

**Université de Limoges**  
**ED 653 - Sciences et Ingénierie (SI)**  
**Laboratoire XLIM et IRCER**

Thèse pour obtenir le grade de  
**Docteur de l'Université de Limoges**  
Électronique des Hautes Fréquences, Photonique et Systèmes

Présentée et soutenue par  
**MAXIME JONARD**

Le 15 décembre 2023

# **Influence des Paramètres Structuraux de la Silice sur la Non-Linéarité Quadratique Imprimée dans les Fibres Optiques Multimodes**

Thèse dirigée par Jean René Duclère, Claire Lefort et Maggy Colas

JURY :

Rapporteurs

Mme. Christine Martinet, Ingénieure de recherche, Université de Lyon, iLM

M. Yves Quiquempois, Professeur des universités, Université de Lille, PhLAM

Examineur

M. Johan Bouillet, Ingénieur R&D, Institut d'optique, LP2N

M. Jean-François Bardeau, Directeur de recherche CNRS, Université du Mans,  
IMMM

Invité

M. Vincent COUDERC, Directeur de recherche CNRS, XLIM



À toi qui lis cette phrase.

*“Ce n'est pas la lumière qui manque à notre regard,  
c'est notre regard qui manque de lumière.”*  
**Gustave Thibon**

## Remerciements

---

Je tiens tout d'abord à exprimer ma gratitude envers mes supérieurs, Claire Lefort, Maggy Colas et Jean René Duclère, pour leur soutien constant et leur contribution essentielle à mes trois années de thèse. Leurs conseils avisés et leur présence ont été précieux, m'apportant un enseignement tant intellectuel qu'humain, ainsi que des compétences variées qui me seront bénéfiques tout au long de ma vie.

Un grand merci également à Vincent Couderc pour son soutien inconditionnel, même lors de la défaite de la France contre l'Afrique du Sud, et surtout tout au long de ma thèse malgré les nombreuses sollicitations auxquelles je lui soumettais. Je suis convaincu que Georges Brassens parlait de lui dans sa chanson sur l'Auvergnat.

Je souhaite également exprimer ma reconnaissance envers Tigran Mansuryan, Julie Cornette et Alessandro Tonello pour leur enseignement et leur accompagnement dans mes travaux sur les manipulations expérimentales, le Raman et les simulations, respectivement.

Je remercie chaleureusement tous les membres permanents de l'équipe pour leur disponibilité et leur aide, en particulier Marc Fabert et Julien Brévier.

Un merci spécial à Yann Leventoux et Raphaël Jauberteau, qui m'ont accueilli en premier lieu. Le premier partage mon amour pour le Saint-Nectaire, tandis que le second partage mon attachement pour une célèbre chaîne de fast-food. Leurs perspectives différentes m'ont permis de mieux appréhender la vie d'un doctorant.

Je tiens à souligner l'excellente collaboration franco-espagnole avec Yago Arosa, ainsi qu'à féliciter Ali Al Dhaybi pour son travail au laboratoire et sa passion pour la castration du maïs.

Un merci particulier à Lynn Sader pour son soutien lors de la rédaction de ma thèse, ainsi qu'à tous les doctorants d'XLIM et d'IRCER avec qui j'ai partagé des moments conviviaux autour d'une bière.

Mes remerciements vont également à Colman et Jérémy pour nos afterworks, ainsi qu'au club de peinture du lundi midi pour ces moments de détente.

Je souhaite exprimer ma profonde gratitude envers ma famille pour leur soutien indéfectible tout au long de ces huit années d'études, ainsi qu'à ma sœur et mon beau-frère pour leur précieuse contribution à mon parcours.

À Anna Tran, qui partage ma vie depuis cinq ans, je suis reconnaissant pour son soutien et sa présence malgré la distance et les obstacles que nous avons surmontés ensemble.

Je tiens à remercier mes amis de longue date, Florian Dumas, Jérémy Teron, Nicolas Chargueraud, Herbert Knoblauch et Emeric Fayet, ainsi que Nathan Guerout, Samuel Magrin et Quentin Pereira pour leur amitié et leur soutien.

Enfin, un merci sincère à Benjamin Gobé pour nos moments partagés en licence pro. Tu es une rencontre précieuse et je suis reconnaissant pour ces souvenirs. Tu as une belle barbe, c'est sérieux. Et pour répondre à quelques points : non, tu n'as pas été limogé de ton plein gré ; oui,

il est temps de venir en Auvergne ; oui, nous devons jouer au mini-golf ensemble. D'habitude, on n'établit pas de liste dans les remerciements, mais je fais une exception pour toi.

Un merci également au correcteur automatique, même s'il n'est pas toujours parfait à 100%.

À la société Orges et Houblon ainsi qu'à la Firenze à Limoges, qui auraient pu financer ma thèse, je témoigne ma reconnaissance.

Je pourrais continuer ainsi indéfiniment, mais toute chose a une fin. Si j'ai omis de vous mentionner dans mes remerciements, veuillez accepter mes excuses. Voir page 2.

Cordialement, Maxime JONARD

## Droits d'auteurs

---

Cette création est mise à disposition selon le Contrat :

« **Attribution-Pas d'Utilisation Commerciale-Pas de modification 3.0 France** »

disponible en ligne : <http://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/3.0/fr/>



## Table des matières

Introduction .....	11
Chapitre I. Les fibres optiques multimodes à gradient d'indice .....	15
I.1. Procédés de fabrication d'une MMGRIN .....	15
I.1.1. Conception d'une fibre optique .....	15
I.1.1.1. Procédés de fabrication de la préforme : MCVD et OVD .....	15
I.1.1.2. Différentes étapes du fibrage .....	18
I.1.2. Les paramètres clés du fibrage : températures, vitesse, tension.....	20
I.2. Approche vibrationnelle pour caractériser la structure locale de la silice .....	21
I.2.1. Caractéristiques générales de la formation du verre - la température de transition vitreuse $T_g$ .....	21
I.2.2. La température fictive .....	22
I.2.3. Spectroscopie Raman .....	25
I.2.3.1. Description quantique .....	25
I.2.3.2. Théorie de la diffusion Raman .....	26
I.2.4. Structure des fibres optiques en silice, apport des spectroscopies vibrationnelles, attribution des modes de vibration.....	27
Imagerie Raman.....	30
Imagerie infrarouge (IR) .....	32
I.3. Propagation et non-linéarités dans les fibres optiques : Etat de l'art.....	33
I.3.1. Polarisabilité et susceptibilités optiques linéaire et non linéaires.....	33
I.3.1.1. Susceptibilité linéaire du premier ordre : indice de réfraction et coefficient d'absorption .....	34
I.3.1.2. Susceptibilité non linéaire du second ordre et considérations de symétrie du matériau.....	35
I.3.1.3. Susceptibilité non linéaire du troisième ordre .....	36
I.3.1. Propagation dans les fibres optiques multimodes .....	37
I.3.1.1. Propagation linéaire dans les fibres optiques .....	37
I.3.1.2. Origine des dynamiques non linéaires.....	41
I.3.1.2.1. Automodulation de phase et élargissement spectral de type Kerr.....	41
I.3.1.2.2. Autonettoyage par effet Kerr .....	43
I.3.1.2.3. Effet Raman .....	45
I.3.1.3. L'équation non linéaire de Schrödinger dans les MMGRIN .....	46
I.3.1.4. Conversion de fréquence par instabilité géométrique paramétrique (GPI).....	48
I.3.2. Inscription de non-linéarité d'ordre 2 par poling dans les fibres optiques .....	50
I.3.2.1. Poling thermoélectrique .....	50
I.3.2.2. Poling optique .....	51
I.3.2.2.1. Contexte historique du poling optique.....	52
I.3.2.2.2. Poling optique dans les fibres monomodes.....	53
I.3.2.2.3. Poling optique dans les fibres multimodes à gradient d'indice .....	53
I.3.2.2.4. Etat de l'art du rôle de l'élément dopant dans le poling .....	54
Chapitre II. Aptitude des fibres MMGRIN au poling .....	57
II.1. Contexte du travail .....	57
II.1.1. Montage expérimental .....	57
II.1.2. Caractéristiques de la puissance moyenne de la FF et SH.....	60
II.2. Caractérisation des spécifications des fibres MMGRIN .....	62

II.2.1. Mesure de l'indice de réfraction par IFA .....	62
II.2.2. Accès à la microstructure et à la composition chimique des diverses fibres.....	64
II.2.3. Discussion et conclusion sur le besoin d'un autre type de caractérisation .....	68
II.3. Caractérisation optique du poling.....	69
II.3.1. Modes transverses de propagation : auto-nettoyage spatial des faisceaux FF et SH dans le temps.....	69
II.3.2. Caractérisation de l'inscription de la non-linéarité d'ordre 2.....	71
II.4. Impact de l'inscription d'une non-linéarité d'ordre 2 sur l'apparition des non-linéarités d'ordre 3 .....	75
II.4.1. Caractérisation spectrale de l'apparition des effets non linéaires d'ordre 3 pendant le temps de poling optique.....	75
II.4.2. Caractérisation des durées d'impulsions du $\chi^{(2)}$ et du $\chi^{(3)}$ .....	78
II.4.3. Dépendance des effets non linéaires avec la longueur de la fibre .....	81
II.4.4. Rôle de l'accord de phase dans la création de nouvelles fréquences .....	83
II.4.4.1. Simulation de l'apparition des fréquences du peigne.....	83
II.4.4.2. Montage expérimental.....	85
II.4.4.3. Résultats expérimentaux.....	86
II.5. Conclusion .....	88
Chapitre III. Corrélation structure-propriété des fibres .....	91
III.1. Détermination de la structure locale des fibres optiques .....	91
III.1.1. Méthode d'analyse Raman .....	91
III.1.2. Prétraitement des données.....	92
III.1.2.1. Les rayons cosmiques .....	93
III.1.2.2. Sélection de la gamme spectrale .....	93
III.1.2.3. Soustraction de la ligne de base .....	93
III.1.2.4. Normalisation des données.....	94
III.1.2.5. Evolution de la fréquence du mode D1 dans la fibre .....	94
III.2. Caractérisation de la structure locale des fibres.....	97
III.2.1. Principe de l'analyse Raman (composantes principales).....	97
III.2.2. Analyse de la structure locale de la silice par spectroscopie Raman (D1 et D2) .....	100
III.2.3. Comparaison de la structure locale avant et après poling.....	102
III.2.4. Rôle de la température fictive lors du processus de fibrage sur l'aptitude de la fibre à être sensible au processus de poling.....	105
III.2.5. Détermination de la $T_f$ « absolue » par spectroscopie IR .....	107
III.2.6. Conclusion.....	110
Conclusion et Perspectives .....	113
Références bibliographiques .....	116

## Table des abréviations

---

ACP : analyse en composantes principales  
CP : composantes principales  
DFG : difference frequency generation  
EDX : énergie dispersive de rayons X  
FF : fréquence fondamentale  
FTIR : fourier-transform infrared spectroscopy  
FWHM : full width at half maximum  
FWM : Four-wave mixing  
GPI : geometrical parametric instabilities  
GRIN : gradient d'indice  
HALF : hydrolyse à la flamme  
HE, EH : modes hybrides  
IFA : interferometric fiber analyser  
IR : infrarouge  
KTP : titanyl phosphate de potassium  
LP : linearly polarized  
LPF : long pass filter  
MCVD : modified chemical vapor deposition  
MEB : microscope électronique à balayage  
MMF : multimode fiber  
MMGRIN : multimodes à gradient d'indice  
n : indice de réfraction  
Nd: YAG : neodymium-doped yttrium aluminium garnet  
ON : ouverture numérique  
OVD : outside vapor deposition  
PCF : photonic crystal fibres  
PCVD : plasma chemical vapor deposition  
PMT : photomultiplier tube  
PPLN : periodically poled lithium niobate  
QPM : quasi phase matching  
SFG : sum frequency generation  
SFS : self-frequency shift

SH : seconde harmonique  
SHG : second harmonic generation  
SMF : single mode fiber  
SPF : short pass filter  
SPM : self-phase modulation  
SRS : stokes Raman scattering  
Tc : température de cristallisation  
TE : modes transverses électriques  
TF : température de fusion  
Tf : température fictive  
Tg : transition vitreuse  
TM : modes transverses magnétiques  
VAD : vapor axial deposition  
 $\beta$  : constantes de propagation  
 $\chi^{(2)}$  : susceptibilité quadratique  
 $\chi^{(3)}$  : susceptibilité non linéaire du troisième ordre

## Introduction

---

Les trois dernières décennies ont été marquées par un certain nombre d'avancées remarquables dans le domaine général de la fibre optique. Ces avancées ont non seulement permis une large prolifération de l'internet, mais ont également radicalement transformé la fabrication industrielle, la chirurgie au laser, la microscopie optique et la détection, pour n'en citer que quelques-unes. Sans aucun doute, l'une des plus grandes innovations dans ce domaine a été le développement des fibres à cristaux photoniques (PCF) qui, à leur tour, ont ouvert des possibilités sans précédent en termes de contrôle de leur réponse non linéaire par le biais de l'ingénierie de la dispersion et de la conception structurelle [Russel 2006, Knight 2003]. À cet égard, les PCF sont aujourd'hui utilisées commercialement pour mettre en œuvre des sources supercontinuum ultra-lumineuses et spatialement cohérentes, couvrant la gamme de longueurs d'onde allant de l'ultraviolet à l'infrarouge moyen [Ranka 2000, Wadsworth 2004, Dudley 2006, Stone et Knight 2008]. Les lasers fibrés représentent un autre domaine qui a connu une croissance remarquable au cours de cette même période [Richardson 2010, Jauregui 2013, Hädrich 2016, Gaida 2016]. Ce qui a fait le succès de cette catégorie de lasers, c'est l'extensibilité notable de leur puissance, leur polyvalence spectrale et temporelle, leur haut rendement et leur capacité à être intégrés dans des systèmes robustes et modulaires. Ainsi, des lasers à fibre avec des niveaux de puissance crête de l'ordre du méga Watt, capables de produire des rayonnements continus ou des impulsions ultra-courtes, sont désormais facilement disponibles. Comme pour la plupart des technologies qui ont connu une progression soudaine de leurs capacités, il ne faudra pas attendre longtemps avant que des contraintes physiques n'apparaissent pour freiner les progrès futurs. En effet, les limites non linéaires et les seuils d'endommagement des fibres à petit cœur existantes sont maintenant approchés, imposant des restrictions sur les énergies/puissances d'impulsion maximales que l'on peut attendre des lasers fibrés et des sources de supercontinuum actuels [Richardson 2010, Jauregui 2013, Smith, 2009].

Tout aussi important dans cette discussion est le fait que la plupart des nouveaux développements en matière de sources lumineuses à fibres reposent jusqu'à présent presque exclusivement sur des technologies de fibres monomodes (ou quasi monomodes) [Wadsworth 2004, Dudley 2006, Stone et Knight 2008, Richardson 2010, Stone et Knight 2012, Birks 2000, Lesvigne 2007, Birks 1997]. Il est clair qu'une approche directe et évidente pour surmonter certaines des limitations susmentionnées consiste à utiliser des fibres multimodes de grand cœur. Les fibres optiques multimodes (MMF) sont courantes et ont même précédé les fibres monomodes (SMF). Toutefois, la largeur de bande élevée et la simplicité structurelle des fibres SMF ont entraîné une baisse de l'intérêt pour les systèmes multimodes au début des années 1980. Aujourd'hui, les fibres multimodes connaissent un regain d'intérêt car elles promettent des largeurs de bande encore plus élevées grâce au multiplexage par répartition spatiale qui est devenu un nouveau paradigme dans les communications par fibre optique [Richardson 2013, Sillard 2014]. Le foisonnement d'activités qui s'en est suivi a non seulement conduit à de nouvelles classes de composants MMF (pour l'amplification, la commutation, le traitement des

signaux multimodes, etc.) [Lopez-Galmiche 2016a, Leon-Sava 2014, Fontaine 2012], mais il a également incité à repenser de manière critique la façon dont les processus non linéaires se déroulent dans les environnements multimodes - un aspect qui est resté jusqu'à présent largement inexploré. En effet, les effets non linéaires (auto-modulation de phase et modulation de phase croisée, cascade Raman, mélange à quatre ondes, etc.) ont été traditionnellement étudiés dans les fibres SMF [Agrawal 2007], par opposition aux MMF plus complexes qui peuvent en principe prendre en charge des milliers de modes.

Récemment, les propriétés non linéaires des fibres multimodes ont été réexaminées dans un certain nombre d'études [Picozzi 2015]. Dans ces expériences [Renninger 2013, Wright 2015a, Wright 2015b, Lopez-Galmiche 2016b, Wright 2015c, Krupa 2016a, Krupa 2016b], la propagation d'ondes non linéaires dans des fibres multimodes à gradient d'indice (MMGRIN) a donné lieu à une série de résultats inattendus, impossibles à obtenir dans des environnements monomodes. Il s'agit par exemple de la première observation de ce que l'on appelle l'instabilité géométrique paramétrique [Wright 2015c, Lopez-Galmiche 2016b, Krupa 2016a], de la condensation modale, de la formation de "molécules" de solitons multimodes [Renninger et Wise 2013, Wright 2015b] et de la génération uniforme de supercontinuum [Lopez-Galmiche 2016] - rivalisant avec ce que l'on attend des PCF à dispersion contrôlée fonctionnant près de leur point de dispersion zéro [Stone and Knigh 2008]. Ce qui rend cela possible, c'est l'immense complexité spatio-temporelle associée à ces processus de mélange d'ondes non linéaires en présence d'un grand nombre de modes [Wright 2015a]. Ce degré de liberté spatial supplémentaire peut désormais ouvrir de nouvelles possibilités, tant au niveau scientifique que technologique, qui étaient auparavant négligées et restaient inaccessibles en raison de barrières technologiques. Le poling optique fait partie des effets non linéaires potentiellement réalisables sur les MMGRIN. Cet effet a été décrit pour la première fois en 1986 dans des fibres monomodes [Österberg 1986]. A l'époque, ce nouveau résultat n'était pas attendu en raison des propriétés centro-symétriques des systèmes amorphes tels que le verre de silice, incompatibles a priori avec la production d'un signal de seconde harmonique (SH) à partir d'une fréquence fondamentale (FF). Ce processus d'inscription de la susceptibilité quadratique ( $\chi^{(2)}$ ), associé à la production d'un signal SH, a ensuite été décrit théoriquement [Stolen 1987, Dianov 1995, Balakirev 2008] et l'inscription d'une non-linéarité du second ordre ( $\chi^{(2)}$ ) dans le cœur de la fibre selon un mécanisme de quasi-accord de phase (QPM) a été mise en évidence [Osterberg 1987]. La structure connexe de la susceptibilité  $\chi^{(2)}$  est par conséquent associée à une non-linéarité quadratique modulée permanente dépendant de la longueur de cohérence dont la valeur peut être estimée théoriquement. Plus récemment, la production d'un signal SH dans des fibres multimodes en silice par un mécanisme de poling optique impactant les propriétés spatiales du faisceau a été démontrée [Grudin 1988, Eftekhari 2017, Ceoldo 2017, Krupa 2019].

