, P. Validire, A. Benali, E. Garcia-Caurel, A. Pierangelo, A. De Martino, and D. Pagnoux, "Optical fiber-based full Mueller polarimeter for endoscopic imaging using a two-wavelength simultaneous measurement method," Journal of Biomedical Optics **21**, 071106–071106 (2016).

[62] K. Bito, M. Okuno, H. Kano, S. Tokuhara, S. Naito, Y. Masukawa, P. Leproux, V. Couderc, and H. Hamaguchi, "Protein Secondary Structure Imaging with Ultrabroadband Multiplex Coherent Anti-Stokes Raman Scattering (CARS) Microspectroscopy," The Journal of Physical Chemistry B **116**, 1452–1457 (2012).

[63] T. H. Maiman, "Stimulated Optical Radiation in Ruby," Nature **187**, 493–494 (1960).

[64] S. Forget, "Les principes de base du laser," (2004).

[65] C. Fabre and J.P.l Pocholle, *Les Lasers et leurs applications scientifiques*, Société Française d'Optique No. 4 (Les Editions de Physique, 1996).

[66] G. A. Ball and W. W. Morey, "Continuously tunable single-mode erbium fiber laser," Optics Letters **17**, 420–422 (1992).

[67] K. Tamura, H. A. Haus, and E. P. Ippen, "Self-starting additive pulse mode-locked erbium fibre ring laser," Electronics Letters **28**, 2226–2228 (1992).

[68] C. Delsart, *Lasers et optique non-linéaire*, Physique-LMD (Ellipses, 2008).

[69] E. P. Ippen, C. V. Shank, and A. Dienes, "Passive mode locking of the cw dye laser," Applied Physics Letters **21**, 348–350 (1972).

[70] D. Veitch, G. Kravvas, and F. Al-Niaimi, "Pulsed Dye Laser Therapy in the Treatment of Warts : A Review of the Literature," Dermatologic Surgery **43**, 485–493 (2017).

[71] T. R Kramer and R. J Noecker, "Comparison of the morphologic changes after selective laser trabeculoplasty and argon laser trabeculoplasty in human eye bank eyes," Ophthalmology **108**, 773–779 (2001).

[72] R. N. Hall, "Coherent light emission from p-n junctions," Solid-State Electronics **6**, 405–408 (1963).

[73] Philippe Caroff, *Croissance de boîtes quantiques d'InAs/InP(113)B pour les applications en télécommunications optiques*, Thèse de doctorat, INSA de Rennes (2005).

[74] P. Besnard and P.N. Favennec, *Le laser et ses applications*, Télécom (Hermès Science, 2011).

[75] M. C. Gather and S. H. Yun, "Single-cell biological lasers," Nature Photonics **5**, 406–410 (2011).

[76] T. Ennejah and R. Attia, "Mode Locked Fiber Lasers," in *Current Developments in Optical Fiber Technology* (Scitus Academics LLC, 2013).

[77] A. F. El-Sherif and T. A. King, "High-energy, high-brightness Q-switched Tm3+-doped fiber laser using an electro-optic modulator," Optics Communications **218**, 337–344 (2003).

[78] L. Chen, S. Zhao, and H. Zhao, "Passive Q-switching of a laser-diode-pumped intracavity-

frequency-doubling Nd :NYW/KTP laser with GaAs saturable absorber," Optics & Laser Technology **35**, 563–567 (2003).

[79] L. Dahlström, "Passive mode-locking and Q-switching of high power lasers by means of the optical Kerr effect," Optics Communications **5**, 157–162 (1972).

[80] Y. Shimony, Z. Burshtein, and Y. Kalisky, "Cr4+ :YAG as passive Q-switch and Brewster plate in a pulsed Nd :YAG laser," IEEE Journal of Quantum Electronics **31**, 1738–1741 (1995).

[81] J. Sarnecki, K. Kopczynski, Z. Mierczyk, J. Skwarcz, and J. Mlynczak, "Liquid-phase epitaxy growth and characterization of Co,Si :YAG thin film saturable absorber," Optical Materials **27**, 445–448 (2004).

[82] R. Herda and O. G. Okhotnikov, "Dispersion compensation-free fiber laser mode-locked and stabilized by high-contrast saturable absorber mirror," IEEE Journal of Quantum Electronics **40**, 893–899 (2004).

[83] J. J. Zayhowski and A. Mooradian, "Single-frequency microchip Nd lasers," Optics Letters **14**, 24–26 (1989).

[84] J. J. Zayhowski, J. Ochoa, and A. Mooradian, "Gain-switched pulsed operation of microchip lasers," Optics Letters **14**, 1318–1320 (1989).

[85] F. Sheng, J. Chen, and J.H. Ge, "Controllable high repetition rate gain-switched Nd:YVO4 microchip laser," Journal of Zhejiang University SCIENCE **6A**, 79–82 (2005).

[86] Y. Wang, L. Huang, M. Gong, H. Zhang, M. Lei, and F. He, "1 MHz repetition rate single-frequency gain-switched Nd:YAG microchip laser," Laser Physics Letters **4**, 580 (2007).

[87] P. Leproux, V. Couderc, A. de Angelis, M. Okuno, H. Kano, and H. Hamaguchi, "New opportunities offered by compact sub-nanosecond supercontinuum sources in ultra-broadband multiplex CARS microspectroscopy," Journal of Raman Spectroscopy **42**, 1871–1874 (2011).