L'objectif premier de cette thèse, était porté sur l'optimisation du doublage de fréquence en optique guidée. L'idée était d'obtenir le maximum de conversion sur une susceptibilité  $\chi^{(2)}$  dans une fibre optique multimodes à gradient d'indice. Cependant, dès le début de ma thèse, de manière très

surprenante, nous avons constaté une différence drastique de conversion de seconde harmonique sur deux fibres MMGRIN de spécifications a priori identiques mais de constructeurs différents. Afin de répondre à la question initialement posée, essayer d'analyser et de comprendre l'apparition des effets non linéaires dans ces fibres est devenu capital. Pour cela une étude en optique non linéaire est réalisée et est mise en relation avec une étude complémentaire portant sur la compréhension de la structure locale des matériaux considérés, et ce, avant et après poling. Considérer ces deux domaines éloignés (optique non linéaire et caractérisation de la structure des matériaux) permet au final d'effectuer une étude complète sur la structure locale du matériau de fibre optique et d'en évaluer l'impact sur l'efficacité de génération de seconde harmonique.

## Résumé du Chapitre 1

Dans ce chapitre, les étapes de création d'une fibre optique à gradient d'indice sont présentées. Les différentes techniques de fabrication de la préforme, ainsi que les paramètres clés lors du fibrage sont particulièrement décrits.

Les techniques d'imageries qui existent aujourd'hui dans la littérature pour l'analyse des matériaux silicates sont présentées. Elles décrivent l'histoire thermique d'un verre de silice et les méthodes mise en œuvre pour les caractériser.

Les effets linéaires et non linéaires d'ordre 2 et 3 pouvant être visibles dans les fibres optiques à gradient d'indice sont également présentés. Parmi ces phénomènes, nous nous focalisons tout particulièrement sur le poling optique.

## Chapitre I. Les fibres optiques multimodes à gradient d'indice

---

### I.1. Procédés de fabrication d'une MMGRIN

#### I.1.1. Conception d'une fibre optique

La silice est l'élément principal utilisé dans la fabrication des fibres optiques. Le guidage de la lumière dans les fibres optiques requiert une différence d'indice entre le cœur et la gaine. Pour des fibres multimodes à gradient d'indice, appelées MMGRIN par la suite dans ce manuscrit, il existe une variation parabolique d'indice dans le cœur de la fibre. Pour fabriquer une fibre optique, il faut d'abord élaborer une préforme, un barreau cylindrique de verre de dimensions centimétriques et de composition chimique définie. Il s'agit souvent de silice pouvant être dopée ou microstructurée. De manière générale, la préforme est constituée de deux parties : la partie centrale qui deviendra le cœur de la fibre et la partie périphérique qui deviendra la gaine à la fin du processus de fibrage. En d'autres termes, la préforme de fibres industrielles, pour les télécoms est une sorte de forme macroscopique de la fibre qui présente des proportions cœur-gaine homothétiques à celles de la fibre finale, avec un diamètre initial de quelques dizaines de millimètres et une longueur de l'ordre du mètre. De telles dimensions permettent de produire jusqu'à 100 km de fibre à partir d'une préforme unique. Réaliser une fibre optique nécessite deux grandes étapes : la fabrication de la préforme et le processus de fibrage, deux étapes qui sont présentées dans cette partie.

##### I.1.1.1. Procédés de fabrication de la préforme : MCVD et OVD

Les méthodes de fabrication des préformes sont classées en deux catégories : les méthodes internes (MCVD, PCVD et SPCVD) et les méthodes externes (OVD, VAD et ALPD). La fabrication du cœur de la préforme par la méthode interne consiste en une accumulation de couches déposées à l'intérieur d'un tube creux qui correspond à la partie « gaine » de la fibre en silice. La fabrication du cœur se fait par dépôts successifs de matière sur la paroi interne du tube de l'intérieur du tube, vers le centre de la préforme. La méthode externe correspond à un dépôt de couches successives sur un mandrin. Le cœur puis la gaine de la préforme sont réalisés par dépôts successifs de couches en partant du centre vers l'extérieur de la préforme.

**Les méthodes MCVD (Modified Chemical Vapor Deposition)** sont les plus répandues. La MCVD a été créée en 1974 dans les laboratoires de la Bell Telephone (Bell labs) et aux Standard Telecom Laboratories. Cette méthode repose sur un processus de dépôt chimique en phase vapeur interne. La Figure 1 présente un schéma de principe du processus de fabrication de la préforme par voie MCVD. Dans la majorité des cas, un tube de silice creux est utilisé comme réceptacle pour accueillir le cœur de la fibre typiquement entre 1,5 et 3 cm de diamètre [D. Wood 1987]. Le tube est généralement constitué

de silice mais peut être dans de rares cas dopé comme par exemple pour des capteurs d'hydrogène avec une gaine dopée palladium [Kim 2008]. Ce tube constitue par la suite la gaine interne de la fibre optique. Ce cylindre creux est ensuite rempli par dépôt du gaz qui constituera le cœur de la fibre permettant de générer un changement d'indice entre le cœur et la gaine. La composition chimique du matériau du cœur est le paramètre responsable de son indice de réfraction. Un gradient d'indice peut être réalisé grâce à une machine régulant la concentration en halogénure(s) du gaz utilisé. Dans notre cas, il s'agit de composés de  $\text{SiCl}_4 + \text{O}_2$  et de  $\text{GeCl}_4$ . Les gaz sont transformés en poussières fines (suires) d'oxydes grâce au chalumeau externe. Ce chalumeau effectue des allers-retours dans le sens longitudinal du tube en rotation, laissant les poussières fines se déposer sur la partie interne froide du tube. Sous l'effet de la chaleur, ce dépôt forme une couche interne de silice vitreuse dopée.

Cette technique permet notamment de contrôler la concentration en ions hydroxydes ( $\text{OH}^-$ ), un élément parasite responsable de pertes par absorption. En utilisant la technique MCVD, des couches de compositions différentes peuvent être déposées successivement grâce à un changement de gaz, permettant ainsi de créer des préformes constituées d'un tube en verre de silice pure, et d'un cœur avec un indice de réfraction supérieur à la gaine selon la quantité d'ions utilisés. Cette variation d'indice peut être modulée selon les caractéristiques recherchées de la fibre.

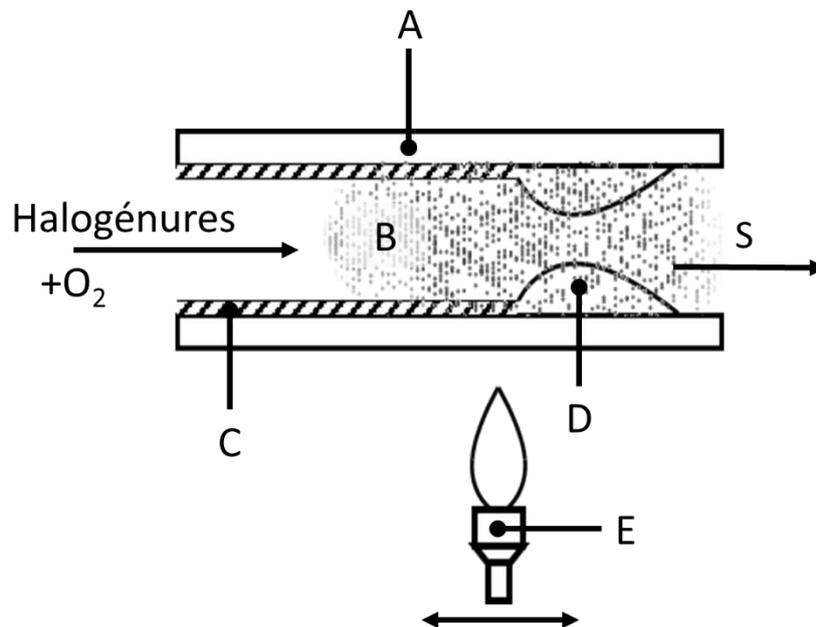


Figure 1. Schéma de principe de la fabrication d'une préforme de fibre optique par méthode interne (MCVD): A. Tube de silice. B. Formation de la suie. C. Couche vitrifiée du verre de cœur. D. Dépôt de suie. E. Chalumeau. S. Sortie. A noter que le tube est mis en rotation sur lui-même.

On note qu'à la fin de la création de la préforme par MCVD, comme le montre la Figure 2, une température élevée est nécessaire pour finaliser le remplissage du cœur Figure 2A, cette étape est nommée « rétreint » (3). Cette étape en MCVD induit une évaporation de l'oxyde de germanium. Ce défaut se produit au centre du cœur et constitue une sorte de cheminée d'évacuation des vapeurs d'oxyde

de germanium. Ce phénomène induit un trou d'indice (7) dont il sera question ultérieurement dans ce manuscrit. Sur les anciennes fibres, ce défaut est visible lors de mesure d'indice de réfraction Figure 2B. Sur les nouvelles fibres, des stratégies ont été mises en place pour compenser cette évaporation.

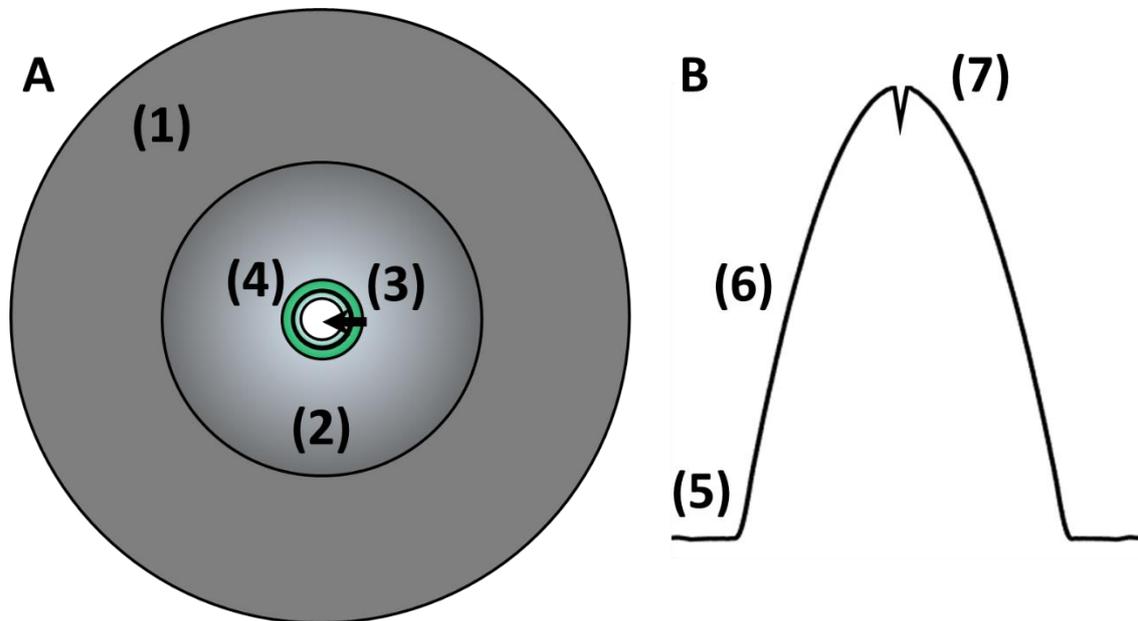


Figure 2 : **A.** Schéma de principe d'un rétreint d'une préforme de MMGRIN créée par MCVD. (1) Tube de silice, (2) Cœur à gradient d'indice, (3) Remplissage du cœur par superposition de couches par méthodes internes, (4) Couches de silice dopées déposées, **B.** Schéma du profil d'indice d'une MMGRIN (5) Indice de la gaine, (6) GRIN, (7) Représentation du résultat de l'évaporation de l'oxyde de Germanium en MCVD.

Il existe des déclinaisons des méthodes internes appelées PCVD et SPCVD. La PCVD définissant « Plasma **Chemical Vapor Deposition** » [Lydtin 1986], se caractérise par l'utilisation d'un résonateur micro-ondes se déplaçant longitudinalement autour du tube. Ce résonateur crée un plasma à l'intérieur du cœur qui génère une réaction hétérogène vapeur/paroi permettant le dépôt de couche vitreuse sans formation de suie. En comparaison avec la MCVD, cette technique est plus rapide et dépose des couches plus fines permettant la création de gradient d'indice de cœurs de meilleures qualités. La SPCVD est une technique avancée de la PCVD [Chollet and Saada 1983]. Elle remplace le résonateur microondes par un coupleur appelé « Surfaguide » qui injecte une onde électromagnétique de surface dans le tube de silice et crée le plasma. Cette technique permet de se libérer de la contrainte mécanique de translation longitudinale du résonateur et du chalumeau que l'on retrouve respectivement au PCVD et MCVD.

**La méthode OVD (Outside Vapor Deposition)**, également appelée méthode HALF (hydrolyse à la flamme en français), est une autre méthode de fabrication de préforme [Schultz 1980]. La Figure 3 présente un schéma de principe du processus de fabrication de la préforme par voie OVD. Cette méthode utilise la flamme d'un chalumeau oxyhydrique (mélange  $H_2 / O_2$ ). Les oxydes formés se déposent sur un mandrin amovible en graphite ou en alumine qui est en rotation et en translation au-dessus du

chalumeau. La vitesse de dépôt dépend du diamètre du mandrin. Le rendement de réaction est proche de 100%. Cette méthode dépose à la fois la gaine et le cœur de la préforme en quelques centaines de couches.

Après le dépôt, le mandrin est retiré et la préforme est séchée à environ 900°C. Le cœur de la préforme est ensuite vitrifiée à environ 1500°C. Le séchage dans un courant de gaz ( $\text{He} + \text{Cl}_2$ ) permet d'éliminer les groupements OH. Le cœur est finalisé par un flux gazeux dopé abondant par le trou central de la préforme. Contrairement à la méthode MCVD, la préforme OVD n'a pas de trou d'indice car le rétreint de la préforme se produit pendant sa vitrification, à une température plus basse qu'en MCVD.

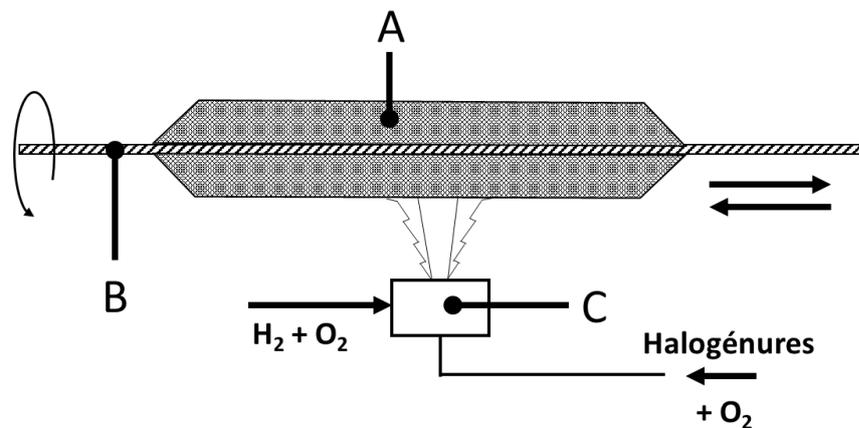


Figure 3 : Schéma de principe de la fabrication d'une préforme de fibre optique par la méthode de « Outside Vapor Deposition » (OVD) : A. dépôts successifs de suies. B. Mandrin amovible. C. Chalumeau.

Il existe des déclinaisons des méthodes externes appelées VAD et ALPD. La méthode VAD (Vapor Axial Deposition) est semblable à l'OVD mais elle se différencie par l'absence de mandrin [Izawa 1980]. La préforme se génère sur un axe vertical à partir d'une amorce. Cette technique montre un résultat équivalent au MCVD at HALF mais son utilisation est limitée et moins précise que les autres techniques de création de préforme. La méthode ALPD [Boucher 1983] utilise une torche de plasma, elle est l'une des techniques permettant de créer un profil d'indice plus faible que la gaine au centre du cœur grâce au dopage fluor et permet la création de silice de très haute pureté et à très faible teneur en  $\text{OH}^-$  ( $< 10^{-6}$  mol/L).

### I.1.1.2. Différentes étapes du fibrage

Le processus de fibrage repose sur le chauffage d'une préforme à une température de four aux alentours de 2000 °C. La Figure 4 présente schématiquement les différentes étapes du fibrage. Les paramètres maîtrisés lors du fibrage sont la température du four, la vitesse de fibrage et la tension exercée sur la fibre. Le four en graphite (3) est le point culminant d'une tour de fibrage. Il est placé à une hauteur d'environ 10 mètres au-dessus du sol et accueille la préforme (2) pour le processus de fibrage. La fibre

(6) est obtenue par un étirage laminaire, son diamètre est déterminé principalement par la température et la vitesse de fibrage. A cette étape, la fibre formée peut guider la lumière car elle est constituée d'un cœur et d'une gaine. Mais cet ensemble fragile ne peut pas supporter de petits rayons de courbures [Burllet 1988]. A l'étape 5, une couche de polymère est déposée autour de la fibre, qui est ensuite durcie. Cette dernière est conçue pour renforcer mécaniquement la fibre, afin de la rendre maniable et de la protéger contre les agressions chimiques et les contraintes mécaniques. Finalement, la fibre est enroulée sur un cabestan (7). Selon ses propriétés internes (structure continue ou microstructure), la souplesse de la fibre permet de l'enrouler sur des tubes ayant un diamètre d'une dizaine de centimètres.

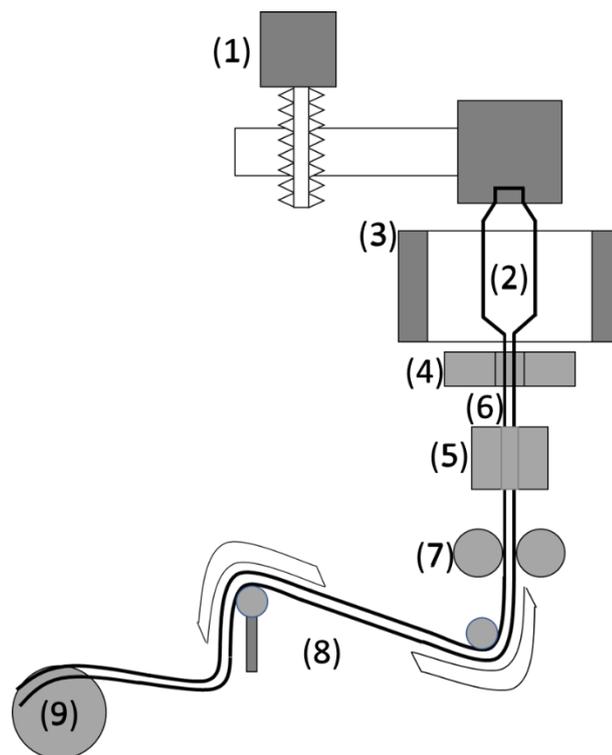


Figure 4. Schéma de principe du processus de fibrage. (1) Commande de saut. (2) Préforme. (3) Four. (4) Contrôle du diamètre. (5) Revêtement protecteur primaire. (6) Fibre optique. (7) Cabestan. (8) Contrôle de la résistance à la traction. (9) Tambour de réception.

Après le processus de fibrage, les fibres présentent un profil d'indice et un rapport entre le diamètre du cœur et de la gaine correspondant à ceux de la préforme selon la loi de conservation des volumes :

$$A_1 \cdot V_1 = A_2 \cdot V_2$$

où :

- $A_1$  et  $A_2$  sont les aires transversales respectives de la préforme et de la fibre.
- $V_1$  est la vitesse de descente de la préforme dans le four.
- $V_2$  est la vitesse d'entraînement de la fibre.

Des problématiques liées à la biréfringence (anisotropie de la structure du verre) peuvent apparaître lors du fibrage en raison de l'étirage rapide et à haute température. Les paramètres clés du fibrage (température, vitesse, tension) doivent être contrôlés avec la plus grande attention en particulier lorsqu'une structure interne précise de la fibre est recherchée. La présentation de ces paramètres fait l'objet de la partie suivante.

### 1.1.2. Les paramètres clés du fibrage : températures, vitesse, tension

Le processus de transformation d'une préforme en fibre est réalisé par fibrage dans une tour de fibrage. Le contrôle des paramètres de fibrage (température, vitesse et tension) est essentiel pour donner à la fibre les propriétés souhaitées (diamètre cœur/gaine) [Burlet and Pavis 1988].

**La température de la zone chaude du four** impose à la préforme un début de ramollissement qui correspond à ce que l'on nomme le « softening point » : la viscosité typique de la gamme de fibrage sera comprise entre  $10^4$  et  $10^6$  Pa.s. Une illustration de la goutte utilisée pendant ma thèse est présentée à la Figure 5. Une goutte se forme alors et entraîne vers le bas l'ensemble du liquide visqueux. La température est ajustée pour que la préforme soit suffisamment fluide pour s'étirer sous son propre poids, ce qui nécessite une température entre 1900 et 2100°C. La température du four est fixée en fonction des dopants utilisés mais également d'autres paramètres comme la structure interne de la fibre. Un pyromètre optique mesure et contrôle la température.



Figure 5 : Goutte générée lors d'un tirage de fibre MMGRIN en silice dopé germanium.

Le rôle **des vitesses de fibrage** est essentiel dans le processus de fibrage. La descente de la préforme (Figure 4, (3)) s'effectue à quelques centimètres par minute, tandis que la fibre est entraînée d'abord par le poids de la goutte puis par un cabestan à une vitesse comprise entre 80 et 300 m/min lorsque la goutte est arrivée au pied de la tour. Le rapport entre ces vitesses est ajusté pour obtenir le diamètre souhaité de la fibre. La boucle de régulation, basée sur la mesure du diamètre (Figure 4, (4)) en aval du four et sur le contrôle de la vitesse de rotation du cabestan (Figure 4, (7)), permet d'obtenir une précision de l'ordre du dixième de micromètres sur le diamètre extérieur de la fibre.

**La tension** est le dernier paramètre pouvant être ajusté durant le tirage de la fibre. Ainsi, lorsque la vitesse de tirage et la température du four sont fixées, l'ajustement de la tension permet d'adapter le

diamètre de la fibre. La fibre peut céder durant le processus de fibrage si la tension – ou l'un des deux autres paramètres – est trop importante ou n'est pas adapté.

## **I.2. Approche vibrationnelle pour caractériser la structure locale de la silice**

Le verre se présente comme un solide non cristallin exhibant le phénomène de transition vitreuse, et l'état physique correspondant est désigné sous le nom d'« état vitreux ». La température de transition vitreuse est l'une des propriétés fondamentales du verre, représentant une température de référence. Scholze [1990] la définit comme la température à laquelle la viscosité du matériau atteint  $10^{12}$  Pa.s. Cette température sera donc discutée en détail dans la première partie, suivie de l'introduction du concept de température fictive dans la seconde partie.

### **I.2.1. Caractéristiques générales de la formation du verre - la température de transition vitreuse $T_g$**

Dans le cas du cristal, le volume molaire subit une variation abrupte à la température de fusion (ou de solidification)  $T_f$ . En revanche, pour le verre, lorsque la température du liquide diminue, il passe dans un état métastable, correspondant à celui du liquide surfondu. Progressivement, il y a une transition du liquide surfondu à l'état vitreux, connue sous le nom de domaine de transition vitreuse. À mesure que la température diminue, le liquide surfondu devient de plus en plus visqueux, et les réarrangements atomiques se produisent avec des temps de relaxation de plus en plus longs. Contrairement au cristal, la variation du volume molaire entre les deux états est continue sur cet intervalle de température. La température de transition vitreuse peut être observée, en particulier en soumettant le verre à une analyse thermique différentielle, où la transition vitreuse se manifeste par un phénomène endothermique.

*La transition vitreuse, également connue sous le nom de domaine de transformation, se produit sur un intervalle de température pendant lequel de nombreuses propriétés subissent des modifications. Cependant, par souci de praticité, la température de transition vitreuse  $T_g$  est définie comme le point d'intersection des extrapolations des propriétés du liquide et du verre.*

La Figure 6 démontre également que la température de transition vitreuse  $T_g$  ne relève pas d'un paramètre thermodynamique mais dépend de la vitesse de refroidissement. En effet, en refroidissant le liquide surfondu rapidement à une vitesse  $V_1 > V_2$ , la température de transition vitreuse sera élevée ( $T_{g2}$ ). En revanche, un refroidissement plus lent du liquide surfondu permettra des réarrangements atomiques, conduisant à la solidification à une température  $T_{g1}$ , plus basse que  $T_{g2}$ .

De plus, il est observé que le volume molaire du verre est supérieur à celui du cristal, ce qui traduit donc par une densité plus faible pour ce dernier.

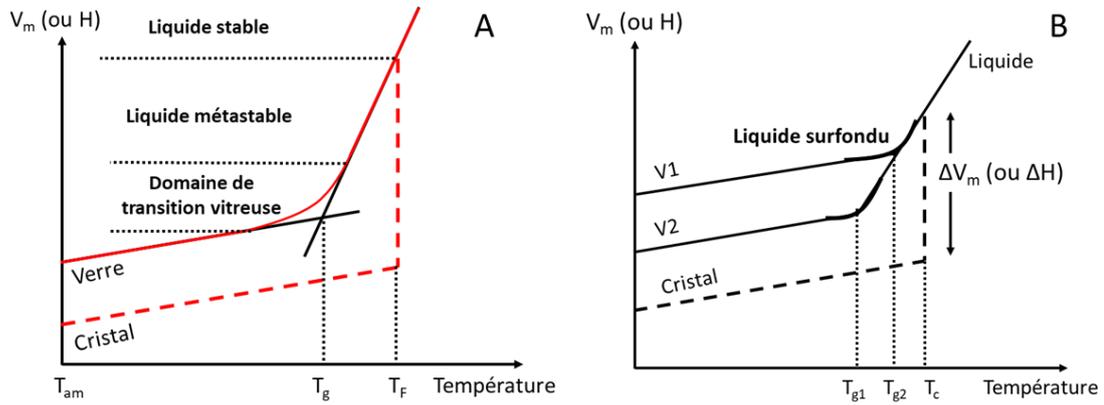


Figure 6 : A. Evolution du volume molaire ( $V_m$ ) ou encore de l'enthalpie molaire en fonction de la température. B. impact de la vitesse de refroidissement sur la variation du volume molaire  $V_m$  d'un verre avec  $V1$  et  $V2$  indiquant les volumes molaires respectifs des verres obtenus pour les différentes vitesses de refroidissement dont  $V1 > V2$ .

Enfin, il est important de souligner que la température de transition vitreuse est étroitement liée aux concentrations en ions  $\text{OH}^-$  et en impuretés. Par exemple, la dépolymérisation du réseau causée par la présence d'ions  $\text{OH}^-$  le rend moins rigide, entraînant ainsi une diminution de  $T_g$ .

### 1.2.2. La température fictive

D'après la discussion précédente, il est évident qu'il existe un domaine de températures de transition vitreuse. Afin de pouvoir mettre en évidence différentes histoires thermiques d'un verre, un nouveau paramètre thermodynamique est introduit : la température fictive.

Ce paramètre thermodynamique est fréquemment utilisé lors des études portées sur la relaxation structurale. Il est défini comme la dernière température à laquelle le matériau a atteint son état d'équilibre local dans le liquide surfondu avant la trempe. En d'autres termes, la température fictive correspond à la température à laquelle le liquide surfondu se fige [Tool 1946].

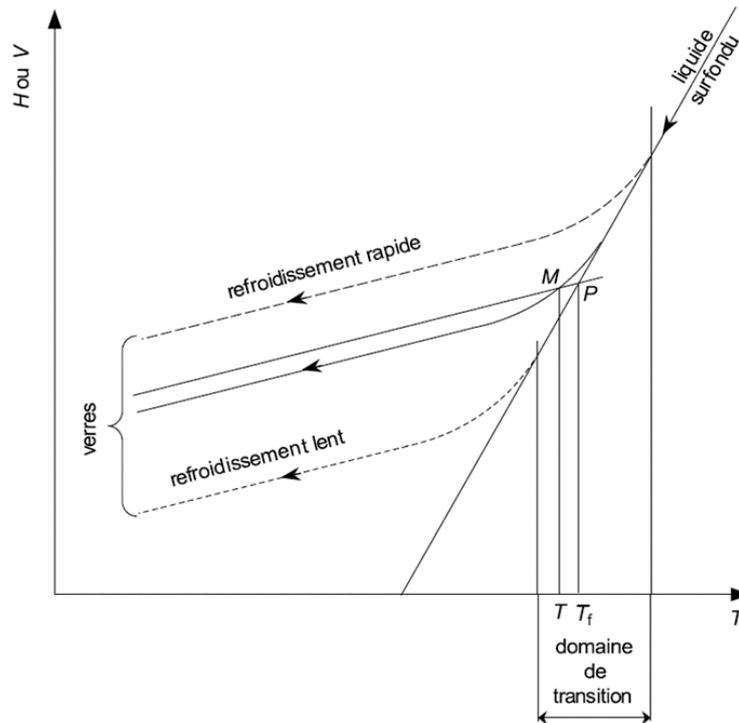


Figure 9 : Représentation schématique du domaine de transition vitreuse et de la température fictive  $T_f$  d'un verre.

### Comment obtenir des échantillons de $T_f$ différentes ?

Il est possible de modifier la température fictive d'un échantillon, initialement à une température fictive  $T_{fi}$  (voir Figure 8). Pour ce faire, il est nécessaire de le recuire à une température  $T_{A1}$  pendant une période dépassant le temps de relaxation  $\tau$ , permettant ainsi les réarrangements structuraux. La structure du matériau s'équilibrera alors à  $T_{A1}$ , et une trempe très rapide fixera le nouvel état structural. À ce stade, l'échantillon aura une température fictive  $T_{A1}$ . La même logique peut être appliquée à une température  $T_{A2}$  supérieure à la température fictive initiale. Dans ce cas, l'équilibre sera atteint plus rapidement, nécessitant donc un refroidissement brutal pour figer l'état structural correspondant.

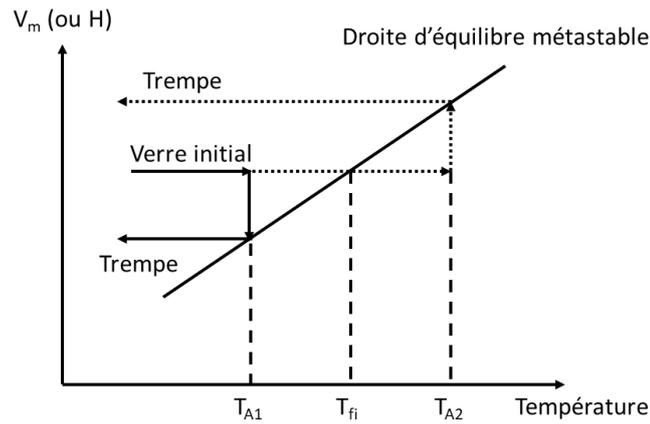


Figure 8 : Variation vers des valeurs inférieures ou supérieures de la température fictive initiale  $T_{fi}$  respectivement : températures fictives atteintes  $T_{A1}$  et  $T_{A2}$ .

Ainsi, il devient possible d'obtenir des échantillons présentant une composition chimique identique, mais avec des structures locales légèrement différentes, entraînant par conséquent des propriétés physiques distinctes. Dans les chapitres suivants, nous examinerons l'évolution des signatures spectroscopiques en lien avec les modifications structurales induites par le changement de température fictive.

### Comment déterminer $T_f$ ?

La température fictive ( $T_f$ ) peut être considérée comme étant la température du four lorsque l'on chauffe assez longtemps le matériau [Martinet 2015]. Grâce à cette information, une courbe d'étalonnage peut être réalisée afin de créer une équation empirique reliant la structure locale avec la température du four. Ce point sera expliqué plus en détail dans la partie suivante [Galeener 1982] [Martinez 2003].

### Influence de $T_f$ sur...

**L'indice de réfraction ( $n$ )** est influencé par les traitements thermiques et la vitesse de refroidissement, lesquels déterminent la structure finale du verre. Ainsi, [Brückner 1970] a montré que  $n$  augmente avec  $T_f$  pour les verres de silice pure. En revanche, dans le cas des silicates étant des verres contenant un oxyde modificateur, Spinner et al. [Spinner 1966] ont observé que l'augmentation de  $T_f$  entraînait une diminution de l'indice de réfraction. L'indice de réfraction étant lié à la densité, ces deux observations peuvent être assimilés au travail de Ollier et al. en 2018 montrant qu'à partir d'une certaine densification de la structure locale, nous ne pouvons plus relier la  $T_f$  à la densification [Ollier 2018].

**Le coefficient d'expansion thermique** de la silice dépend également de la température fictive, augmentant avec  $T_f$  et atteignant un maximum autour de 1500°C. Au-delà de cette température ce coefficient diminue. Ce comportement inhabituel pour les solides est décrit comme le comportement "anormal" de la silice [Brückner 1970].

En ce qui concerne *la diffusion des ions OH*, [Roberts 2001] ont traité des échantillons de silice à différentes températures,  $T_f=1100^\circ\text{C}$  et  $1300^\circ\text{C}$ , sous atmosphère humide. Ils ont constaté que les échantillons ayant une température fictive élevée présentaient un faible coefficient de diffusion des ions OH.

### I.2.3. Spectroscopie Raman

En 1928, en Inde, Sir C. V. Raman a été le pionnier de l'étude du phénomène d'émission lumineuse inélastique. Le rayonnement émis par les molécules soumises à une excitation contient des photons de la même fréquence que ceux du rayonnement incident (diffusion élastique), mais également des photons de fréquences différentes (diffusion inélastique). Bien que cet effet soit très faible, environ 1 photon sur 1 million sera émis avec une longueur d'onde légèrement différente de celle du rayonnement incident : c'est ce qu'on appelle l'effet Raman spontané.

#### I.2.3.1. Description quantique

Après l'interaction entre la lumière et le matériau, les molécules possèdent quatre formes d'énergies :

$$E = E_{\text{Translation}} + E_{\text{rotation}} + E_{\text{Vibration}} + E_{\text{électronique}}$$

$E_{\text{Translation}}$  ( $E_T$ ),  $E_{\text{rotation}}$  ( $E_r$ ) et  $E_{\text{Vibration}}$  ( $E_v$ ) correspondent aux mouvements moléculaires, représentant ainsi des degrés de liberté ( $3N-6$  degrés de liberté pour une molécule polyatomique à  $N$  atomes). De plus, ces trois formes d'énergie ne peuvent pas avoir n'importe quelle valeur, car ce sont des états discrets. Sous l'influence du rayonnement électromagnétique, la perturbation de ces états énergétiques se manifeste par des transitions énergétiques entre deux niveaux. Ces transitions s'accompagnent du gain ou de la perte d'un quantum d'énergie  $\Delta E=h\nu_j$ , où  $h$  et  $\nu_j$  sont respectivement la constante de Planck et la fréquence du mouvement moléculaire. La mise en évidence de ces transitions énergétiques constitue la spectroscopie de vibration. Ces transitions sont associées à deux effets très différents :

- L'absorption ou l'émission de lumière : cela se produit lorsque la matière est irradiée par un rayonnement. Certaines radiations électromagnétiques sont absorbées ou émises, et les fréquences des radiations absorbées dépendent des transitions énergétiques réalisées. L'observation de ces transitions de rotation et de vibration constitue la spectroscopie infrarouge.

- La diffusion de la lumière : la matière est également irradiée par un rayonnement, et une faible quantité de lumière (typiquement de l'ordre de 1 pour 1000 dans le cas du verre) est diffusée dans toutes les directions (diffusion Rayleigh). Une petite fraction (1 pour 1000) de la lumière diffusée contient des radiations  $\nu$  différentes de celles du rayonnement incident  $\nu_0$ , ce qui constitue la diffusion Raman.

### I.2.3.2. Théorie de la diffusion Raman

La diffusion de la lumière est dû à des fluctuations de la susceptibilité diélectrique. Ces fluctuations  $\delta\chi(\vec{r},t)$  sont liées aux modes de vibration. La diffusion Raman met en jeu des modes de vibration pour lesquels la fréquence de vibration de la molécule  $\omega_j$  n'est pas négligeable devant la fréquence de la lumière incidente  $\omega_0$  : on parle alors de modes optiques

On a alors :

$$\frac{\partial^2 \vec{p}}{\partial t^2} = -(\omega_0 \pm \omega_j)^2 \vec{p}$$

L'équation du champ électrique devient :

$$\vec{E}_d^{ik}(\vec{r}, t) = \frac{-(\omega_0 \pm \omega_j)^2}{4\pi R c^2} e^{i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega_0 t)} (\vec{E}_i^0 \wedge \vec{n}) \wedge \vec{n} \cdot \int_v (\delta\chi^{ik}(\vec{r}', t)) e^{i(\vec{k}_0 - \vec{k}) \cdot \vec{r}'} d^3 \vec{r}'$$

La diffusion Raman peut avoir lieu :

- Soit par des modes de vibration propagatifs de faible vecteur d'onde  $\vec{q}_j$  ( $q_j < 2k_0$ )

$$\delta\chi_j^{ik}(\vec{r}', t) = \delta\chi_j^{ik}(\vec{r}') e^{\pm i\omega_j t} = \delta\chi_j^{ik}(\vec{r}') e^{\pm i(\vec{q}_j \cdot \vec{r}' - \omega_j t)}$$

Il y aura donc diffusion lorsque  $\vec{k} - \vec{k}_0 = \pm \vec{q}_j$  avec la fréquence  $\omega = \omega_0 \pm \omega_j$ .

- Soit par des modes de vibration non propagatifs, c'est-à-dire localisés :

$$\delta\chi_j^{ik}(\vec{r}', t) = \delta\chi_j^{ik}(\vec{r}') e^{\pm i\omega_j t} = \delta\chi_j^{ik} e^{\pm i\omega_j t}$$

Par conséquent, il y aura diffusion pour  $\vec{k} - \vec{k}_0$  ayant pour fréquence  $\omega = \omega_0 \pm \omega_j$ .

L'expression du champ diffusé étant définie, il est possible dès lors de déterminer l'intensité diffusée. En effet, on sait que l'énergie reçue par unité de surface et de temps est donnée par le vecteur de Poynting  $\vec{S} = \frac{1}{\mu_0} (\vec{E} \wedge \vec{U})$ . Notons que S s'exprime en Watts/mètre, E est le champ électrique en Volts/mètre et B est le champ magnétique en Teslas Pour une onde électromagnétique plane polarisée rectilignement, ce qui est le cas d'un laser, on a  $\vec{S} = \varepsilon_0 c E^2 \vec{n}$ . De plus, la valeur de  $\vec{S}$  moyennée sur le temps donne l'intensité de l'onde incidente :

$$I^{ik} = \frac{1}{2} \varepsilon_0 c (E^{ik} \cdot E^{ik*})$$

$E^{ik*}$  est le complexe conjugué de  $E^{ik}$

L'intensité diffusée est donc :

$$I_j^{ik} = \frac{\varepsilon_0 c (\omega_0 \pm \omega_j)^4}{2 (4\pi R c^2)^2} E_i^{02} \iint dt_1 dt_2 e^{-i\omega_0(t_2-t_1)} \iint_{V_1 V_2} d^3\vec{r}_1 d^3\vec{r}_2 \langle \delta\chi_j^{ik}(\vec{r}_1, t_1) \cdot \delta\chi_j^{ik}(\vec{r}_2, t_2) \rangle \cdot G(\vec{r}_1, \vec{r}_2) e^{i(\vec{k}_0 - \vec{k}) \cdot (\vec{r}_1 - \vec{r}_2)}$$

$G(\vec{r}_1, \vec{r}_2)$  est la fonction de corrélation qui mesure le degré de cohérence entre les fluctuations de deux points. Si les champs de deux points différents du matériau sont cohérents, ils vont interférer.