[88] M. Brunel and M. Vallet, "Wavelength locking of CW and Q-switched $Er^{3+}$ microchip lasers to acetylene absorption lines using pump-power modulation," Optics Express **15**, 1612–1620 (2007).

[89] C. Gao, R. Wang, L. Zhu, M. Gao, Q. Wang, Z. Zhang, Z. Wei, J. Lin, and L. Guo, "Resonantly pumped 1.645 µm high repetition rate Er:YAG laser Q-switched by a graphene as a saturable absorber," Optics Letters **37**, 632–634 (2012).

[90] R. Lan, P. Loiko, X. Mateos, Y. Wang, J. Li, Y. Pan, S. Y. Choi, M. H. Kim, F. Rotermund, A. Yasukevich, K. Yumashev, U. Griebner, and V. Petrov, "Passive Q-switching of microchip lasers based on Ho:YAG ceramics," Applied Optics **55**, 4877–4887 (2016).

[91] W. L. Gao, J. Ma, G. Q. Xie, J. Zhang, D. W. Luo, H. Yang, D. Y. Tang, J. Ma, P. Yuan, and L. J. Qian, "Highly efficient 2 µm Tm:YAG ceramic laser," Optics Letters **37**, 1076–1078 (2012).

[92] W. Blanc, "Le développement des fibres optiques de silice," Matériaux & Techniques **101**, 23 (2013).

[93] Jérémy Vizet, *Conception d'un dispositif de caractérisation polarimétrique de Mueller à*

*travers une fibre optique endoscopique, destiné à l'imagerie biomédicale avancée*, Thèse de doctorat, Université de Limoges (2015).

[94] G. Fibich, "Derivation of the NLS," in *The Nonlinear Schrödinger Equation*, Applied Mathematical Sciences (Springer, Cham, 2015) pp. 3–18.

[95] Arnaud Malvache, *Optique non-linéaire à haute intensité : Compression d'impulsions laser Interaction laser-plasma*, Thèse de doctorat, Ecole Polytechnique X (2011).

[96] D. Pagnoux, J.-M. Blondy, P. Faugeras, and P. Facq, "Accurate modal characterization of passive components based on selective excitation of optical fibers," Fiber and Integrated Optics **10**, 49–56 (1991).

[97] E. E. Morales-Delgado, S. Farahi, I. N. Papadopoulos, D. Psaltis, and C. Moser, "Delivery of focused short pulses through a multimode fiber," Optics Express **23**, 9109–9120 (2015).

[98] S. Bianchi and . Di Leonardo, "A multi-mode fiber probe for holographic micromanipulation and microscopy," Lab on a Chip **12**, 635–639 (2012).

[99] T. Čižmár and K. Dholakia, "Exploiting multimode waveguides for pure fibre-based imaging," Nature Communications **3**, ncomms2024 (2012).

[100] Y. Choi, C. Yoon, M. Kim, T. D. Yang, C. Fang-Yen, R. R. Dasari, K. J. Lee, and W. Choi, "Scanner-free and wide-field endoscopic imaging by using a single multimode optical fiber," Physical review letters **109**, 203901 (2012).

[101] I. N. Papadopoulos, S. Farahi, C. Moser, and D. Psaltis, "High-resolution, lensless endoscope based on digital scanning through a multimode optical fiber," Biomedical Optics Express **4**, 260–270 (2013).

[102] E. E. Morales-Delgado, D. Psaltis, and C. Moser, "Two-photon imaging through a multimode fiber," Optics Express **23**, 32158–32170 (2015).

[103] R. Florentin, V. Kermene, J. Benoist, A. Desfarges-Berthelemot, D. Pagnoux, A. Barthélémy, and J.P. Huignard, "Shaping the light amplified in a multimode fiber," Light: Science & Applications **6**, e16208 (2017).

[104] K. Krupa, A. Tonello, B. M. Shalaby, M. Fabert, A. Barthélémy, G. Millot, S. Wabnitz, and V. Couderc, "Spatial beam self-cleaning in multimode fibres," Nature Photonics **11**, nphoton.2017.32 (2017).

[105] K. Inada, "A new graphical method relating to optical fiber attenuation," Optics Communications **19**, 437–439 (1976).

[106] G. Agrawal, "Chapter 1 - Introduction," in *Nonlinear Fiber Optics (Fifth Edition)*, Optics and Photonics (Academic Press, Boston, 2013) pp. 1–25.

[107] Eva Hemmer, Nallusamy Venkatachalam, Hiroshi Hyodo, Akito Hattori, Yoshie Ebina, Hidehiro Kishimoto, and Kohei Soga, "Upconverting and NIR emitting rare earth based nanostructures for NIR-bioimaging," Nanoscale **5**, 11339–11361 (2013).

[108] C. Emslie, "Chapter 8 - Polarization Maintaining Fibers," in *Specialty Optical Fibers Handbook*, edited by A. Méndez and T. F. Morse (Academic Press, Burlington, 2007) pp. 243–277.