La diffusion Raman a lieu lorsque les fluctuations de la susceptibilité diélectrique sont provoquées par les modes de vibration optiques de fréquence  $\omega_j$  et de vecteur d'onde  $\vec{q}_j$ . En ce qui concerne les matériaux amorphes tel que nos fibres, la diffusion Raman permet de sonder les modes localisés d'une molécule ne possédant aucune périodicité. La lumière a alors une fréquence  $\omega = \omega_0 \pm \omega_j$  et la fréquence de vibration de la molécule correspond à des nombres d'onde compris entre  $50 \text{ cm}^{-1}$  et  $5000 \text{ cm}^{-1}$ .

#### **1.2.4. Structure des fibres optiques en silice, apport des spectroscopies vibrationnelles, attribution des modes de vibration**

Dans le domaine des sciences des matériaux, la connaissance de la structure locale est essentielle pour la compréhension de l'évolution de certaines propriétés physiques du matériau [Martinet 2008]. Elle donne de manière indirecte des indications sur la densité, l'indice de réfraction, la conductivité thermique, ainsi que la résistance mécanique.

D'une manière générale, la structure de la silice est constituée de tétraèdre  $\text{SiO}_4$  associés par sommet sous forme d'anneaux de tailles variables allant de 3 à plusieurs tétraèdres en fonction des conditions de synthèse de cette dernière. Cette distribution de taille en anneaux a un impact crucial sur les propriétés de la silice [Galeener 1982].

Notre travail repose sur l'étude de MMGRIN où la gaine est constituée de silice pure et le cœur de silice dopée germanium. L'impact du dopant et des impuretés présents dans le matériau, comme le germanium par exemple, seront discutés à la suite de ce manuscrit dans le présent chapitre.

La caractérisation d'une telle structure par approche vibrationnelle peut être réalisée à l'aide de la spectroscopie infrarouge par transformée de Fourier (FTIR) ou de la spectroscopie Raman. Les deux techniques s'intéressent aux vibrations interatomiques dans un solide. La spectroscopie Raman est sensible aux mouvements de vibration entraînant une perturbation du nuage électronique et par suite à la variation de la polarisabilité du nuage et des liaisons interatomiques. En revanche, la spectroscopie infra rouge (IR) est sensible aux mouvements atomiques mettant en jeu une variation du moment dipolaire.

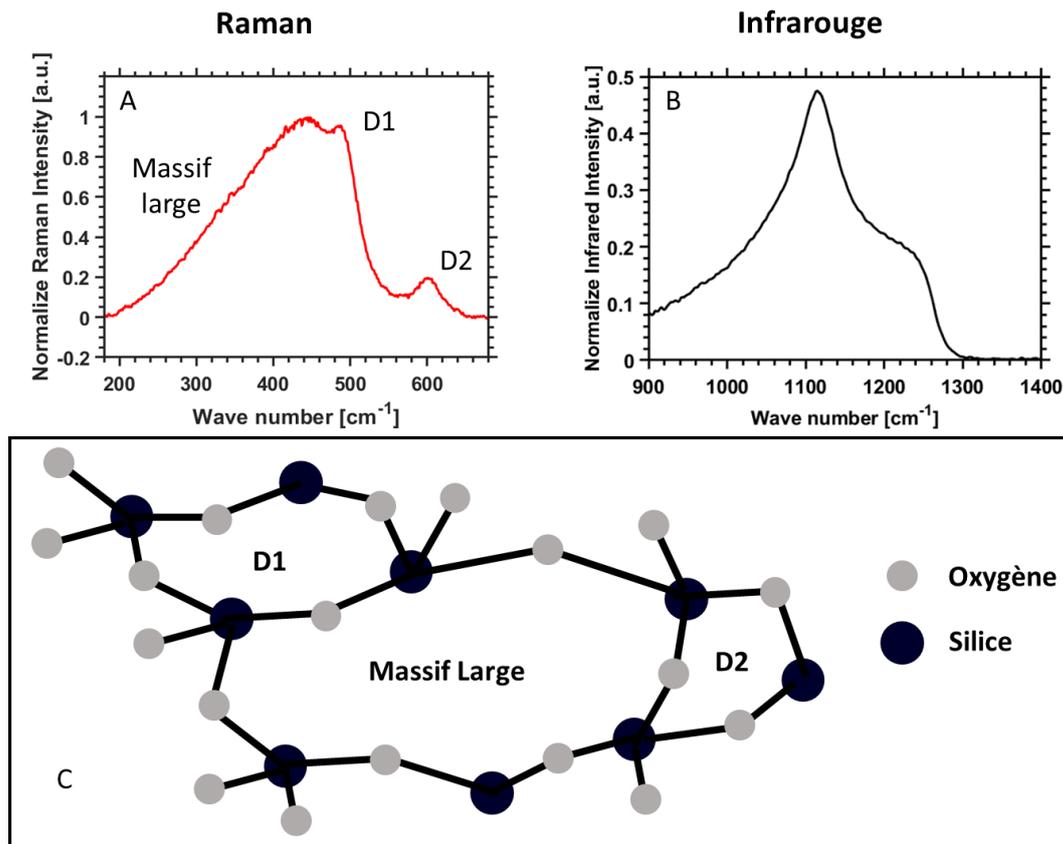
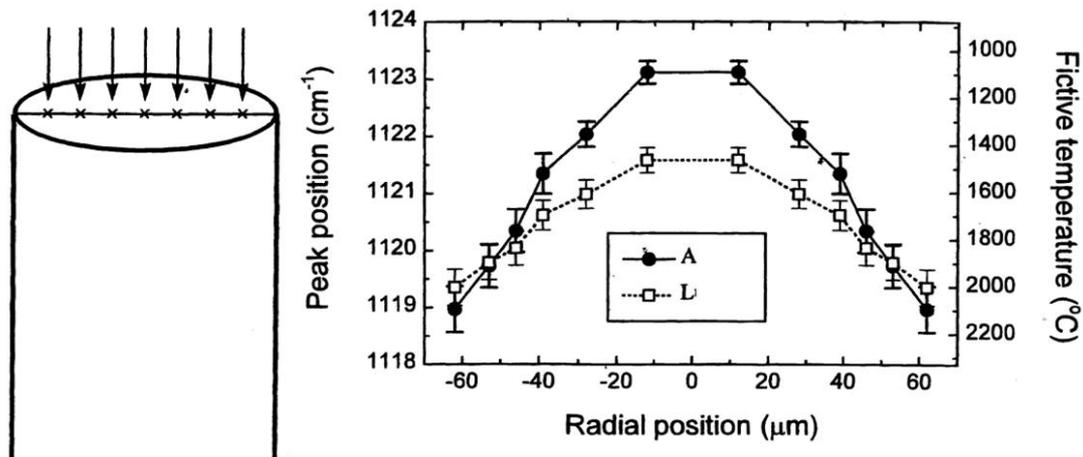


Figure 9. Représentation de la silice pure. A. Spectre Raman représentant la vibration des anneaux de silice de différentes tailles avec le D1 à  $490\text{ cm}^{-1}$ , le D2 autour de  $606\text{ cm}^{-1}$  et le massif large à  $440\text{ cm}^{-1}$ . B. Spectre représentant la réponse infrarouge d'une mesure en géométrie de réflexion de la silice autour de  $1120\text{ cm}^{-1}$ . C. Schéma représentant la structure en anneaux de la silice avec D2 les anneaux à 3 tétraèdres, D1 les anneaux à 4 tétraèdres et le massif large regroupant les anneaux égaux ou supérieurs à 5 tétraèdres.

Dans la littérature, on trouve des travaux qui établissent un lien entre la signature vibrationnelle Infrarouge et Raman et la distribution de la température fictive dans une fibre optique.

La répartition de la température fictive dans une fibre optique à tout d'abord été démontrée par Tomozawa [Tomozawa 1999] (Figure 10). En infrarouge, la température fictive est corrélée à la position du pic principal du spectre de la silice pure. Lors de la réalisation de la fibre, on comprend aisément que la périphérie de la fibre sera plus impactée par la vitesse de refroidissement que le cœur de la fibre qui mettra plus de temps à refroidir, à partir de ce fait, une étude reliant la variation du pic dans le rayon d'une fibre optique est réalisée. Cette graduation est mise en évidence dans l'article de Tomozawa montrant un décalage spectral du pic principal du spectre infrarouge. La température fictive augmente lorsque le pic infrarouge diminue en nombre d'onde. La valeur de la température fictive donnée dans cette étude est calculée avec une équation empirique montrant que deux fibres de diamètres identiques et de compositions chimiques identiques mais de marques différentes (A et L) n'ont pas la même température fictive. Cette relation empirique est naturellement liée à la composition de la silice présente dans ces fibres et ne peut donc pas être transposée à d'autres cas (voir discussions dans chapitre III).



$$\nu \text{ (cm}^{-1}\text{)} = 1114.166 + [12527 / T_f(\text{K})]$$

Figure 10 : Distribution de la température fictive dans une fibre optique par Tomozawa en imagerie infrarouge grâce à la position du pic principal du spectre de la silice pure avec A et L deux fibres monomode commerciales différentes [Tomozawa 1999].

Par la suite Lancry a réalisé par spectroscopie infrarouge une étude sur des cartographies 2D de fibres optiques montrant la répartition de la température fictive sur toute la section [Lancry 2007]. Cet article ajoute la détermination radiale de la température fictive dans des fibres avec une gaine de silice pure et un cœur dopé en germanium avec une équation empirique mis en place grâce à une échelle d'étalonnage entre la concentration du dopage en germanium et la position du pic principal de la silice [Lancry 2012]. Le résultat des équations empiriques est comparé dans la Figure 11 pour des fibres de silice pure dont leurs origines ne sont pas indiquées.

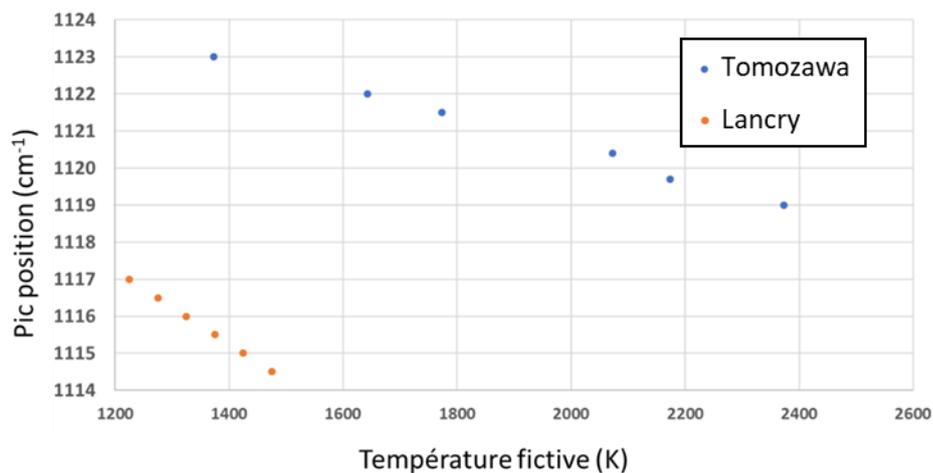


Figure 11 : Résultat des équations empiriques de Tomozawa (bleu) et Lancry (orange) permettant de relier la température fictive et la position spectrale du maximum de réflectivité IR.

$$T_f(r) = \frac{A(\text{Ge}) - \sigma(r)}{B} = \frac{1129.8 - 0.469 \cdot [\text{Ge}](r) - \sigma(r)}{0.0102}$$

Précédemment à Tomozawa, par spectroscopie Raman, Geissberger et Galeener ont mis en évidence la relation entre l'aire du pic à  $489 \text{ cm}^{-1}$ , sa position et la température fictive [Geissberger et Galeener 1983]. Lorsque la température fictive augmente, l'aire du pic augmente et la position du pic se déplace vers les grands nombres d'ondes. Par la suite, Martinet a repris cette étude en démontrant la distribution radiale de la température fictive dans le rayon d'une fibre optique [Martinet 2008]. Martinez, durant sa thèse [Martinez 2004], a également réalisé des équations empiriques reliant la position du pic D1 et D2 avec la température fictive :

$$\nu_{D_1} (\text{cm}^{-1}) = 0,0055 T_f + 477,17$$

$$\nu_{D_2} (\text{cm}^{-1}) = 0,0057 T_f + 592,19$$

Une autre manière de relier les pics D1 et D2 avec la  $T_f$  est de tracer l'évolution du logarithme des aires sous D1 et D2 en fonction de l'inverse de la température fictive comme effectué par Geissberger [Geissberger et Galeener 1983] et repris par Martinez [Martinez 2003]. Les équations empiriques de Martinez liées à l'aire des pics D1 et D2 sont les suivantes :

$$\text{Ln}(A_{D_1}) = \frac{-1713,2}{T_f} + 1,8383$$

$$\text{Ln}(A_{D_2}) = \frac{-3086,5}{T_f} + 1,9447$$

Plus récemment, Alessi a montré l'impact du fibrage sur la structure locale de la silice en comparant l'intensité du mode D2 lors de son état de préforme et après son fibrage [Alessi 2011]. La température fictive est reliée à cette modification mais n'est pas directement calculée. Ces résultats ont mis en évidence une modification de la structure avec l'augmentation de l'intensité du mode D2 après fibrage.

Au vu de la méthode réalisée dans la littérature, il serait nécessaire de créer sa propre loi empirique afin de déterminer la valeur de la température fictive d'un matériau. Pour cela, nous devons effectuer une courbe d'étalonnage grâce à un recuit à différentes températures de la silice que l'on souhaite étudier.

Dans les deux parties suivantes, je présente l'intérêt des spectroscopies Raman et IR dans le cas de la matrice de silice du cœur d'une fibre à large diamètre de cœur ( $50 \mu\text{m}$  minimum), dopée au germanium.

## Imagerie Raman

Dans cette thèse, la caractérisation de la structure locale des fibres optiques est réalisée par spectroscopie Raman, le spectromètre utilisé est un Invia Reflex de la société Renishaw. Le principe est présenté à la Figure 12. Le laser est focalisé à la surface de l'échantillon, la lumière diffusée par celui-ci est collectée en rétrodiffusion par un objectif.

La diffusion élastique est supprimée à l'aide d'une succession de filtre Notch. Dans notre cas, nous travaillons en mode imagerie. Ce qui permettra d'obtenir une information sur la structure locale de la totalité de la section des fibres. A notre connaissance, l'approche bidimensionnelle de la structure locale dans une fibre optique n'a pas été réalisée par spectroscopie Raman.

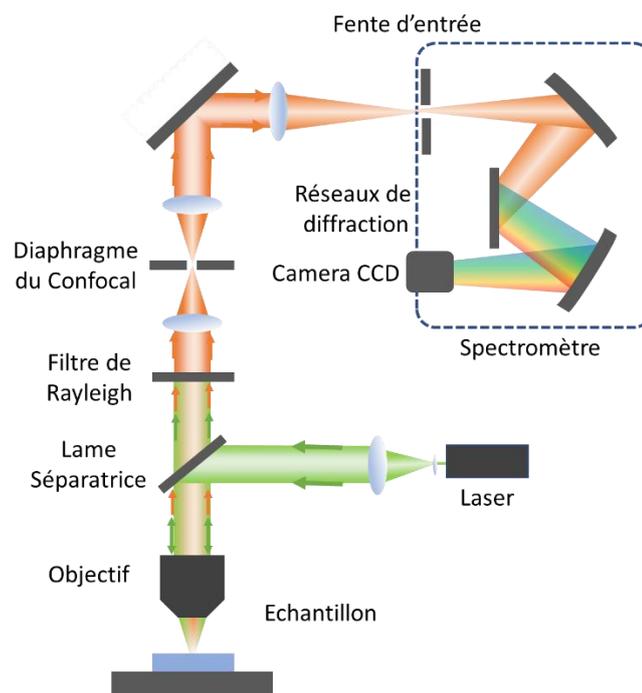


Figure 12 : Schéma de principe d'un microscope confocale Raman récupérant le signal émis par un échantillon excité par un laser.

Le spectre présenté à la Figure 9 (A) illustre la diffusion Raman d'un échantillon de silice pure dont trois modes peuvent être identifiés.

On peut observer un mode large à  $440\text{ cm}^{-1}$  attribué à la représentation des anneaux comprenant 5 tétraèdres et plus [Galeener 1982]. La hauteur et la largeur à mi-hauteur de ce mode sont essentiellement dépendantes des contraintes locales puisque liées à la déformation de l'angle Si-O-Si des anneaux de tailles supérieures à 5 tétraèdres.

Le spectre de diffusion Raman d'un échantillon de silice pure possède également deux modes nommées D1 et D2, qui se trouvent respectivement à  $490$  et  $606\text{ cm}^{-1}$ . Ces bandes sont respectivement attribuées aux vibrations des cycles à quatre et trois tétraèdres. Il est important de souligner que ces bandes de « défauts » sont relativement étroites et nettement distinguables de l'ensemble du spectre.

Cette observation indique que les vibrations de ces petits cycles sont isolées du réseau vitreux. Ce point nous intéresse particulièrement pour la suite notamment parce que la taille des anneaux régit la densification du réseau. Plus les anneaux sont petits (faible nombre de tétraèdres) plus la structure est dense, et inversement. La répartition statistique de ces anneaux dans la structure de la silice est décrite par la température fictive ( $T_f$ ) [Geissberger et Galeener 1983].

Cependant, dans des cas particuliers, lors d'une étude sous pression, il a été démontré que la corrélation entre le D2 et la densification a ses limites. En 2019, Ollier et al. ont démontré qu'il existe une valeur seuil où l'intensité du pic D2 ne représente plus la densification de la structure sur des verres de silice irradiés par faisceau d'électrons [Ollier 2019]. Grâce à un échantillonnage réalisé par leurs soins contenant des verres de silices avec des températures fictives différentes (1050°C, 1250°C et 1400°C), une analyse des spectres Raman et de la densité a pu être effectuée. Leur résultat montre une augmentation significative des anneaux à 4 et presque 3 tétraèdres alors qu'une réduction de la densité du verre est mesurée ; démontrant qu'une augmentation de la bande D2 ne peut pas être considérée comme un marqueur absolu de la densification du verre. La corrélation entre la densité et l'intensité D2 reste valable tant que la densité de la silice reste inférieure à 2,26 g/cm<sup>3</sup>. En revanche, le FWHM de la bande principale culminant à 440 cm<sup>-1</sup> semble rester corrélé à la densité du verre de silice pour tous les échantillons étudiés avec une diminution de sa largeur à mi-hauteur lors de l'augmentation de la pression.

## **Imagerie infrarouge (IR)**

Pour l'analyse des données par spectroscopie infrarouge, les mesures ont été effectuées au CEMHTI en collaboration avec Lionnel Cosson sur un microscope Hyperion 3000 de la société Bruker en réflexion. Le principe est présenté dans la Figure 13. Une lumière infrarouge émettant entre 0,78 à 1000 micromètres est projetée sur l'échantillon. Une partie du signal est réfléchi et envoyée sur un capteur de 64/64 pixels. Ce microscope est un imageur qui récupère le signal réfléchi dans un champ 128 par 128 μm.