[109] C. Xiong and W. J. Wadsworth, "Polarized supercontinuum in birefringent photonic crystal fibre pumped at 1064 nm and application to tuneable visible/UV generation,"

Optics Express **16**, 2438 (2008).
[110] M. R. Wilder, "Understanding and measuring chromatic dispersion," (2000).
[111] V. Brückner, *Elements of Optical Networking* (Springer Vieweg, 2011).
[112] P. Sansonetti, "Modal dispersion in single-mode fibres : simple approximation issued from mode spot size spectral behaviour," Electronics Letters **18**, 647–648 (1982).
[113] J. K. Ranka, R. S. Windeler, and A. J. Stentz, "Optical properties of high-delta air–silica microstructure optical fibers," Optics Letters **25**, 796 (2000).
[114] T. Hasegawa, E. Sasaoka, M. Onishi, M. Nishimura, Y. Tsuji, and M. Koshiba, "Hole-assisted lightguide fiber for large anomalous dispersion and low optical loss," Optics Express **9**, 681–686 (2001).
[115] Ambre Peyrilloux, *Modelisation et caracterisation des fibres microstructurees air- silice pour application aux telecommunications optiques*, Thèse de doctorat, Universite de Limoges (2003).
[116] Laurent Labonte, *Analyse theorique et experimentale des principales caracteristiques du mode fondamental dans les fibres optiques microstructurees air-silice*, Thèse de doctorat, Universite de Limoges (2005).
[117] F. Brechet, J. Marcou, D. Pagnoux, and P. Roy, "Complete Analysis of the Characteristics of Propagation into Photonic Crystal Fibers, by the Finite Element Method," Optical Fiber Technology **6**, 181–191 (2000).
[118] N. A. Mortensen, J. R. Folkenberg, M. D. Nielsen, and K. P. Hansen, "Modal cutoff and the $V$ parameter in photonic crystal fibers," Optics Letters **28**, 1879–1881 (2003).
[119] Stéphane Hilaire, *Conception, fabrication et caractérisation de fibres microstructurées dopées erbium pour application aux amplificateurs optiques*, Thèse de doctorat, Université de Limoges (2004).
[120] T. A. Birks, J. C. Knight, and P. St J. Russell, "Endlessly single-mode photonic crystal fiber," Optics Letters **22**, 961–963 (1997).
[121] J. C. Knight, T. A. Birks, R. F. Cregan, P. S. J. Russell, and P. D. de Sandro, "Large mode area photonic crystal fibre," Electronics Letters **34**, 1347–1348 (1998).
[122] T. Sørensen, J. Broeng, A. Bjarklev, E. Knudsen, and S. E. Barkou Libori, "Macro-bending loss properties of photonic crystal fibre," Electronics Letters **37**, 287–289 (2001).
[123] T. P. White, R. C. McPhedran, C. M. de Sterke, L. C. Botten, and M. J. Steel, "Confinement losses in microstructured optical fibers," Optics Letters **26**, 1660–1662 (2001).
[124] J. C. Knight, T. A. Birks, P. St. J. Russell, and D. M. Atkin, "All-silica single-mode optical fiber with photonic crystal cladding," Optics Letters **21**, 1547 (1996).
[125] L. Provino, L. Brilland, A. Monteville, D. Landais, O. Le Goffic, D. Tregoat, and D. Mechin, "Les fibres optiques microstructurées," Photoniques , 47–50 (2013).
[126] F. Benabid and P. J. Roberts, "Guidance mechanisms in hollow-core photonic crystal fiber," (International Society for Optics and Photonics, 2008) p. 69010U.
[127] S. Hill, C. E. Kuklewicz, U. Leonhardt, and F. König, "Evolution of light trapped by a soliton in a microstructured fiber," Optics Express **17**, 13588–13601 (2009).

[128] M. G. Banaee and J. F. Young, "High-order soliton breakup and soliton self-frequency shifts in a microstructured optical fiber," JOSA B **23**, 1484–1489 (2006).

[129] I. Cristiani, R. Tediosi, L. Tartara, and V. Degiorgio, "Dispersive wave generation by solitons in microstructured optical fibers," Optics Express **12**, 124–135 (2004).

[130] A. V. Husakou and J. Herrmann, "Supercontinuum generation, four-wave mixing, and fission of higher-order solitons in photonic-crystal fibers," Journal of the Optical Society of America B **19**, 2171 (2002).

[131] L. Abrardi, S. Martín-López, A. Carrasco-Sanz, F. Rodríguez-Barrios, P. Corredera, M. L. Hernanz, and M. González-Herráez, "Experimental Study on the Role of Chromatic Dispersion in Continuous-Wave Supercontinuum Generation," Journal of Lightwave Technology **27**, 426–435 (2009).

[132] A. Kudlinski, G. Bouwmans, O. Vanvincq, Y. Quiquempois, A. Le Rouge, L. Bigot, G. Mélin, and A. Mussot, "White-light cw-pumped supercontinuum generation in highly GeO_2-doped-core photonic crystal fibers," Optics Letters **34**, 3631 (2009).

[133] A. De Angelis, A. Labruyère, V. Couderc, P. Leproux, A. Tonello, H. Segawa, M. Okuno, H. Kano, D. Arnaud-Cormos, P. Lévèque, and H. Hamaguchi, "Time-frequency resolved analysis of a nanosecond supercontinuum source dedicated to multiplex CARS application," Optics Express **20**, 29705–29716 (2012).

[134] S. Coen, A. H. Chau, R. Leonhardt, J. D. Harvey, J. C. Knight, W. J. Wadsworth, and P. St J. Russell, "Supercontinuum generation by stimulated Raman scattering and parametric four-wave mixing in photonic crystal fibers," JOSA B **19**, 753–764 (2002).

[135] A. L. Gaeta, "Nonlinear propagation and continuum generation in microstructured optical fibers," Optics Letters **27**, 924–926 (2002).

[136] G. Genty, M. Lehtonen, H. Ludvigsen, J. Broeng, and M. Kaivola, "Spectral broadening of femtosecond pulses into continuum radiation in microstructured fibers," Optics Express **10**, 1083–1098 (2002).

[137] G. Agrawal, "Chapter 7 - Cross-Phase Modulation," in *Nonlinear Fiber Optics (Fifth Edition)*, Optics and Photonics (Academic Press, Boston, 2013) pp. 245–293.

[138] R. H. Stolen and C. Lin, "Self-phase-modulation in silica optical fibers," Physical Review A **17**, 1448–1453 (1978).

[139] X. Yang, F. Lu, X. Dong, Z. Li, X. Zhou, and C. Lu, "Four-wave-mixing-assisted room-temperature four-wavelength erbium-doped fiber lasers," Optical Engineering **45**, 064202–064202–4 (2006).

[140] E. M. Vartiainen, K.-E. Peiponen, and T. Tsuboi, "Analysis of coherent Raman spectra," JOSA B **7**, 722–725 (1990).

[141] D. Oron, N. Dudovich, and Y. Silberberg, "Femtosecond Phase-and-Polarization Control for Background-Free Coherent Anti-Stokes Raman Spectroscopy," Physical Review Letters **90**, 213902 (2003).

[142] C. L. Evans, E. O. Potma, and X. S. Xie, "Coherent anti-Stokes Raman scattering spectral interferometry : determinationof the real and imaginary components of nonlinear susceptibility ?(3) for vibrationalmicroscopy," Optics Letters **29**, 2923–2925 (2004).

[143] N. Dudovich, D. Oron, and Y. Silberberg, "Single-pulse coherently controlled nonlinear Raman spectroscopy and microscopy," Nature **418**, 512–514 (2002).

[144] S. Longhi, "Modulational instability and space time dynamics in nonlinear parabolic-index optical fibers," Optics Letters **28**, 2363 (2003).

[145] G. Millot, S. Pitois, P. Tchofo Dinda, and M. Haelterman, "Observation of modulational instability induced by velocity-matched cross-phase modulation in a normally dispersive bimodal fiber," Optics Letters **22**, 1686–1688 (1997).

[146] A. Mussot and A. Kudlinski, "Modulation instability: Loaded dice," Nature Photonics **6**, 415–416 (2012).

[147] J. M. Ralston and R. K. Chang, "Spontaneous-Raman-Scattering Efficiency and Stimulated Scattering in Silicon," Physical Review B **2**, 1858–1862 (1970).

[148] P. Tchofo Dinda, S. Wabnitz, E. Coquet, T. Sylvestre, H. Maillotte, and E. Lantz, "Demonstration of stimulated-Raman-scattering suppression in optical fibers in a multifrequency pumping configuration," JOSA B **16**, 757–767 (1999).

[149] G. P. Agrawal, "Chapter 5 - Optical Solitons," in *Nonlinear Fiber Optics (Fifth Edition)*, Optics and Photonics (Academic Press, Boston, 2013) pp. 129–191.

[150] Abdelkrim Bendahmane, *Propagation d'impulsions solitoniques dans des fibres optiques à dispersion variable*, Thèse de doctorat, Lille 1 (2014).

[151] C. R. Menyuk, "Soliton robustness in optical fibers," JOSA B **10**, 1585–1591 (1993).

[152] E. M. Dianov, A. Ya. Karasik, P. V. Mamyshev, A. M. Prokhorov, V. N. Serkin, M. F. Stel'Makh, and A. A. Fomichev, "Stimulated-Raman conversion of multisoliton pulses in quartz optical fibers," Soviet Journal of Experimental and Theoretical Physics Letters **41**, 242–244 (1985).

[153] N. Nishizawa and T. Goto, "Compact system of wavelength-tunable femtosecond soliton pulse generation using optical fibers," IEEE Photonics Technology Letters **11**, 325–327 (1999).

[154] M. E. Fermann, A. Galvanauskas, M. L. Stock, K. K. Wong, D. Harter, and L. Goldberg, "Ultrawide tunable Er soliton fiber laser amplified in Yb-doped fiber," Optics Letters **24**, 1428–1430 (1999).

[155] M. Andreana, A. Labruyère, A. Tonello, S. Wabnitz, P. Leproux, V. Couderc, C. Duterte, A. Cserteg, A. Bertrand, Y. Hernandez, D. Giannone, S. Hilaire, and G. Huss, "Control of near-infrared supercontinuum bandwidth by adjusting pump pulse duration," Optics Express **20**, 10750 (2012).

[156] R. R. Alfano and S. L. Shapiro, "Emission in the Region 4000 to 7000 \AA{} Via Four-Photon Coupling in Glass," Physical Review Letters **24**, 584–587 (1970).

[157] R. R. Alfano, L. L. Hope, and S. L. Shapiro, "Electronic Mechanism for Production of Self-Phase Modulation," Physical Review A **6**, 433–438 (1972).