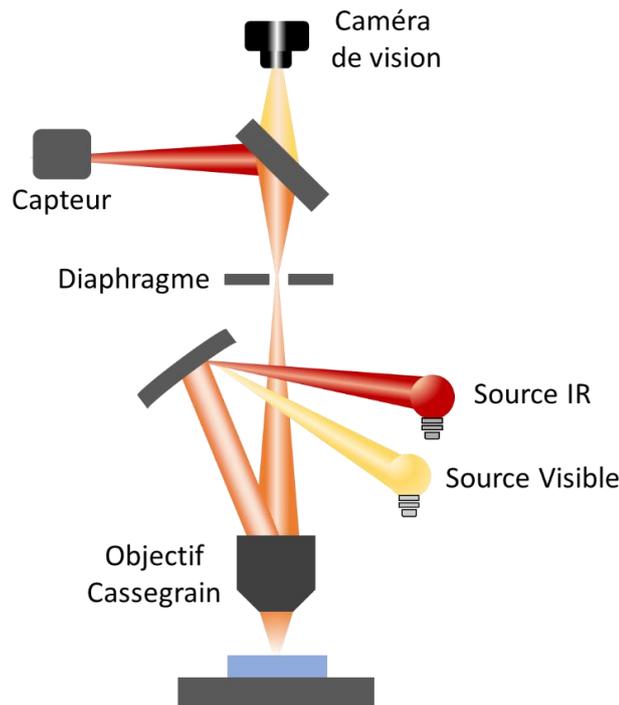


Figure 13 : Schéma de principe d'un microscope FTIR par réflexion.

En spectroscopie infrarouge, la bande de réflexion IR située près de  $1120\text{ cm}^{-1}$  correspond à la vibration d'étirement asymétrique Si-O-Si [Tomozawa 1999]. C'est cette vibration qui nous intéresse principalement. Elle est la plus sensible aux changements structuraux et donc aux changements de température fictive. Par conséquent, la vibration d'étirement asymétrique, détectée autour de  $1120\text{ cm}^{-1}$  dans les spectres d'absorption infrarouge, fournit une indication fiable de la température fictive pour différents types de verres de silice ou de fibres optiques. Comme rapporté dans la littérature [Lancry 2012], la méthode FTIR est la plus répandue pour réaliser des profils de température fictive dans les fibres optiques. En effet, la résolution spatiale est de l'ordre du micron. Un exemple du spectre de réflectance obtenu est montré dans la Figure 9 (B). Ce spectre a été enregistré dans une gaine de fibre de silice pure. Typiquement, nous trouvons une bande IR prédominante à  $1120\text{ cm}^{-1}$  accompagnée d'un épaulement à  $1200\text{ cm}^{-1}$ . Cet épaulement est dû à la composante qui est parallèle à la direction de propagation de la lumière (le mode optique longitudinal, LO) tandis que la bande principale à  $1122\text{ cm}^{-1}$  est liée au mode optique transversal (TO).

### I.3. Propagation et non-linéarités dans les fibres optiques : Etat de l'art

#### I.3.1. Polarisabilité et susceptibilités optiques linéaire et non linéaires

Le phénomène de polarisabilité décrit l'aptitude du nuage électronique d'un atome, d'un ion ou encore celui localisé au niveau des liaisons (donc entre atomes ou entre ions du réseau vitreux) à se

déformer sous l'action d'un champ électrique  $\vec{E}$ . Sous cette action, le nuage électronique est donc mis en mouvement. Ce déplacement entraîne un décalage des centres de charges négatives par rapport aux charges positives fixes que constituent les noyaux (plus lourds et considérés comme fixes), appelé moment dipolaire induit. Il existe plusieurs ordres de polarisabilité décrits par l'intermédiaire de leurs susceptibilités diélectrique  $\chi$ , divisée en différents ordres  $n$  s'écrivant  $\chi^{(n)}$ . L'addition de ces ordres décrit totalement la polarisation diélectrique macroscopique :

$$\vec{P} = \epsilon_0 (\chi^{(1)}\vec{E} + \chi^{(2)}\vec{E}\vec{E} + \chi^{(3)}\vec{E}\vec{E}\vec{E} + \dots)$$

Avec  $\vec{E}$  le champ électrique et  $\vec{P}$  la polarisabilité. Dans cette partie nous décrivons les propriétés physiques définies par les susceptibilités  $\chi^{(i)}$  des différents ordres  $i$ . Ces propriétés sont essentielles pour comprendre les interactions entre la lumière et la matière dans des matériaux dédiés pour l'optique non linéaire.

### 1.3.1.1. Susceptibilité linéaire du premier ordre : indice de réfraction et coefficient d'absorption

La susceptibilité linéaire ou susceptibilité du premier ordre est une grandeur physique qui décrit la réponse d'un matériau à un champ électromagnétique de faible intensité. Elle est souvent représentée par le symbole  $\chi^{(1)}$  et caractérise les propriétés optiques linéaires du matériau, notamment son indice de réfraction et son coefficient d'absorption.

L'indice de réfraction, noté généralement  $n$ , permet de décrire la façon dont la lumière se propage à travers un matériau. Il représente le rapport de la vitesse de la lumière dans le vide à la vitesse de phase de la lumière dans le matériau. Cette propriété est à la base du phénomène de réfraction, qui est par exemple responsable de l'effet de lentille.

Le coefficient d'absorption, noté généralement  $\alpha$ , quantifie la quantité de lumière absorbée par unité de longueur lorsqu'elle traverse un matériau. Dans les fibres optiques, il est souvent exprimé sous forme d'atténuation en décibels par centimètre (dB/cm), mais peut également s'exprimer plus directement en  $\text{cm}^{-1}$ . Le coefficient d'absorption dépend également de la fréquence de la lumière. Une faible valeur de coefficient d'absorption à une longueur d'onde définie indique que le matériau est transparent à cette longueur d'onde et inversement.

La susceptibilité du premier ordre est déterminée expérimentalement en mesurant les propriétés optiques de réfraction et d'absorption d'un matériau. Ces mesures s'effectuent dans le domaine linéaire,

c'est-à-dire lorsque l'intensité du champ électromagnétique incident est suffisamment faible pour que la réponse du matériau reste proportionnelle à l'amplitude du champ incident.

L'indice de réfraction représentant la susceptibilité linéaire est une grandeur complexe. Il est constitué d'une partie réelle et une partie imaginaire qui correspondent respectivement à l'indice de réfraction linéaire  $n(\omega)$  et au coefficient d'absorption  $\alpha(\omega)$  qui s'expriment sous la forme des équations (1) et (2) :

$$n(\omega) = \Re\left(\sqrt{1 + \chi^{(1)}(\omega)}\right)$$

$$\alpha(\omega) = 2 \frac{\omega}{c} \Im\left(\sqrt{1 + \chi^{(1)}(\omega)}\right)$$

### 1.3.1.2. Susceptibilité non linéaire du second ordre et considérations de symétrie du matériau

La susceptibilité non linéaire du second ordre est souvent représentée par le symbole  $\chi^{(2)}$ . Contrairement à la susceptibilité linéaire, qui décrit la réponse proportionnelle du matériau à un champ électromagnétique faible, la susceptibilité non linéaire du second ordre implique des effets qui sont proportionnels au carré de l'amplitude du champ incident. Elle est associée à la génération de phénomènes non linéaires, tels qu'expliqués schématiquement dans la Figure 14 avec la génération de seconde harmonique (SHG), la somme de fréquences (SFG) et la différence de fréquences (DFG).

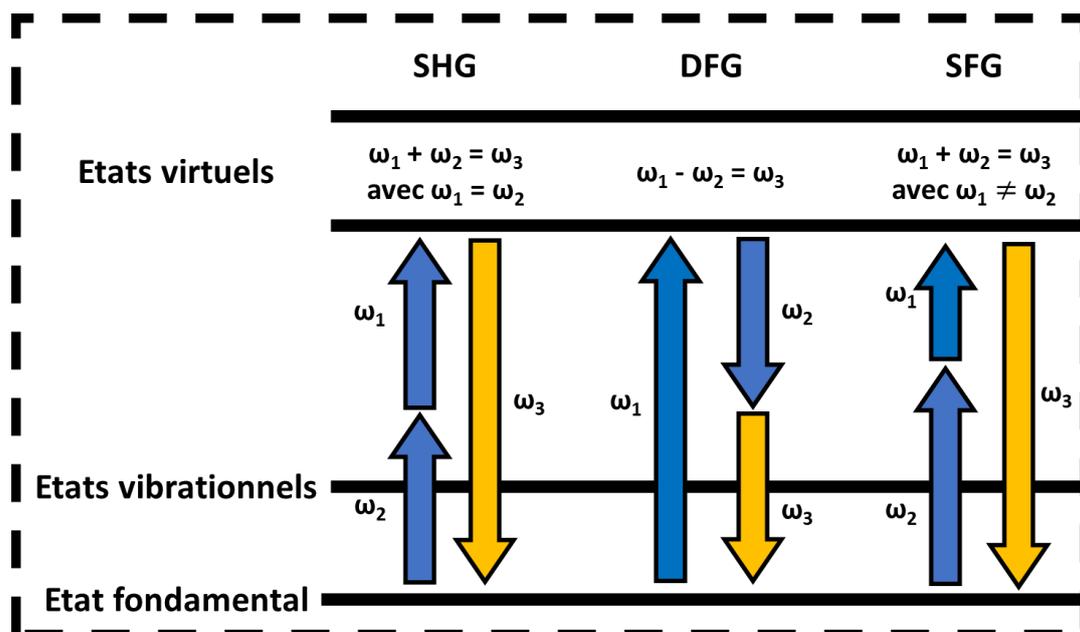


Figure 14 : Diagramme énergétique correspondant aux non-linéarités du second ordre comprenant la SHG, DFG et la SFG.

La considération de la symétrie du matériau est essentielle lorsqu'on étudie la susceptibilité non linéaire du second ordre. La symétrie détermine si la susceptibilité du second ordre est non nulle ( $\chi^{(2)} \neq 0$ ) ou si elle s'annule ( $\chi^{(2)} = 0$ ). En effet, seul un matériau non centrosymétrique présente une susceptibilité non linéaire du second ordre non nulle.

Pour une structure non centrosymétrique, la susceptibilité non linéaire du second ordre est une propriété optique qui peut générer des effets optiques non linéaires. Par exemple, en appliquant un champ électrique optique, issu d'un laser, à un matériau avec une susceptibilité non linéaire du second ordre différente de zéro, il est possible de générer une harmonique à une fréquence double de celle du champ incident [Franken 1961]. Ce processus, qui est au cœur de mes travaux de recherche, permet de générer un signal optique à la fréquence double de la fréquence d'entrée grâce à l'inscription d'une non linéarité d'ordre deux dans un matériaux centrosymétrique. Cela peut avoir un intérêt pour la création de nouvelles fréquences laser, pouvant aller jusqu'au domaine de l'UV.

### I.3.1.3. Susceptibilité non linéaire du troisième ordre

La susceptibilité non linéaire du troisième ordre ( $\chi^{(3)}$ ) est une propriété non linéaire de la matière qui est présente dans tous les matériaux, quels que soient leurs caractéristiques de symétrie.

La susceptibilité du troisième ordre est représentée par un tenseur de troisième ordre. Ce tenseur résulte de la somme des contributions résonnantes ( $\chi_R^{(3)}$ ) et non résonnantes ( $\chi_{NR}^{(3)}$ ). Il prend la forme d'une somme de ces deux termes :

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

Chaque terme contient une partie réelle et une partie imaginaire. L'indice non linéaire et l'absorption multiphotonique représentent respectivement la partie réelle et imaginaire de la partie non résonnante  $\chi_{NR}^{(3)}$ . La partie résonnante  $\chi_R^{(3)}$  est composée de la variation d'indice non linéaire liée aux effets de diffusion pour la partie réelle, et de la diffusion Raman et Brillouin pour la partie imaginaire.

Parmi les effets non linéaires du troisième ordre qui impliquent donc la susceptibilité optique non linéaire du troisième ordre, il y a notamment l'effet Kerr optique. L'effet Kerr optique se produit lorsqu'un matériau, est soumis à un champ électrique intense, tel que celui créé par un faisceau laser. En réponse à ce champ électrique, les propriétés optiques du matériau changent de manière non linéaire. Plus précisément, l'indice de réfraction du matériau varie en fonction de l'intensité du champ électrique.

La susceptibilité non linéaire du troisième ordre est également à la base de nombreux phénomènes optiques non linéaires, tels que l'effet Raman stimulé, l'effet d'auto-focalisation....

### **I.3.1. Propagation dans les fibres optiques multimodes**

Cette partie propose une revue de l'état de l'art sur les dynamiques non linéaires dans les fibres optiques multimodes. Il débute par une présentation des aspects linéaires et non linéaires de la propagation d'un champ optique dans une fibre, incluant des phénomènes tels que l'effet Kerr, l'effet Raman et le concept de génération de raies paramétriques par instabilités paramétriques géométriques. Cette synthèse théorique permet d'établir les problématiques qui seront abordées dans le cadre de cette thèse.

#### **I.3.1.1. Propagation linéaire dans les fibres optiques**

Les fibres optiques sont généralement constituées de verres de silice présentant un indice de réfraction plus élevé en leur centre permettant ainsi de guider la lumière. Elles se composent traditionnellement de trois parties : le cœur guidant, la gaine optique et la gaine mécanique. Pour augmenter l'indice de réfraction du cœur et faciliter le guidage de l'onde électromagnétique par réflexion totale interne, le cœur est traditionnellement dopé avec des ions inertes intégrés dans la matrice de silice. La gaine optique, constituée de silice non dopée, confine le rayonnement dans le cœur en exploitant la différence d'indice. Enfin, la gaine mécanique a pour rôle de protéger la fibre de l'environnement extérieur tout en améliorant ses caractéristiques mécaniques. Il est possible de calculer les modes propres de la fibre en résolvant les équations de Maxwell comme pour tout guide d'onde. En l'absence d'effets non linéaires, la propagation des ondes optiques dans ces guides est régie par les équations de Maxwell [Agrawal 2019] :

$$\begin{aligned}\nabla \wedge \vec{E} &= -\frac{\delta \vec{B}}{\delta t} \\ \nabla \wedge \vec{H} &= -\frac{\delta \vec{D}}{\delta t}\end{aligned}$$

Les vecteurs  $\vec{E}$  et  $\vec{B}$  représentent respectivement le champ électrique et une densité de flux magnétique, tandis que les champs magnétiques et le vecteur de déplacement électrique sont représentées par  $\vec{H}$  et  $\vec{D}$ . En développant ces équations, nous obtenons l'équation de propagation suivante :

$$\nabla^2 \vec{E} + \frac{n^2}{c^2} \cdot \frac{d^2 \vec{E}}{dt^2} = 0$$

Dans cette équation de propagation,  $c$  représente la vitesse de la lumière dans le vide et  $n$  représente l'indice de réfraction du guide. Cette équation présente des solutions discrètes, décrites par la première fonction de Bessel dans une fibre à saut d'indice, qui représentent les modes de propagation c'est-à-dire des répartitions spatiales du champ lumineux invariantes par propagation dans la fibre. Les modes de propagations sont explicités suivant l'axe transversal.

Pour les fibres optiques, il est envisageable de regrouper des modes transverses électriques (TE), des modes transverses magnétiques (TM), et des modes hybrides (HE ou EH) en ensembles de modes dégénérés, ce qui signifie qu'ils ont des constantes de propagation ( $\beta$ ) très proches et se propagent à la même vitesse dans la fibre. Dans ce contexte, on peut définir une nouvelle base modale composée de modes appelés LP (« Linearly polarized »). Ces modes sont ainsi nommés parce que, pour chaque mode, le vecteur champ électrique transverse à la fibre est toujours orienté dans une direction constante, seul son sens pouvant varier. Une caractéristique notable de ces modes LP est qu'ils résultent d'une combinaison linéaire de modes TE, TM et hybrides. La Figure 15 illustre quelques exemples de répartitions transverses de modes  $LP_{mn}$  ainsi que la distribution des modes électromagnétiques qui les composent. Les indices  $m$  et  $n$  représentent respectivement l'indice azimutal et radial des modes LP. Cependant, il est important de souligner que la validité de la base modale des modes LP se limite à l'approximation de guidage faible, c'est-à-dire lorsque l'indice du cœur est peu différent de l'indice de la gaine.

Linearly polarized mode	Hybrid modes	Field distribution	Intensity distribution of $E_x$
$LP_{01}$	$HE_{11}$		
$LP_{11}$	$TE_{01}$		
	$TM_{01}$		
	$HE_{21}$		
$LP_{21}$	$EH_{11}$		
	$HE_{31}$		

Figure 15 : Décomposition et illustration de modes LP en modes électromagnétiques [Kitayama 2013].

Le calcul de la fréquence spatiale normalisée  $V$  et de la constante de propagation normalisée  $b$  permet de savoir quels modes sont guidés dans une fibre aux caractéristiques optogéométriques données.

$$V = \frac{2\pi}{\lambda} r_c \sqrt{n_c^2 - n_g^2} = \frac{2\pi}{\lambda} r_c ON$$

$$b = \frac{\beta^2 - k_0^2 n_g^2}{k_0^2 (n_c^2 - n_g^2)}$$

Dans ces équations,  $\lambda$  représente la longueur d'onde de travail,  $r_c$  est le rayon du cœur,  $n_c$  et  $n_g$  sont respectivement l'indice de réfraction maximal du cœur et de la gaine,  $\beta$  est la constante de propagation du mode considéré, et  $k_0$  est la norme du vecteur d'onde dans le vide. Une mesure couramment utilisée pour caractériser une fibre optique est son ouverture numérique ( $ON$ ), qui peut être liée à l'angle incident limite pour que l'onde soit guidée. Il est possible de déterminer le nombre de modes guidés dans la fibre à partir de courbes de dispersion similaires à celles présentées dans la Figure 16 ci-après. Plus la valeur de  $V$  sera élevée, plus la fibre pourra guider de modes. Chaque mode, en dehors du mode fondamental, possède une fréquence spatiale normalisée dite de coupure, correspondant à la valeur limite de  $V$  pour que le mode soit guidé.

Dans le cas d'une fibre à saut d'indice, la valeur de la fréquence spatiale normalisée de coupure du second mode de la fibre est de 2,405, tandis que pour une fibre à gradient d'indice, elle est de 3,518. Cette différence s'explique par les variations de géométrie entre les modes de chaque type de fibre optique.

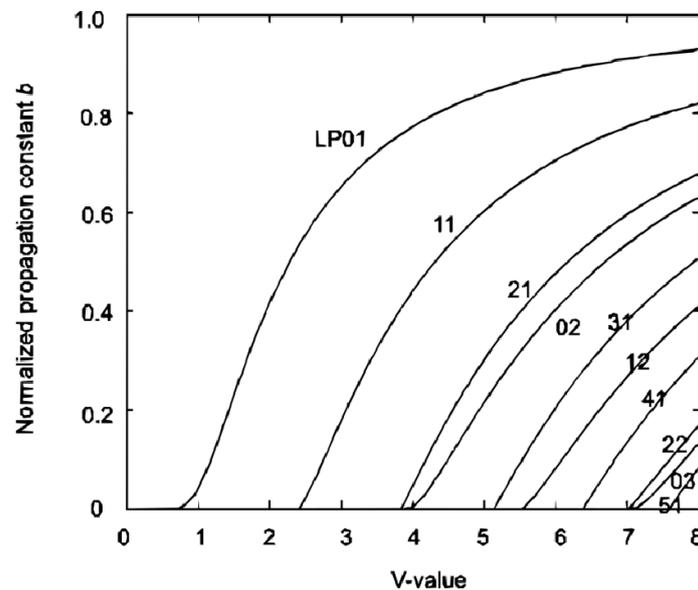


Figure 16 : Courbe de dispersion des modes d'une fibre à saut d'indice [Kitayama 2013].

Quand la fibre est multimode, les modes interfèrent pour créer un champ de tavelures (« speckle ») à travers la section du cœur et sur toute la longueur de la fibre. La taille et la quantité de tavelures dépendent du nombre de modes excités.