[158] W. Werncke, A. Lau, M. Pfeiffer, K. Lenz, H. J. Weigmann, and C. D. Thuy, "An anomalous frequency broadening in water," Optics Communications **4**, 413–415 (1972).

[159] P. B. Corkum, C. Rolland, and T. Srinivasan-Rao, "Supercontinuum Generation in Gases," Physical Review Letters **57**, 2268–2271 (1986).

[160] J. Kasparian, R. Sauerbrey, D. Mondelain, S. Niedermeier, J. Yu, J.-P. Wolf, Y.-B. André, M. Franco, B. Prade, S. Tzortzakis, A. Mysyrowicz, M. Rodriguez, H. Wille, and L. Wöste, "Infrared extension of the supercontinuum generated by femtosecond terawatt laser pulses propagating in the atmosphere," Optics Letters **25**, 1397–1399 (2000).

[161] R. Šuminas, G. Tamošauskas, G. Valiulis, and A. Dubietis, "Spatiotemporal light bullets and supercontinuum generation in b-BBO crystal with competing quadratic and cubic nonlinearities," Optics Letters **41**, 2097–2100 (2016).

[162] C. R. Phillips, C. Langrock, M. M. Fejer, J. Jiang, I. Hartl, and M. E. Fermann, "Supercontinuum Generation near 2 µm in Periodically Poled Lithium Niobate Waveguides," in *CLEO:2011 - Laser Applications to Photonic Applications (2011), paper CTuQ2* (Optical Society of America, 2011) p. CTuQ2.

[163] M. Conforti, F. Baronio, and C. De Angelis, "Ultrabroadband Optical Phenomena in Quadratic Nonlinear Media," IEEE Photonics Journal **2**, 600–610 (2010).

[164] C. Langrock, M. M. Fejer, I. Hartl, and M. E. Fermann, "Generation of octave-spanning spectra inside reverse-proton-exchanged periodically poled lithium niobate waveguides," Optics Letters **32**, 2478–2480 (2007).

[165] O. Prakash, H.-H. Lim, B.-J. Kim, K. Pandiyan, M. Cha, and B. K. Rhee, "Collinear broadband optical parametric generation in periodically poled lithium niobate crystals by group velocity matching," Applied Physics B **92**, 535 (2008).

[166] K. Krupa, A. Labruyère, A. Tonello, B. M. Shalaby, V. Couderc, F. Baronio, and A. B. Aceves, "Polychromatic filament in quadratic media: spatial and spectral shaping of light in crystals," Optica **2**, 1058–1064 (2015).

[167] C. Lin and R. H. Stolen, "New nanosecond continuum for excited state spectroscopy," Applied Physics Letters **28**, 216–218 (1976).

[168] P. Baldeck and R. Alfano, "Intensity effects on the stimulated four photon spectra generated by picosecond pulses in optical fibers," Journal of Lightwave Technology **5**, 1712–1715 (1987).

[169] S. Coen, A. H. L. Chau, R. Leonhardt, J. D. Harvey, J. C. Knight, W. J. Wadsworth, and P. St. J. Russell, "White-light supercontinuum generation with 60-ps pump pulses in a photonic crystal fiber," Optics Letters **26**, 1356 (2001).

[170] L. Provino, J. M. Dudley, H. Maillotte, N. Grossard, R. S. Windeler, and B. J. Eggleton, "Compact broadband continuum source based on microchip laser pumped microstructured fibre," Electronics Letters **37**, 558–560 (2001).

[171] J. M. Dudley, L. Provino, N. Grossard, H. Maillotte, R. S. Windeler, B. J. Eggleton, and S. Coen, "Supercontinuum generation in air–silica microstructured fibers with nanosecond and femtosecond pulse pumping," Journal of the Optical Society of America B **19**, 765 (2002).

[172] A. V. Avdokhin, S. V. Popov, and J. R. Taylor, "Continuous-wave, high-power, Raman continuum generation in holey fibers," Optics Letters **28**, 1353–1355 (2003).

[173] A. Kudlinski and A. Mussot, "Visible cw-pumped supercontinuum," Optics Letters **33**, 2407–2409 (2008).

[174] G. Genty, T. Ritari, and H. Ludvigsen, "Supercontinuum generation in large mode-area microstructured fibers," Optics Express **13**, 8625–8633 (2005).

[175] E. Räikkönen, G. Genty, O. Kimmelma, M. Kaivola, K. P. Hansen, and S. C. Buchter, "Supercontinuum generation by nanosecond dual-wavelength pumping in microstructured optical fibers," Optics Express **14**, 7914–7923 (2006).

[176] H. Hundertmark, D. Kracht, D. Wandt, C. Fallnich, V. V. R. K. Kumar, A. K. George, J. C. Knight, and P. St J. Russell, "Supercontinuum generation with 200 pJ laser pulses in an extruded SF6 fiber at 1560 nm," Optics Express **11**, 3196–3201 (2003).

[177] V. V. R. K. Kumar, A. K. George, J. C. Knight, and P. St J. Russell, "Tellurite photonic crystal fiber," Optics Express **11**, 2641–2645 (2003).

[178] J. T. Gopinath, H. M. Shen, H. Sotobayashi, E. P. Ippen, T. Hasegawa, T. Nagashima, and N. Sugimoto, "Highly nonlinear bismuth-oxide fiber for smooth supercontinuum generation at 1.5 $\mu$m," Optics Express **12**, 5697–5702 (2004).

[179] R. R. Gattass, L. B. Shaw, V. Q. Nguyen, P. C. Pureza, I. D. Aggarwal, and J. S. Sanghera, "All-fiber chalcogenide-based mid-infrared supercontinuum source," Optical Fiber Technology Fiber Supercontinuum sources and their applications, **18**, 345–348 (2012).

[180] J. T. Moeser, N. A. Wolchover, J. C. Knight, and F. G. Omenetto, "Initial dynamics of supercontinuum generation in highly nonlinear photonic crystal fiber," Optics Letters **32**, 952–954 (2007).

[181] Bertrand Bertussi, *Etudes des mécanismes initiateurs de l'endommagement laser dans les composants optiques : Vers une amélioration de la tenue au flux*, Thèse de doctorat, Université de droit, d'économie et des sciences - Aix-Marseille III (2005).

[182] Laurent Gallais, *Endommagement laser dans les composants optiques : métrologie, analyse statistique et photo-induite des sites initiateurs*, Thèse de doctorat, Université de droit, d'économie et des sciences - Aix-Marseille III (2002).

[183] M. Digonnet, ed., *Rare-Earth-Doped Fiber Lasers and Amplifiers, Revised and Expanded*, Optical Science and Engineering (CRC Press, 2001).

[184] David Nicolas, *étude d'agrégats d'oxydes de terres rares*, Thèse de doctorat, Université Claude Bernard - Lyon I (2007).

[185] J. L. Blows, T. Omatsu, J. Dawes, H. Pask, and T. Mitsuhiro, "Heat Generation In Nd:YVO4 With and Without Laser Action," IEEE Photonics Technology Letters **10**, 1727–1729 (1998).

[186] M. Bolshtyansky, "Spectral Hole Burning in Erbium-Doped Fiber Amplifiers," Journal of Lightwave Technology **21**, 1032–1038 (2003).

[187] Y. Sasaki and Y. Ohmori, "Sum-Frequency Wave Generation in Optical Fibers," Journal of Optical Communications **4**, 83–90 (1983).

[188] D. Wood, K. Walker, J. MacChesney, J. Simpson, and R. Csencsits, "Germanium chemistry in the MCVD process for optical fiber fabrication," Journal of Lightwave Technology **5**, 277–285 (1987).

[189] E. H. Sekiya, P. Barua, K. Saito, and A. J. Ikushima, "Fabrication of Yb-doped silica

glass through the modification of MCVD process," Journal of Non-Crystalline Solids Glass and Related Materials 8, **354**, 4737–4742 (2008).

[190] S. D. Jackson, "Cross relaxation and energy transfer upconversion processes relevant to the functioning of 2 µm Tm3+-doped silica fibre lasers," Optics Communications **230**, 197–203 (2004).

[191] J. L. Wagener, D. J. DiGiovanni, P. F. Wysocki, M. J. F. Digonnet, and H. J. Shaw, "Effects of concentration and clusters in erbium-doped fiber lasers," Optics Letters **18**, 2014–2016 (1993).

[192] A. A. M. Saleh, R. M. Jopson, J. D. Evankow, and J. Aspell, "Modeling of gain in erbium-doped fiber amplifiers," IEEE Photonics Technology Letters **2**, 714–717 (1990).

[193] Z. J. Chen, A. B. Grudinin, J. Porta, and J. D. Minelly, "Enhanced Q switching in double-clad fiber lasers," Optics Letters **23**, 454–456 (1998).

[194] R. Paschotta, J. Nilsson, A.C. Tropper, and D.C. Hanna, "Ytterbium-doped fiber amplifiers," IEEE Journal of Quantum Electronics **33**, 1049–1056 (1997).

[195] Baptiste Leconte, *Développement de sources laser à fibre dopée Nd3+ pour une émission autour de 900 nm et 450 nm*, Thèse de doctorat, Université Caen Normandie (2016).

[196] "Encyclopedia of Laser Physics and Technology - double-clad fibers, cladding pumping, cladding-pumped fiber, high power, fiber lasers, amplifiers," .

[197] A. Roy, P. Leproux, P. Roy, J.L. Auguste, and V. Couderc, "Supercontinuum generation in a nonlinear Yb-doped, double-clad, microstructured fiber," Journal of the Optical Society of America B **24**, 788–791 (2007).

[198] L. Zenteno, "High-power double-clad fiber lasers," Journal of Lightwave Technology **11**, 1435–1446 (1993).

[199] Aude Roy, *Architectures de sources lasers blanches à fibres optiques microstructurées actives*, Thèse de doctorat, Université de Limoges (2008).

[200] P. H. Pioger, V. Couderc, P. Leproux, and P. A. Champert, "High spectral power density supercontinuum generation in a nonlinear fiber amplifier," Optics Express **15**, 11358–11363 (2007).

[201] R. Song, J. Hou, S. Chen, W. Yang, and Q. Lu, "High power supercontinuum generation in a nonlinear ytterbium-doped fiber amplifier," Optics Letters **37**, 1529–1531 (2012).

[202] F. Druon, F. Balembois, P. Georges, and A. Brun, "High-repetition-rate 300-ps pulsed ultraviolet source with a passively Q-switched microchip laser and a multipass amplifier," Optics Letters **24**, 499–501 (1999).