### ***Fibre Multimode : Fibre à saut d'indice et fibre à gradient d'indice parabolique (GRIN)***

Au sein de la famille des fibres multimodales, on observe principalement deux catégories : les fibres à saut d'indice et les fibres à gradient d'indice. Comme leur appellation le suggère, leur distinction réside dans la forme de leur profil d'indice de réfraction, illustrée à la Figure 17 et accompagnée de la représentation correspondante de la propagation des rayons.

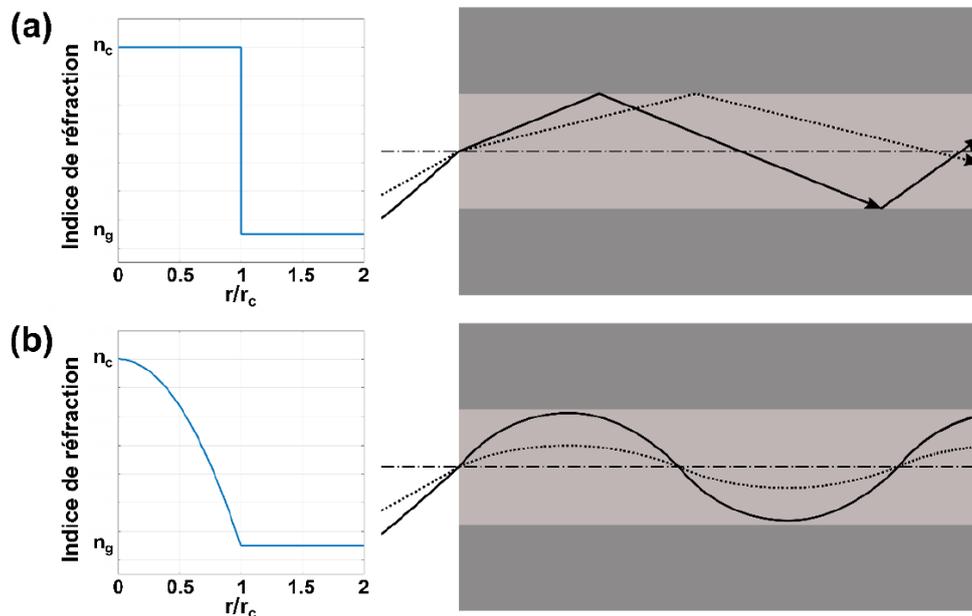


Figure 17 : Profil d'indice de réfraction et schématisation du guidage par des rayons pour (a) une fibre à saut d'indice et (b) une fibre à gradient d'indice parabolique.

Le profil d'indice conditionne simultanément le confinement modal (le diamètre des modes) et la répartition des constantes de propagation des divers modes, y compris leur dégénérescence. Dans une fibre à gradient d'indice, les modes dégénérés forment des groupes de modes ayant la même constante de propagation  $\beta_h$ . Cette constante est définie par l'équation ci-dessous, où  $h$  représente l'ordre du groupe de modes, et  $n$  et  $m$  sont respectivement les indices azimutaux et radiaux des modes  $LP_{mn}$ . Ils sont tels que  $h=2n+m-1$  et  $\Delta=\frac{0N^2}{2n_c}$  est la différence d'indice relative de la fibre.

$$\beta_h = k_0 n_c - h \frac{\sqrt{2\Delta}}{r_c}$$

De plus, ce type de profil d'indice de réfraction entraîne un processus appelé auto-imagerie pour le champ propagé, signifiant que la structure du champ transverse se reproduit de manière périodique au cours de la propagation [Iga 1980]. Enfin, pour des dimensions et une ouverture numérique identiques, le nombre de modes guidés par une fibre multimodale à saut d'indice ou à gradient d'indice diffère et peut être approximé à l'aide des formules du tableau ci-dessous. Une fibre multimodale à saut d'indice propage approximativement le double de modes par rapport à une fibre à gradient pour une fréquence spatiale normalisée identique.

	<b>Nombre de modes électromagnétiques guidés</b> ( $r_c = 25 \mu m, \lambda = 1064 nm, V = 29.7$ )	<b>Nombre de modes LP guidés</b> ( $r_c = 25 \mu m, \lambda = 1064 nm, V = 29.7$ )
<b>Fibre à saut</b>	$N = \frac{V^2}{2} = 440$	$N' = \frac{V^2}{8} = 110$
<b>Fibre à gradient parabolique</b> $g = 2$	$N = \frac{V^2}{2} \frac{g}{g+2} = \frac{V^2}{4} = 220$	$N' = \frac{V^2}{16} = 55$

Tableau : Comparaison du nombre de modes guidés dans une fibre à saut d'indice et une fibre à gradient d'indice parabolique.

Dans un système réel, au cours de la propagation dans une fibre, il est important de considérer les couplages linéaires qui peuvent avoir lieu. En effet, les modes d'une fibre sont théoriquement orthogonaux, cela signifie que l'intégrale de recouvrement en champ entre deux modes est nulle. En pratique, la fibre optique comporte des défauts de fabrication tels que de faibles variations de diamètre, d'ellipticité ou même des impuretés dans le coeur de la fibre [Agrawal 2019]. Tous ces défauts vont briser l'orthogonalité des modes théoriques lors de la propagation et donc entraîner des couplages énergétiques aléatoires entre les modes. De même, le conditionnement de la fibre dans l'environnement de travail peut être source de couplage. Lorsque la fibre est fortement courbée, il peut d'une part, y avoir des pertes dues à des fuites dans la gaine, mais également des couplages entre modes, notamment sur les modes d'ordres élevés. Ceux-ci ont une répartition d'énergie encore élevée proche de la gaine les rendant ainsi plus sensibles à la courbure. Il est également important de noter que le couplage entre modes est sensible à la différence de constante de propagation. Ainsi, plus les constantes de propagation sont proches et plus le couplage pourra être important. Par conséquent, les modes faisant partie d'un groupe de modes dégénérés s'échangent de l'énergie plus efficacement.

### I.3.1.2. Origine des dynamiques non linéaires

#### I.3.1.2.1. Automodulation de phase et élargissement spectral de type Kerr

Lorsque la lumière traverse un milieu diélectrique, l'onde lumineuse oscille en phase avec les électrons qui agissent comme des dipôles électriques. Cela entraîne la création de sources électromagnétiques secondaires, dont les champs générés s'ajoutent à celui de l'onde initiale. À faible puissance optique, cette génération est linéaire, ce qui signifie que la longueur d'onde des sources secondaires est la même que celle de la source d'excitation. Lorsque la puissance optique augmente, les oscillations des électrons deviennent anharmoniques, ce qui conduit à une réponse non linéaire du

matériau à l'onde [Agrawal 2019]. Dans les fibres optiques, cela se manifeste, par exemple, par une variation de l'indice de réfraction  $n$  du matériau en fonction de l'intensité de l'onde incidente  $I$ . Cette variation, due à la non-linéarité cubique  $\chi^{(3)}$ , correspond à l'effet Kerr et peut être exprimée de la manière suivante :

$$n = n_{\text{linéaire}} + n_2 I$$

Dans une fibre optique, l'indice de réfraction est impacté majoritairement par l'indice linéaire  $n_{\text{linéaire}}$  du matériau. L'indice non linéaire  $n_2$  a un poids nettement moins important, puisqu'il est de l'ordre de  $10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$ . Toutefois, le produit mathématique  $n_2 \times I$  devient non négligeable lorsque de fortes intensités se propagent. Comme présenté précédemment, cette susceptibilité non linéaire du troisième ordre engendre d'autres effets, tels que l'automodulation de phase de type Kerr (SPM ou Self-Phase Modulation en anglais) ou le mélange à quatre ondes (FWM pour Four-Wave Mixing en anglais).

La SPM se produit lors de la propagation d'une intensité lumineuse élevée à travers un matériau optique. Lorsque l'intensité de la lumière atteint un certain seuil, elle peut induire des variations de l'indice de réfraction du cœur de la fibre comme rappelé ci-dessus, ce qui conduit à une modification de la phase de l'onde lumineuse elle-même. L'apparition d'effets non linéaires dans le matériau provoquent par exemple un élargissement spectral de l'impulsion. La présence de ces nouvelles fréquences se propageant à des vitesses différentes dans la fibre engendre une dispersion chromatique. Or, dans des conditions de dispersion adaptées, la SPM peut compenser la dérive de fréquence due à la dispersion et mener à la formation de solitons qui se propagent sur de longues distances sans déformation.

Par ailleurs, le mélange à quatre ondes est un processus paramétrique dans lequel quatre ondes à différentes fréquences échangent de l'énergie selon la condition :

$$\omega_1 + \omega_2 = \omega_3 + \omega_4$$

où  $\omega_i$  représente la fréquence de l'onde  $i$ . Le mélange à quatre ondes est considéré comme dégénéré lorsque  $\omega_1 = \omega_2$ .

L'efficacité de conversion dépend de l'accord de phase entre les ondes :

$$\Delta k = \beta_3 - \beta_2 - \beta_1 + \beta_4$$

où  $\Delta k$  représente le déphasage entre les quatre ondes et  $\beta_i$  représente le coefficient de propagation de l'onde  $i$ . L'accord de phase ( $\Delta k = 0$ ) est nécessaire pour produire un mélange à quatre ondes optimal. Pour une fréquence donnée, les dispersions induites par le guide évoluent au cours de la propagation en fonction du mode de propagation et sont associées à des évolutions des états de phase [Nazemosasat 2016]. Plus le nombre de modes de propagation est important, plus le panel des états de phase est

important. L'accord de phase se produit donc plus fréquemment dans une fibre multimode que dans une fibre où un seul mode se propage.

### 1.3.1.2.2. Autonettoyage par effet Kerr

L'autonettoyage Kerr [Krupa 2016a, Krupa 2017, Liu 2016], qui permet la transformation d'un speckle en un faisceau quasi monomodal, représente une première étape de manipulation de la lumière sous l'effet de sa propre intensité comme présenté dans la Figure 18. Ce processus singulier a d'abord été expliqué par l'interaction entre un effet d'auto-imagerie linéaire et la non-linéarité de Kerr, en utilisant la puissance du faisceau pour forcer les modes transversaux d'une fibre optique MMGRIN à échanger de l'énergie [Krupa 2016a]. La modulation périodique du faisceau le long de la propagation avec un profil parabolique de l'indice de réfraction du cœur de la fibre, introduit une modulation périodique qui est convertie en un changement périodique de l'indice de réfraction au moyen de la non-linéarité de Kerr [Krupa 2016b, Krupa 2017]. Ainsi, cette évolution non linéaire périodique peut satisfaire le processus d'accord de phase entre les modes transversaux, tous excités en phase par un faisceau gaussien initial. Cependant, le nettoyage spatial des modes d'ordre élevé a également été démontré, ce qui renforce la portée de ces résultats et démontre la possibilité de contrôler une lumière complexe en modifiant les conditions initiales du faisceau couplé dans une fibre multimodale [Deliancourt 2019a, Deliancourt 2019b]. Ce processus a été démontré pour des impulsions allant de la nanoseconde [Krupa 2017] à la femtoseconde [Liu 2016], bien qu'une puissance crête plus élevée soit nécessaire pour atteindre le seuil du phénomène dans ce dernier cas. Ce nettoyage spatial apparaît également directement dans la fibre avant qu'un effet significatif d'auto-modulation de phase ne perturbe le profil spectral initial de l'impulsion [Krupa 2017]. Cependant, une forte modulation est clairement visible dans le domaine temporel, introduisant un remodelage de l'impulsion et un raccourcissement de celle-ci en régime sub-nanoseconde [Krupa 2018, Leventoux 2021]. Ce comportement démontre clairement la nature spatio-temporelle de ce processus non conventionnel. Il est important de noter que l'utilisation d'une impulsion longitudinale subnanoseconde incohérente conduit à un processus d'auto-nettoyage indépendant sur chaque mode longitudinal.

L'autonettoyage a également été observé dans des fibres passives et actives [Guenard 2017a, Guenard 2017b, Wright 2017, Teġin 2020] et dans des cônes (tapers) actifs [Niang 2019, Niang 2021], ce qui ouvre une nouvelle voie pour le développement de lasers à fibre puissants fonctionnant dans des configurations à commutation Q ou à verrouillage de mode [Guenard 2017b, Wright 2017, Teġin 2020]. Il a également été démontré que le processus d'autonettoyage était un processus cohérent permettant l'émission d'un faisceau monomode qui peut être combiné de manière cohérente avec un second faisceau nettoyé obtenu dans une fibre différente à partir de la même source laser [Krupa 2017, Fabert 2021]. Dans ces conditions, le chemin complexe vers la stabilisation de la puissance entre les modes est pavé

d'effets intéressants et transitoires capables de satisfaire aux conditions de nouvelles applications ; l'imagerie à travers des fibres multimodes étant l'une d'entre elles [Moussa 2021].

Il est important de noter que le profil parabolique de l'indice de réfraction du cœur de la fibre limite l'effet de la dispersion modale, ce qui permet d'étendre les longueurs d'interaction entre les modes guidés en imposant une différence fixe entre les vitesses des modes. Ce profil d'indice de réfraction particulier agit comme un puits de potentiel qui favorise le processus de nettoyage. Même si l'autonettoyage spatial a été observé avec un profil d'indice de réfraction non parabolique [Krupa 2019], le cas particulier des fibres à indice progressif a été étudié avec l'observation d'un faisceau de sortie non linéaire autonettoyé pour une fibre à quelques modes [Mohammadzahery 2021].

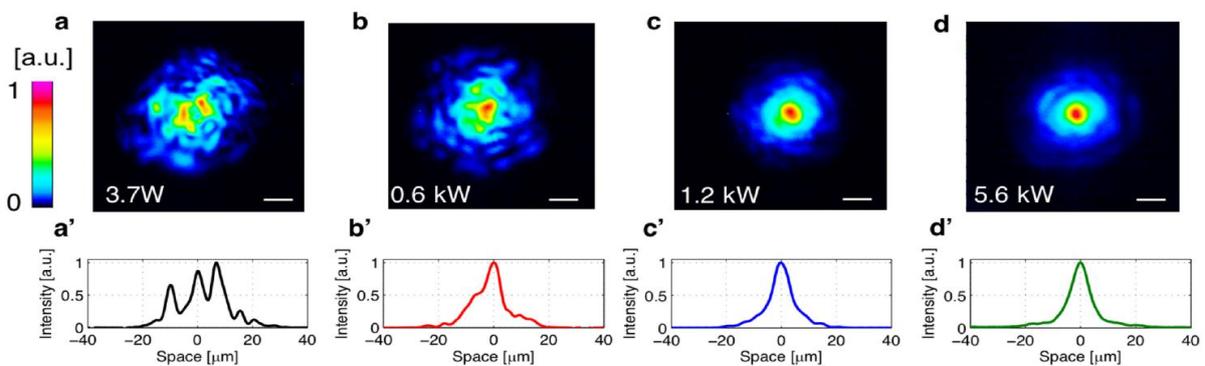


Figure 18 : Auto-nettoyage Kerr dans une MMGRIN 50/125 de 12 m avec des impulsions sub-nanosecondes [(a)-(d)] images en champ proche à 1064 nm pour plusieurs valeurs de la puissance crête de sortie, échelles : 10 µm. [(a')-(d')] profil de faisceau correspondant selon la dimension transverse x (en y = 0). [Krupa 2017].

La Figure 19 présente les évolutions spectrales (abscisse) et spatiales (ordonnée) d'un faisceau pendant le processus d'autonettoyage. À faible puissance (a), le faisceau est multimode. À puissance plus élevée (b), l'autonettoyage Kerr se produit sur l'onde de pompe, sans élargissement spectral significatif, conversion de fréquence ou autres processus dissipatifs. Cet effet diffère également de l'autofocalisation, qui nécessite des niveaux de puissance crête de plusieurs mégawatts, plusieurs ordres de grandeur au-dessus des seuils de nettoyage Kerr. Il est important de souligner que cet effet d'auto-organisation spatiale s'est avéré résistant aux contraintes mécaniques agissant sur la fibre, ainsi qu'aux légères variations de l'injection initiale.

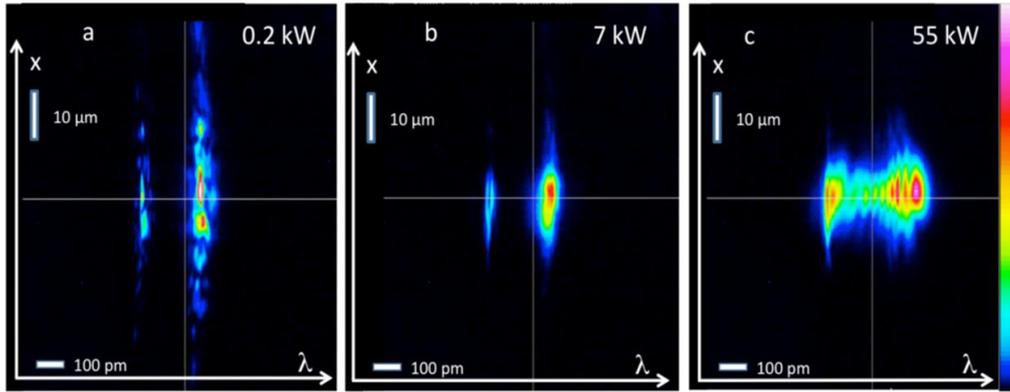


Figure 19 : Relevés spectrospatiaux d'un faisceau a la sortie d'une GIMF pour trois puissances différentes. Axe vertical : dimension spatiale ; axe horizontal : évolution de la longueur d'onde.

### I.3.1.2.3. Effet Raman

L'effet Raman est une dynamique non linéaire inélastique se produisant dans les fibres optiques. Par ce processus, une onde se propageant à une fréquence donnée dans un milieu peut transférer son énergie vers d'autres fréquences pour en générer de nouvelles. La Figure 20 illustre les processus mis en jeu. Dans notre contexte, la diffusion Raman stimulée (SRS pour Stokes Raman Scattering en anglais) est l'un des phénomènes Raman qui se produit dans les fibres optiques.

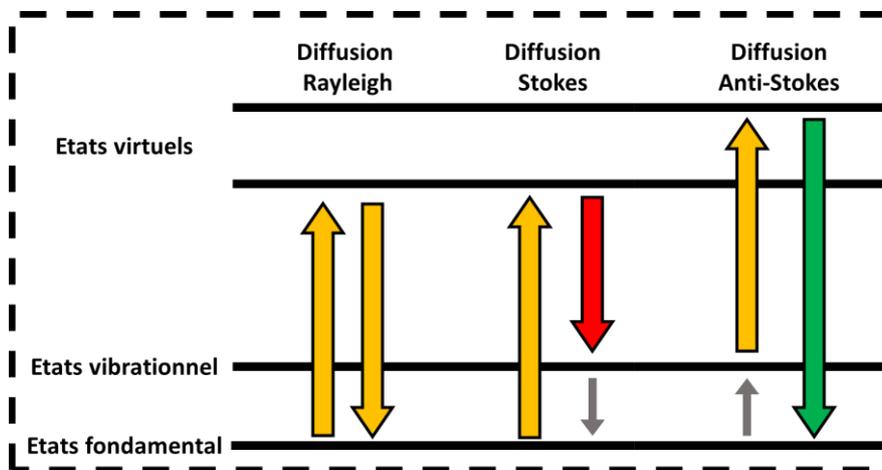


Figure 20 : Diagramme énergétique illustrant les processus de diffusion Raman.