[203] J. T. Kringlebotn, P. R. Morkel, L. Reekie, J. L. Archambault, and D. N. Payne, "Efficient diode-pumped single-frequency erbium :ytterbium fiber laser," IEEE Photonics Technology Letters **5**, 1162–1164 (1993).

[204] J. A. Buck, *Fundamentals of Optical Fibers, 2nd Edition* (Wiley-Interscience, 2004).

[205] A. R. Chraplyvy, "Limitations on lightwave communications imposed by optical-fiber nonlinearities," Journal of Lightwave Technology **8**, 1548–1557 (1990).

[206] N. R. Newbury, "Pump-wavelength dependence of Raman gain in single-mode optical fibers," Journal of Lightwave Technology **21**, 3364–3373 (2003).

[207] V. Raghunathan, D. Borlaug, R. R. Rice, and B. Jalali, "Demonstration of a Mid-infrared silicon Raman amplifier," Optics Express **15**, 14355–14362 (2007).

[208] F. Leplingard, C. Martinelli, S. Borne, L. Lorcy, D. Bayart, F. Castella, P. Chartier, and E. Faou, "Modeling of multiwavelength Raman fiber lasers using a new and fast algorithm," IEEE Photonics Technology Letters **16**, 2601–2603 (2004).

[209] K. Rottwitt, J. Bromage, A. J. Stentz, Lufeng Leng, M. E. Lines, and H. Smith, "Scaling of the Raman gain coefficient : applications to germanosilicate fibers," Journal of Lightwave Technology **21**, 1652–1662 (2003).

[210] Z. A. T. Al-Qazwini, M. K. Abdullah, and M. B. Mokhtar, "Measurements of stimulated-Raman-scattering-induced tilt in spectral-amplitude-coding optical code-division multiple-access systems," Optical Engineering **48**, 015001–015001–6 (2009).

[211] J. AuYeung and A. Yariv, "Spontaneous and stimulated Raman scattering in long low loss fibers," IEEE Journal of Quantum Electronics **14**, 347–352 (1978).

[212] R. W. Boyd, *Nonlinear optics, Third Edition* (Elsevier, 2008).

[213] R. Sanchez-Lara, L. Cruz-May, G. G. Perez-Sanchez, R. Cuenca-Alvarez, and J. A. Alvarez-Chavez, "Evolution of the nth Stokes-wave due to stimulated Raman scattering in single-mode fibers," Optical Review **21**, 500–504 (2014).

[214] Vincent Tombelaine, *Etude de rayonnements à large bande spectrale induits dans les fibres optiques microstructurées air-silice*, Thèse de doctorat, Université de Limoges.

[215] J. G. Porquez, R. A. Cole, J. T. Tabarangao, and A. D. Slepkov, "Spectrally-broad coherent anti-Stokes Raman scattering hyper-microscopy utilizing a Stokes supercontinuum pumped at 800 nm," Biomedical Optics Express **7**, 4335 (2016).

[216] N. B. Terry, T. G. Alley, and T. H. Russel, "An explanation of SRS beam cleanup in graded-index fibers and the absence of SRS beam cleanup in step-index fibers," Optics Express **15**, 17509–17519 (2007).

[217] K. S. Chiang, "Stimulated Raman scattering in a multimode optical fiber: self-focusing or mode competition?" Optics Communications **95**, 235–238 (1993).

[218] S. Wielandy, "Implications of higher-order mode content in large mode area fibers with good beam quality," Optics Express **15**, 15402–15409 (2007).

[219] K. Krupa, C. Louot, V. Couderc, M. Fabert, R. Guenard, B. M. Shalaby, A. Tonello, D. Pagnoux, P. Leproux, A. Bendahmane, R. Dupiol, G. Millot, and S. Wabnitz, "Spatiotemporal characterization of supercontinuum extending from the visible to the mid-infrared in a multimode graded-index optical fiber," Optics Letters **41**, 5785–5788 (2016).

[220] G. De Angelis, G. Panariello, and A. Scaglione, "A Variational Method to Approximate the Field of Weakly Guiding Optical Fibers by Laguerre–Gauss-Bessel Expansion," Journal of Lightwave Technology **17**, 2665–2674 (1999).

[221] K. Krupa, A. Tonello, A. Barthélémy, V. Couderc, B. M. Shalaby, A. Bendahmane, G. Millot, and S. Wabnitz, "Observation of Geometric Parametric Instability Induced by the Periodic Spatial Self-Imaging of Multimode Waves," Phys. Rev. Lett. **116**, 183901 (2016).

[222] S. Trillo and S. Wabnitz, "Experimental observation of polarization instability in a birefringent optical fiber," Applied Physics Letters **49**, 1224 (1986).

[223] P. Hiberty and N. Trong Anh, *Introduction à la chimie quantique* (Les Éditions de l'École Polytechnique, 2008).

[224] Jean-Louis Rivail, *Éléments de chimie quantique à l'usage des chimistes* (CNRS Editions, 1999).

[225] Bernard Vidal, *Chimie quantique : de l'atome à la théorie de Hückel*, Enseignement de la chimie (Masson, 1993).