Lorsque l'amplitude d'une onde de pompe est élevée, sa propagation à travers un milieu peut provoquer l'apparition d'une onde Stokes de puissance élevée avec un rendement donné. Le degré de conversion de cette opération est mesuré par le gain Raman « GR » dont la valeur dépend notamment de la fréquence.

L'onde Stokes générée peut alors être amplifiée. Ce phénomène se produit lorsque les longueurs d'onde les plus basses transfèrent leur énergie aux longueurs d'onde les plus élevées. En régime solitonique, cela entraîne un décalage fréquentiel automatique, également connu sous le nom de "self-

frequency shift" (SFS), au sein de l'impulsion. Ce décalage provoque un déplacement du spectre moyen vers des longueurs d'ondes plus élevées. La génération d'impulsions de forte puissance utilise le principe de l'auto décalage Raman à des longueurs d'onde peu communes [Gordon 1986, Dudley 2006, Delahaye 2018]. La création de nouvelles raies lasers peut s'étendre jusqu'à la création d'un supercontinuum correspondant à un spectre continu dans une gamme fréquentielle donnée [Alfano 1989, Dudley 2006].

### 1.3.1.3. L'équation non linéaire de Schrödinger dans les MMGRIN

La propagation des impulsions dans les fibres, caractérisée par des phénomènes non linéaires, est généralement modélisée par l'équation non linéaire de Schrödinger généralisée (GNLSE). Cette équation intègre des termes représentant les interactions non linéaires, enrichissant ainsi l'équation de propagation [Agrawal 2019].

$$\frac{\partial A}{\partial z} + \frac{\alpha}{2}A - \sum_{k \geq 2} \frac{i^{k+1}}{k!} \beta^k \frac{\partial^k}{\partial T^k} A = i\gamma_{NL}(1 + i\tau_{shock} \frac{\partial}{\partial T})(A(z, T) \int_{-\infty}^{+\infty} R(T')|A(T - T')|^2 dT')$$

A représente l'enveloppe de l'impulsion. La partie gauche de l'équation, indiquée en bleu, décrit la propagation linéaire de l'impulsion, tenant compte à la fois de l'absorption et de tous les ordres de dispersion. La partie droite de l'équation, en vert, prend en considération les différentes manifestations des dynamiques non linéaires. En dehors de situations idéales, la complexité de cette équation rend sa résolution analytique impossible. Par conséquent, il est nécessaire de recourir à une résolution numérique.

Pour des impulsions d'une durée dépassant quelques picosecondes et se propageant à travers des fibres standard en silice, il est envisageable de simplifier l'équation en ne tenant compte que de l'effet Kerr, de la diffusion Raman stimulée (SRS) et de la dispersion d'ordre 2 :

$$i \frac{\partial A}{\partial z} - \frac{\beta_2}{2} \frac{\partial^2 A}{\partial T^2} + \gamma_{NL} \left( |A|^2 A - T_R A \frac{\partial |A|^2}{\partial T} \right) = 0$$

L'efficacité des effets NL est quantifiée par le coefficient non linéaire  $\gamma_{NL}$ , tel que :

$$\gamma_{NL} = \frac{\omega_0 n_2}{c A_{eff}(\omega_0)}$$

L'indice non linéaire  $n_2$  dépend de la composition du milieu de propagation.  $A_{eff}$  est l'aire effective du mode se propageant dans la fibre, telle que :

$$A_{eff}(\omega) = \frac{\left( \iint_{-\infty}^{+\infty} |\tilde{F}(x, y, z)|^2 dx dy \right)^2}{\iint_{-\infty}^{+\infty} |\tilde{F}(x, y, z)|^4 dx dy}$$

Avec  $\tilde{F}(x, y, z)$  représentant la distribution transverse du mode en propagation, dans le contexte de la propagation dans des fibres monomodes, cette distribution reste constante dans l'espace et varie en fonction de la fréquence optique. Cela permet de simplifier l'équation à deux dimensions : une dimension

spatiale longitudinale et une dimension temporelle/spectrale. La résolution numérique de ce modèle, appelé "1+1D", nécessite une importante puissance de calcul, avec des temps d'exécution pouvant atteindre plusieurs jours selon les conditions de propagation et le nombre d'effets non linéaires pris en compte.

La modélisation de la propagation des impulsions dans les MMF nécessite de considérer à la fois les trois dimensions spatiales et la dimension temporelle. En principe, il n'est pas possible de séparer les effets spatiaux et temporels, ce qui augmente considérablement la résolution numérique requise pour l'équation. Deux modèles sont principalement utilisés :

La résolution de l'équation de Schrödinger non linéaire généralisée en 3+1D implique directement la résolution de l'équation de propagation dans les quatre dimensions, avec un champ transverse 2D en entrée. Cette approche, appelée GNLSE 3+1D, prend en compte les dimensions transversales à l'aide d'un potentiel décrivant le profil d'indice de réfraction de la fibre. Bien que cet outil soit le plus direct, il est également le plus coûteux en termes de temps de calcul : simuler la propagation sur quelques mètres de fibre peut nécessiter plusieurs jours de calcul. Il est principalement utilisé pour les propagations très multimodes (plus de 10 modes) [Renninger 2013].

Une alternative consiste à utiliser la GNLSE multimode (MM-GNLSE), où les dimensions transversales sont indirectement décrites par l'étude individuelle des différents modes de la fibre, qui sont couplés entre eux par la non-linéarité. Cette approche implique  $N$  GNLSE 1+1D couplées entre elles. Cette méthode offre l'avantage de réduire le temps de calcul pour des propagations faiblement multimodes (généralement  $N < 10$ ). Toutefois, il convient de noter que le nombre de termes de couplage non linéaires entre les équations augmente en  $N^4$  [Poletti 2008].

Dans les MMGRIN, les modes se propagent avec des vitesses de groupe presque identiques. Cette caractéristique entraîne une périodicité longitudinale dans le processus d'interférence intermodale. Cette périodicité du faisceau peut être exploitée pour simplifier les équations de propagation. Ainsi, Conforti et ses collègues ont développé un modèle dérivé de l'Équation Non Linéaire de Schrödinger Généralisée en 3+1 dimensions (GNLSE 3+1D) avec un potentiel parabolique spatial. Ils décrivent la propagation à l'aide d'une seule GNLSE en 1+1 dimension avec un coefficient non linéaire périodique. Cette équation peut être résolue rapidement par des méthodes standard avec une puissance de calcul minimale. Ce modèle permet de reproduire plusieurs phénomènes caractéristiques des MMGRIN, tels que les instabilités géométriques paramétriques (GPI). Ce modèle considère la propagation d'un faisceau transversalement gaussien avec un rayon variable, ce qui correspond à l'auto-imagerie tridimensionnelle des modes dans la MMGRIN. Le calcul de l'aire effective associée à ce rayon variable permet ensuite d'obtenir la variation périodique du coefficient de non-linéarité nécessaire à la résolution de la GNLSE

en 1+1 dimension. La Figure 21 illustre une variation possible du rayon et du coefficient de non-linéarité correspondant, pour une MMGRIN de type 50/125.

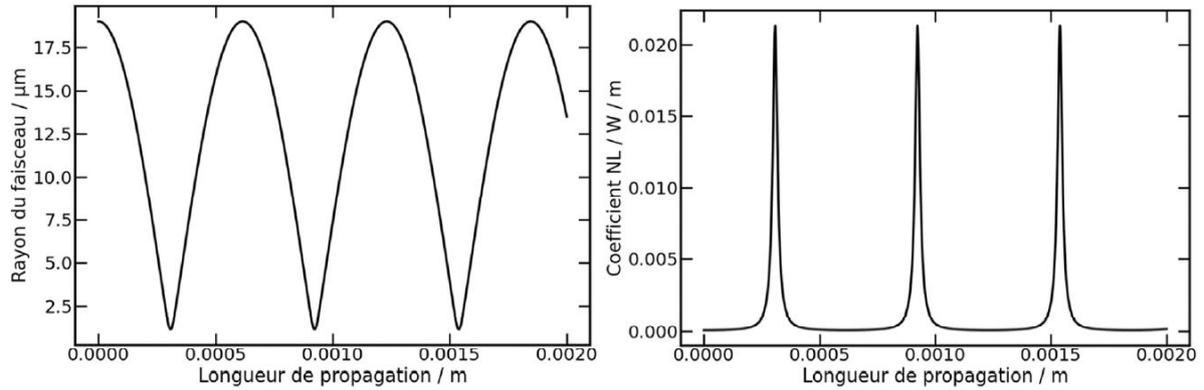


Figure : 21 Parametres utilisés pour le calcul de  $\gamma_{NL}$  pour la résolution de la GNLSE 1+1D selon le modèle développé par Conforti et al. ; Gauche : Evolution du rayon modal au cours de la propagation ; Droite : évolution de  $\gamma_{NL}$  au cours de la propagation.

### 1.3.1.4. Conversion de fréquence par instabilité géométrique paramétrique (GPI)

La nature spatiotemporelle de la propagation des faisceaux dans les MMGRIN entraîne la formation d'instabilités de modulation spatiales, qui ne sont pas observées dans les fibres monomodes ou peu multimodes. En effet, nous avons constaté qu'un faisceau multimode de forte puissance se propageant dans une MMGRIN peut induire, via l'effet Kerr et l'effet d'auto-imagerie, une modulation longitudinale de l'indice de réfraction du cœur. La focalisation périodique du faisceau peut être interprétée comme une instabilité paramétrique, permettant ainsi la génération paramétrique de nouvelles fréquences optiques à partir de l'onde de pompe [Longhi 2003].

Ces instabilités sont similaires aux instabilités de Faraday observées dans les fluides modulés [Faraday 1831]. Cependant, étant générées par la géométrie (le profil d'indice parabolique) de la GIMF, ce phénomène est désigné sous le terme d'« instabilité géométrique paramétrique » (GPI) [Krupa 2016] [Mafi 2012].

En présence d'une excitation nanoseconde, les GPI présentent une conversion efficace de l'énergie de pompe vers les raies paramétriques. Cette efficacité est fortement influencée par la dynamique de l'effet d'auto-imagerie, qui dépend elle-même du nombre initial de modes excités. Les fréquences générées suivent la formule ci-dessous :

$$f_m = \pm \sqrt{\frac{m}{2\pi z_{SI} \beta_2}} , m = 1, 2, \dots$$

où  $f_m$  est la fréquence de la raie d'ordre  $m$  et  $z_{SI}$  est la longueur d'auto-imagerie du faisceau dans la fibre.

La première démonstration de GPI dans les MMGRIN a été publiée par Krupa et al en 2016 [Krupa 2016]. Ils ont utilisé des impulsions sub-nanosecondes à 1064 nm. Les résultats obtenus sont présentés sur la Figure 22 :

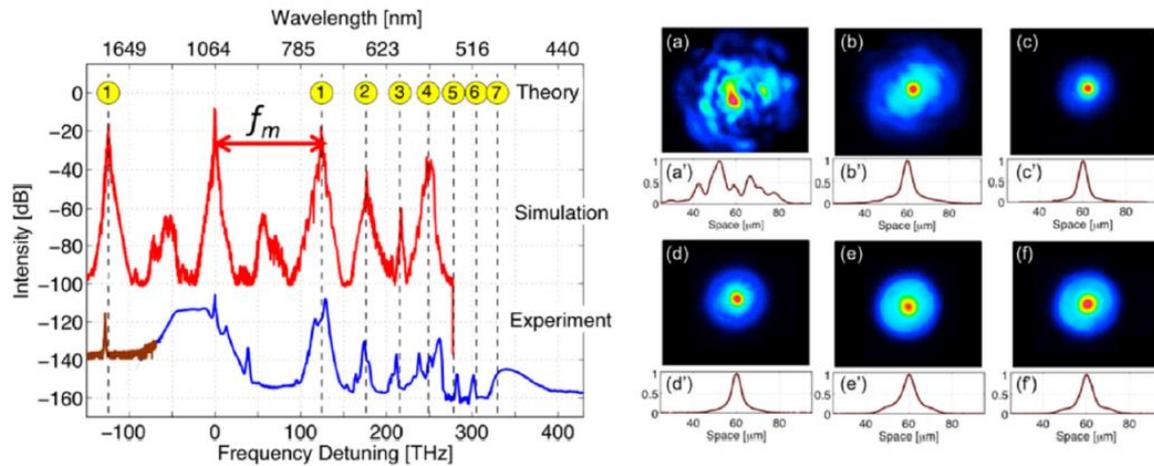


Figure 22 : A gauche : Spectre présentant la génération de fréquences par GPI obtenue expérimentalement, analytiquement, et numériquement. Droite : images en champ proche en sortie de fibre et profil correspondant : pour l'onde de pompe à  $P = 0,06$  kW [(a) et (a')] et à  $P = 50$  kW [(b) et (b)], et pour les quatre premières bandes spectrales à 750 nm [(c) et (c)], 650 nm [(d) et (d)], 600 nm [(e) et (e)] et 550 nm [(f) et (f)] pour  $P = 50$  kW. [Krupa 2016].

Les ondes Stokes et anti-Stokes des GPI au premier ordre présentent un important décalage par rapport à l'onde de pompe, d'environ 123,5 THz pour une fibre de type 50/125. Ces observations démontrent que les GPI permettent une conversion efficace de la pompe sur une vaste gamme spectrale, incluant les longueurs d'onde visibles et infrarouges.

Ainsi, le processus de génération de paramétrique instable (GPI) découle de la focalisation périodique du faisceau dans la MMGRIN. Cette interprétation est appuyée par l'analyse numérique de Conforti et ses collègues [Conforti 2017], présentée précédemment. Leurs travaux démontrent qu'en introduisant une variation périodique longitudinale de l'indice de réfraction non linéaire dans l'équation de Schrödinger non linéaire unidimensionnelle (NLSE 1D+1), il est possible de reproduire la génération de raies par GPI. Toutefois, dans les MMGRIN, cette variation périodique de la largeur du faisceau résulte de la nature multimodale de la propagation. Les longueurs d'onde des raies paramétriques peuvent également être déduites à partir de la théorie du mélange intermodal à quatre ondes (IMFMW). Les longueurs d'onde qui satisfont à l'accord de phase pour l'IMFMW correspondent aux longueurs d'onde générées par GPI. Néanmoins, la nature spatialement multimodale des raies spectrales générées par GPI n'a pas encore été clairement démontrée expérimentalement. Pour combler cette lacune, j'ai développé un banc de caractérisation spectrospatial afin d'observer de manière plus détaillée les dynamiques modales impliquées dans la génération des raies paramétriques dans les MMGRIN.

### I.3.2. Inscription de non-linéarité d'ordre 2 par poling dans les fibres optiques

Dans un matériau possédant une centrosymétrie, comme c'est le cas de la silice, la susceptibilité non linéaire du second ordre se trouve être nul. Cette caractéristique entrave la création d'une puissance paire du champ électrique lors du processus de polarisation, rendant ainsi impossible tout mécanisme de génération de seconde harmonique ou de doublage de fréquence. En 1980, Fujii et ses collaborateurs ont réalisé une avancée majeure en démontrant la faisabilité d'un phénomène de somme de fréquences grâce au mélange à trois ondes au sein d'une fibre optique [Fujii 1980]. Ce processus implique une interaction avec la susceptibilité d'ordre 2 et se produit sans nécessiter un accord de phase "globale" entre la fréquence fondamentale et la seconde harmonique. Cette méthode est nommée poling optique mais d'autres variantes existent telle que le poling thermoélectrique qui atteint actuellement de bonnes performances pour la conversion de seconde harmonique.

#### I.3.2.1. Poling thermoélectrique

Le poling thermoélectrique repose sur l'utilisation combinée d'un champ électrostatique et de la température. Cette méthode a été initialement développée par Wallis et Pomerantz en 1969 et est aujourd'hui la méthode de poling la plus utilisée pour des matériaux ayant une surface plane (rectangulaire, carré, circulaire...) et différentes gammes d'épaisseurs [Wallis 1969]. Comme le montre la figure 20, deux électrodes sont placées sur deux faces opposées d'une lame. Après application d'une polarisation électrique entre ces électrodes, un champ statique se crée dans le matériau et une couche déplétée, chargée négativement sous l'anode est engendrée, grâce à la migration d'ions positifs vers la cathode. Cependant, cette première méthode ne permet pas de réaliser une forte conversion au second harmonique du fait de la non satisfaction de l'accord des vitesses de phase entre les ondes. La susceptibilité non linéaire du second ordre se présente sous la forme :

$$\chi_{eff}^{(2)} = \chi^{(3)} E_{DC}$$

Avec  $E_{DC}$  étant le champ statique.

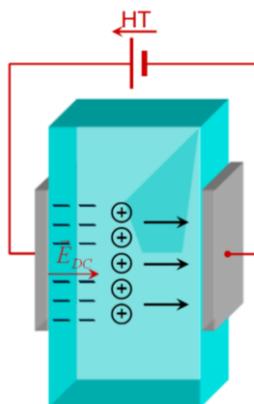


Figure 23 : Schéma de principe de la création d'un champ statique dans le cadre du poling thermo-électrique [Kudlinski 2004].

Un exemple de poling thermoélectrique a été montré récemment par Karam et al. en 2020 comme montré dans la Figure 24. Dans cet article, une lame de verre est utilisée pour recevoir l'inscription  $\chi^{(2)}$ . Cette lame est placée entre deux électrodes entre lesquelles une différence de potentiel est appliquée. Le tout est placé dans une atmosphère contrôlée. L'ensemble est chauffé à une température élevée, inférieure à la température de transition vitreuse  $T_g$  du verre, ce qui augmente la mobilité des ions. Sous l'effet du champ électrostatique créé par les électrodes, la structure du matériau est modifiée. Ensuite, la lame de verre est ramenée à température ambiante avant de retirer le champ électrostatique appliqué. Une (ou des) zone(s) de charges d'espace sont alors piégées au sein de la matrice vitreuse, entraînant la présence permanente d'un champ électrostatique dont la direction est opposée à celle du champ appliqué. C'est la présence de ce champ électrostatique dans une couche d'une épaisseur de quelques microns située sous l'anode qui rompt la centrosymétrie du verre : l'amplitude du  $\chi^{(2)}$  inscrit peut ensuite être caractérisée et quantifiée par mesure de génération de second harmonique. Cette méthode permet un taux de conversion proche de celui des cristaux non linéaires.

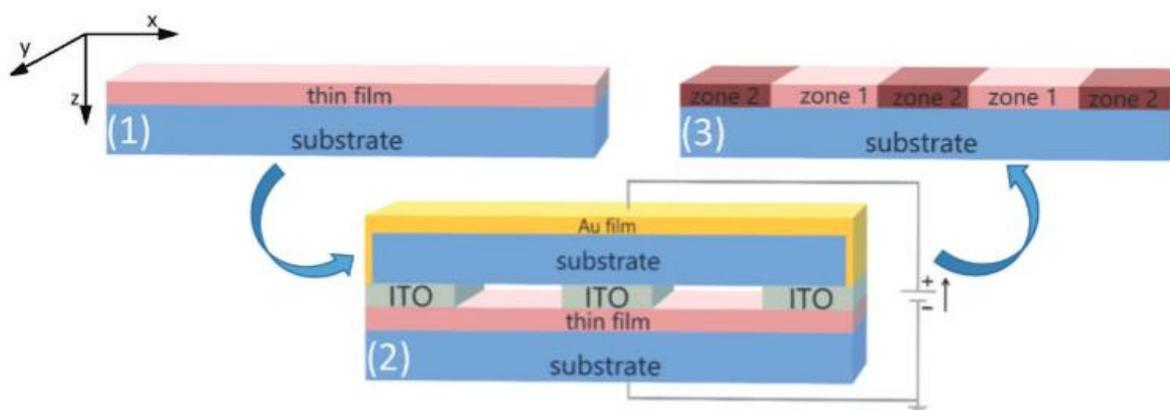


Figure 24 : Procédé de micro-impression thermoélectrique : Schéma du procédé : la couche mince de sodio-niobate est déposée sur une lame de verre borosilicaté (1), puis chauffé pendant qu'une forte tension est appliquée par une électrode structurée (en contact avec l'échantillon) (2) et refroidi avant d'éteindre le champ de courant continu. Il en résulte deux zones différentes sur l'échantillon post-traité (3). [Karam 2020].