[226] O. Svelto, S. Longhi, G. Valle, S. Kück, G. Huber, M. Pollnau, H. Hillmer, S. Hansmann, R. Engelbrecht, H. Brand, J. Kaiser, A. Peterson, R. Malz, S. Steinberg, G. Marowsky, U. Brinkmann, A. Borsutzky, H. Wächter, M. Sigrist, E. Saldin, E. Schneidmiller, M. Yurkov, K. Midorikawa, J. Hein, R. Sauerbrey, and J. Helmcke, "Lasers and Coherent Light Sources," in *Springer Handbook of Lasers and Optics*, edited by Frank Träger Prof (Springer New York, 2007) pp. 583–936.

[227] U. Österberg and W. Margulis, "Dye laser pumped by Nd:YAG laser pulses frequency doubled in a glass optical fiber," Optics Letters **11**, 516 (1986).

[228] U. Österberg, L. A. Brambani, C. G. Askins, R. I. Lawconnell, and E. J. Friebele, "Modal evolution of induced second-harmonic light in an optical fiber," Optics Letters **16**, 132–134 (1991).

[229] R. H. Stolen and H. W. K. Tom, "Self-organized phase-matched harmonic generation in optical fibers," Optics Letters **12**, 585–587 (1987).

[230] V. Couderc, A. Tonello, C. Buy-Lesvigne, P. Leproux, and L. Grossard, "Unprecedented Raman cascading and four-wave mixing from second-harmonic generation in optical fiber," Optics Letters **35**, 145 (2010).

[231] V. Tombelaine, C. Lesvigne, P. Leproux, L. Grossard, V. Couderc, J.L. Auguste, J.M. Blondy, G. Huss, and P.H. Pioger, "Ultra wide band supercontinuum generation in air-silica holey fibers by SHG-induced modulation instabilities," Optics Express **13**, 7399 (2005).

[232] Duc Minh Nguyen, *Investigations et caractérisations de fibres et guides optiques très fortement non-linéaires*, Thèse de doctorat, Universite de Rennes 1 (2011).

**Sources de supercontinuum pour la microspectroscopie Raman cohérente large-bande**

**Résumé :** La microspectroscopie Raman cohérente (CARS) est une méthode d'analyse optique sans marqueur qui permet d'identifier des liaisons moléculaires dans un milieu d'intérêt (échantillon) pour permettre de déterminer la composition chimique de ce milieu. Elle nécessite l'excitation concomitante de l'échantillon par deux ondes spectralement décalées (onde pompe et onde Stokes) afin de faire entrer en résonance les liaisons à détecter. Pour la détection de plusieurs liaisons simultanément (microspectroscopie Raman cohérente large-bande ou Multiplex-CARS), la source Stokes monochromatique est remplacée par une source laser large-bande (supercontinuum). Les travaux effectués dans le cadre de cette thèse visent à proposer de nouvelles sources de supercontinuum émettant des faisceaux optimisés en termes d'élargissement spectral et de densité spectrale de puissance pour la microspectroscopie Multiplex-CARS. Pour ce faire, les moyens de développer des continuums spectraux performants ont été explorés dans trois fibres optiques différentes : une fibre microstructurées air/silice monomode à gros cœur dopé à l'ytterbium permettant une réamplification du signal tout au long de sa propagation ; une fibre monomode conventionnelle en régime de dispersion normale pour obtenir un élargissement spectral par saturation du gain Raman ; une fibre multimode dans laquelle le faisceau spectralement élargi par saturation du gain Raman à très forte puissance subit également un auto-nettoyage spatial par effet Kerr tout au long de sa propagation, produisant en sortie un faisceau de forte brillance dont le profil d'intensité est semblable à celui du mode fondamental. Une étude spectrotemporelle complète est présentée pour ces trois sources.

**Mots clés :** Génération de supercontinuum ; spectroscopie Raman cohérente ; instrumentation optique ; optique non-linéaire ; fibre optique ; fibre amplificatrice ; cascade Raman.

**Supercontinuum laser sources for broadband CARS microspectroscopy**

**Abstract:** Coherent Raman microspectroscopy (CARS) is an optical method used to identify molecular bonds in a sample in order to analyze and determine its complete composition. It requires the simultaneous excitation of the sample by two waves (the pump wave and the Stokes wave) in order to induce resonant vibration of the bond to be detected. For multiple bonds analysis (broadband coherent Raman microspectroscopy our Multiplex-CARS), the monochromatic Stokes wave must be replaced by a broadband beam (supercontinuum). The aim of this thesis was to design supercontinuum sources optimized for Multiplex-CARS application, in particular in terms of spectral bandwidth and spectral power density. Supercontinuum generation was investigated in three different optical fibers : (i) a microstructured single mode fiber with a large Yb doped core in which the input beam was re-amplified all along its propagation ; (ii) a conventional singlemode fiber pumped in the normal dispersion regime in which spectral broadening was achieved by means of Raman gain saturation ; (iii) a conventional graded-index multimode fiber in which the beam spectrally broadened by Raman gain saturation at very high power also experienced spatial self-cleaning by Kerr effect, resulting in a high brilliance output beam with an intensity profile close to that of the fundamental mode. A complete spectrotemporal study is achieved for each of these three sources.

**Keywords:** Supercontinuum generation ; CARS spectroscopy ; optical instrumentation ; nonlinear optics ; optical fiber ; fiber amplifiers ; Raman cascading.

**Institut de Recherche Xlim - UMR CNRS n°7252**
**Axe Photonique Fibre et Sources Cohérentes**
Campus La Borie - 123 Avenue Albert Thomas - 87060 LIMOGES CEDEX