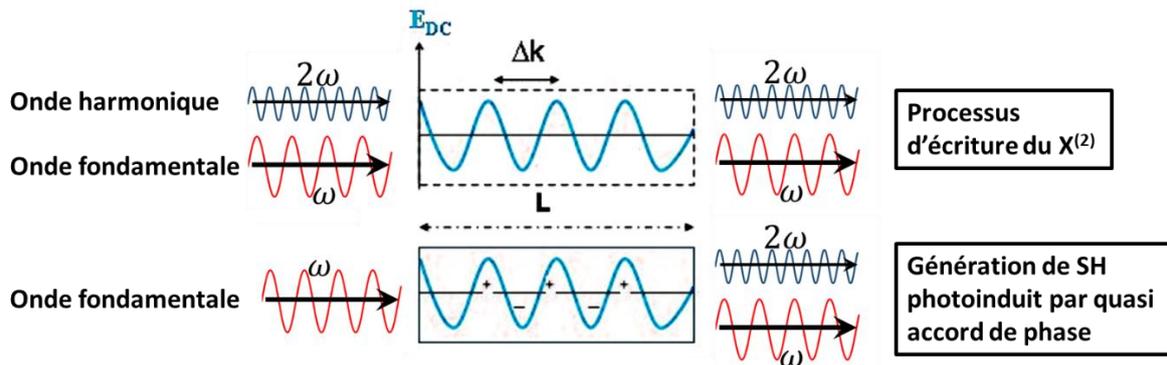
En 1997, Kazansky et al. ont utilisé le principe de quasi accord de phase par inscription d'un champ statique dans une fibre optique permettant la génération d'une seconde harmonique avec un pourcentage de puissance crête autour de 5% [Kazansky 1997]. Ce résultat peut être également obtenue lors de séance poling optique.

### 1.3.2.2. Poling optique

Le "poling" optique ou "technique d'ensemencement", tire partie d'une modulation rapide de l'indice de réfraction du matériau. Cette modulation est induite par la non-linéarité d'ordre 3, résultant de l'interaction entre les battements des deux harmoniques et l'onde fondamentale. Ce procédé est

représenté schématiquement à la Figure 25. Cette illustration actuellement admise dans la littérature, met en évidence l'importance des déplacements de charges qui se produisent sous l'effet d'un champ statique, dont l'expression de la polarisation est décrite dans cette même figure et découvert par Stolen en 1978 [Stolen 1978].

L'écriture du réseau périodique au cœur de ce procédé est intrinsèquement liée à l'intensité et à l'absorption des deux ondes par le matériau. En conséquence, le rendement de conversion évolue de manière progressive en fonction de la durée d'exposition.



$$P_{Dt} = \frac{3}{4} \chi^{(3)}(0, \omega, \omega, -2\omega) \cdot E(\omega) \cdot E(\omega) \cdot E^*(2\omega) \cos(\Delta kz)$$

Figure 25 : Schéma de principe du poling optique comprenant deux étapes : le processus d'écriture et la lecture de l'inscription par la fréquence fondamentale.

### I.3.2.2.1. Contexte historique du poling optique

Le poling optique a été observé à partir d'une génération d'un signal de seconde harmonique dans les fibres monomodes en silice dopée au germanium à partir d'une fréquence fondamentale laser par Osterberg et Margulis en 1986 [Osterberg 1986], ainsi que par Stolen et Tom en 1987 [Stolen 1987]. Lors de cette première observation, ce phénomène a été considéré comme lié à une redistribution de charges à grande échelle, résultant d'un effet de rectification optique provoqué par une interaction non linéaire cohérente entre la fréquence fondamentale et sa seconde harmonique. Ce processus de poling – dans les fibres monomodes ou multimodes – peut être initié par l'ajout d'un cristal non linéaire pour accélérer le phénomène comme le PPLN (Periodically Poled Lithium Niobate) ou le KTP (signifiant titanyl phosphate de potassium soit  $\text{KTiOPO}_4$ ), , etc... Il a été ensuite démontré dans des verres à base d'oxydes par [Zel'dovich 1991], suivi par [Balakirev 1996]. Ce phénomène a aussi été nommé l'effet photogalvanique cohérent ou effet Keldysh [Seraphin 1965], qui, dans le cas des verres d'oxydes, a conduit à la formation d'un champ électrostatique périodique favorisant cette redistribution de charges et la création d'une non-centrosymétrie.

### I.3.2.2.2. Poling optique dans les fibres monomodes

Les fibres optiques sont des matériaux vitreux le plus souvent composées de silice, et la nature centrosymétrique dont leur cœur n'est donc pas, *a priori*, favorable à l'établissement d'un processus non linéaire d'ordre 2 c'est-à-dire à la génération d'une seconde harmonique à partir d'une fréquence fondamentale s'y propageant. Cependant, en 1986, Österberg a décrit pour la première fois l'effet non linéaire induit par le mécanisme de poling optique [Österberg 1986]. Il a été montré qu'il est possible d'inscrire une susceptibilité du second ordre ( $\chi^{(2)}$ ) dans le cœur de la fibre, résultant d'un quasi accord de phase (QPM pour quasi-phase matching en anglais) entre la fréquence fondamentale et sa seconde harmonique. Après cette avancée majeure, Stolen, Djanov et Balakirev ont théoriquement décrit le phénomène de génération de seconde harmonique dans les fibres optiques [Stolen 1987, Djanov 1995, Balakirev 2008]. En particulier, ils ont montré que la susceptibilité  $\chi^{(2)}$  n'est pas répartie de manière homogène le long de la fibre, car elle est associée aux battements périodiques cohérents entre une fréquence fondamentale et sa seconde harmonique. La périodicité associée est décrite par l'équation :

$$\xi_{SH} = \frac{2\pi}{\beta_{SH} - 2\beta_{FF}}$$

Où  $\beta_{SH}$  représente la constante de propagation linéaire de l'onde de la seconde harmonique dans le matériau et  $\beta_{FF}$  celle de la fréquence fondamentale. Ce battement a été caractérisé par Margulis en 1995 [Margulis 1995]. Cette propagation induit une inscription de la susceptibilité du second ordre dans le cœur de la fibre. Cette période correspond à une alternance de polarisation de charges passant d'un pôle positif à un pôle négatif. Physiquement, cette modulation résulte en une inscription dont la périodicité et la polarisation présente des similarités avec l'inscription par poling thermoélectrique au sein d'un cristal non linéaire de PPLN.

Le poling optique a principalement été réalisé dans des fibres optiques monomodes où l'interaction non linéaire est renforcée par un confinement intense des champs électromagnétiques sur de longues distances de propagation. Par conséquent, on observe une génération significative de seconde harmonique en sortie de la fibre, avec un rendement de conversion de l'ordre de 5% a été généré dans une fibre monomode dopé Germanium [Osterberg 1986]. Dans le cadre de ma thèse le poling optique dans les fibres multimodes est un élément clé qui sera étudié tout au long de ce manuscrit.

### I.3.2.2.3. Poling optique dans les fibres multimodes à gradient d'indice

Pour les fibres multimodes, la génération d'une seconde harmonique par poling optique est possible dans des fibres à gradient d'indice. En effet, la propagation d'une onde optique injectée dans les fibres MMGRIN mène à briser périodiquement la centrosymétrie du matériau à condition notamment

que la puissance énergétique transportée par la fréquence fondamentale soit suffisamment importante. Ce point sera discuté par la suite dans ce manuscrit. Une étude porté par Eftekhari en 2017 a montré un pourcentage de conversion de 6,5 % dans une fibre MMGRIN avec un diamètre de cœur de 50  $\mu\text{m}$ , un gradient d'indice de  $\sim 1.6 \times 10^{-2}$  et pour une longueur de 5 m. Comme pour le poling dans les fibres monomodes, l'accord de phase dans une fibre MM se crée avec la même équation entre la fréquence fondamentale et la seconde harmonique présentée à la partie précédente. Une deuxième période est visible sur la fibre MMGRIN impliquant la période du self-imaging dépendant du gradient d'indice et du rayon du cœur et s'exprime par :

$$\xi_{FF} = \frac{\pi\rho}{\sqrt{2\Delta}}$$

Où  $\xi_{FF}$  correspondant au self-imaging de la fibre à gradient d'indice, avec  $\rho$  le rayon du cœur de la fibre et  $\Delta$  la différence d'indice entre le cœur et la gaine s'exprime par :

$$\Delta = \frac{n_{co}^2 - n_{cl}^2}{2n_{co}^2}$$

Où  $n_{co}$  est l'indice maximum de réfraction du cœur et  $n_{cl}$  est l'indice de réfraction de la gaine [Krupa 2016].

#### 1.3.2.2.4. Etat de l'art du rôle de l'élément dopant dans le poling

Dans les fibres MMGRIN utilisées durant ma thèse, le cœur est dopé au Germanium ( $\text{GeO}_2$ ) et peuvent contenir des impuretés de phosphore comme mesuré par Poumellec dans les fibres MM créé par la société Alcatel [Poumellec 1994]. Dans ces travaux Poumellec a étudié l'impact de différents dopants sur la génération de seconde harmonique. Pour les dopants nous concernant, le phosphore et le Germanium jouent séparément un rôle sur la génération de seconde harmonique, mais le premier est moins efficace que le second. La place des éléments dopants se fait par la substitution d'un atome de silicium par un atome de Germanium dans une matrice de silice [Mukherjeeshiv 1986, Majéris 2007]. Cette nouvelle matrice forme un réseau quasi parfait sans formation d'agrégats (répartition aléatoire des tétraèdres de  $\text{SiO}_4$  et  $\text{GeO}_4$ ), qui engendre une structure plus dense que celle du  $\text{SiO}_2$  pur. En effet, la masse molaire du Germanium est de 72,61  $\text{g}\cdot\text{mol}^{-1}$  alors que celle du silicium est de 28,08  $\text{g}\cdot\text{mol}^{-1}$ .

En 1995, Margulis a suggéré que le Germanium pouvait avoir un rôle dans le poling optique en raison de ses propriétés non linéaires. L'oxide de Germanium est un matériau semi-conducteur qui présente une réponse non linéaire significative aux champs électriques [McClelland 2004]. Il est doté d'une susceptibilité non linéaire plus élevée, ce qui signifie qu'il peut générer des effets optiques non

linéaires plus importants par rapport à d'autres éléments chimiques. Cela a conduit à l'hypothèse que l'incorporation de Germanium dans une structure optique, telle qu'une fibre optique ou un matériau utilisé pour le poling optique, pourrait améliorer les propriétés non linéaires et faciliter l'apparition du poling et donc la création d'une seconde harmonique dans la fibre [Margulis 1995]. Dans mes travaux de thèse présentés à la suite de ce manuscrit, je vais présenter une théorie alternative étayée par des arguments expérimentaux reposant principalement sur la spectroscopie Raman.

Dans ce chapitre je présente une analyse complète sur la capacité d'une fibre multimode à gradient d'indice à générer une onde au second harmonique par poling optique.

Une caractérisation des spécifications des fibres optiques utilisées est mise en place afin de les comparer, tant sur le plan de leur caractéristiques linéaires que sur leur fabrication et leur capacité à recevoir une modification de leur centrosymétrie par poling.

Une étude approfondie sur l'apparition de nombreuses fréquences dans les fibres est réalisée. Ainsi que la caractérisation d'un peigne de fréquence mettant en lumière l'impact du poling optique dans les fibres multimodes à gradient d'indice.

## Chapitre II. Aptitude des fibres MMGRIN au poling

### II.1. Contexte du travail

Cette partie a pour objectif d'étudier l'établissement du phénomène de poling optique dans des fibres multimodes à gradient d'indice (MMGRIN). Ce processus consiste à induire une susceptibilité non linéaire d'ordre deux  $\chi^{(2)}$  dans un milieu initialement centrosymétrique. L'inscription d'une susceptibilité non linéaire d'ordre 2 dans un milieu centrosymétrique est un processus qui nécessite la création d'un champ statique permettant la modification structurale du matériau. Ce phénomène de « poling tout optique » a été introduit dans les années 80 par Osterberg et Margulis, comme rappelé dans le Chapitre 1 [Osterberg 1986].

#### II.1.1. Montage expérimental

La Figure 26 présente le montage expérimental de poling optique dans les fibres multimodales que nous avons mis en place au début de mon travail de thèse. Il est divisé en plusieurs modules : le laser, le cube polarisant et les lames demi-onde ( $\lambda/2$ ), le KTP et les fibres optiques ainsi que la partie caractérisation. Chacun de ces éléments et leur rôle sont expliqués ci-après.

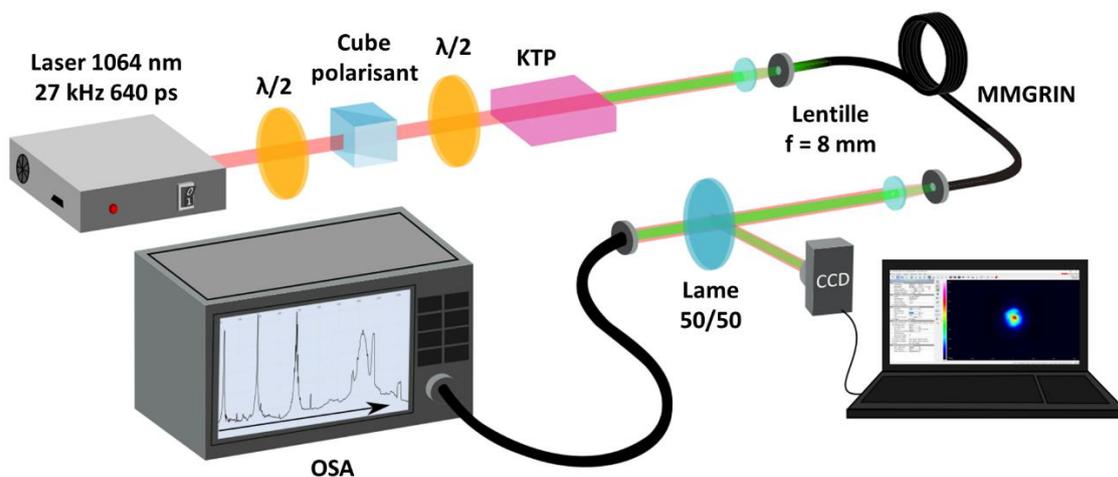


Figure 26 : Montage expérimental de poling optique dans une fibre MMGRIN avec son banc de caractérisation, incluant les éléments nécessaires à la phase d'activation du processus.

#### La source laser

La source laser est composée d'une diode laser avec un cristal de Nd: YAG (« neodymium-doped yttrium aluminium garnet » en anglais). La longueur d'onde de ce laser est de 1064 nm. Sa durée d'impulsion est de 640 ps et il possède une cadence de répétition de 27 kHz. Ce laser émet un mode longitudinal unique ce qui augmente fortement sa cohérence temporelle. Cette source est amplifiée avec un module permettant d'augmenter la puissance moyenne de la FF jusqu'à 2 W ce qui fait une puissance

crête importante (~ 115 kW). La Figure 27 présente la loi d'évolution de la puissance moyenne de la FF en sortie de laser en fonction de l'intensité produite par le module. Cependant, les fibres utilisées ne supportent pas une puissance crête aussi élevée. Dans ces conditions, la puissance moyenne maximum que nous pouvons utiliser est de 1W (58 kW de puissance crête). Le faisceau en sortie du laser est légèrement divergent. Pour compenser cette divergence et ainsi rendre le faisceau collimaté, une lentille est placée à une distance égale à sa distance focale (200 mm) de la sortie du laser. Le laser étant situé en hauteur, un périscope muni de deux miroirs d'argent permet de mettre à niveau le faisceau laser. La nouvelle hauteur du laser est à 7,5 cm de la table optique permettant d'être cohérent avec la hauteur des platines micrométriques aidant à l'injection.

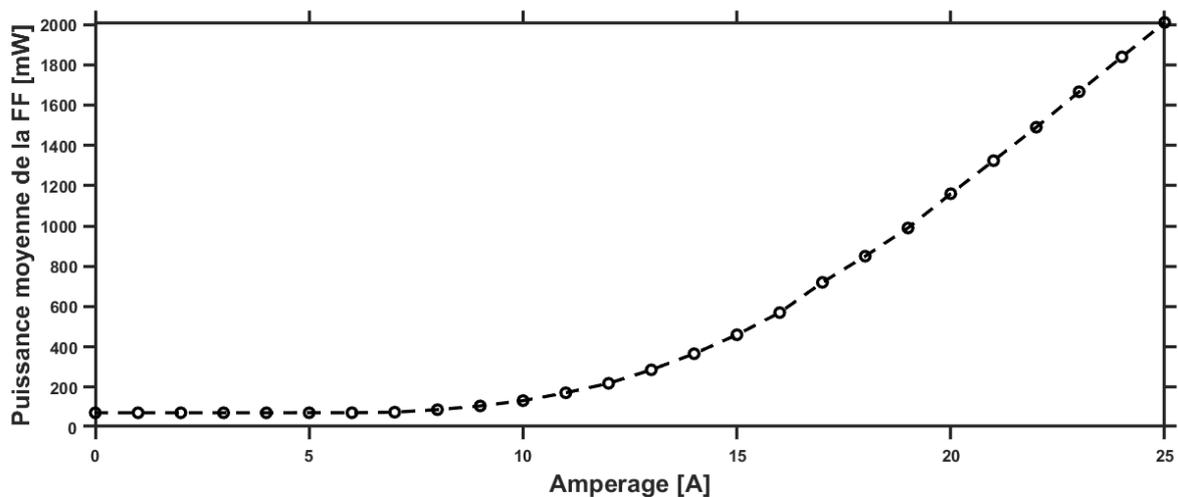


Figure 27 : Variation de la puissance moyenne de la FF en fonction de l'ampérage induit sur le laser.

### Les fibres et le poling

Durant mes expérimentations, nous avons utilisé trois fibres dopées Germanium avec un profil d'indice parabolique. Deux fibres ont un cœur de 50  $\mu\text{m}$  de diamètre avec une gaine de 125  $\mu\text{m}$  de diamètre. Les données du constructeur indiquent des profils d'indice paraboliques avec un  $\Delta n$  de 0,015, l'une étant commercialisée par l'entreprise Thorlabs et la seconde, datant de 1986, par l'entreprise Alcatel. La troisième, commercialisée également par l'entreprise Thorlabs, a un diamètre de cœur de 62,5  $\mu\text{m}$  avec une gaine de 125  $\mu\text{m}$  de diamètre et dispose d'un gradient d'indice avec un  $\Delta n$  de 0,030. Afin de pouvoir comparer ces fibres entre elles lors de mes sessions de poling, se placer dans les mêmes conditions d'injection présente une grande importance. En effet, l'injection est optimisée lorsque le faisceau FF se propage en régime de nettoyage spatial avec une majorité d'énergie sur le mode fondamental. Ce contrôle est réalisé en mesurant le champ proche de la FF sur une caméra CCD et en déterminant la puissance couplée dans la fibre. Ces images de champ proche sont normalisées entre les valeurs 0 et 1 selon une échelle linéaire lors de la prise de mesures selon l'intensité du faisceau laser. L'injection de la FF dans une fibre de 2 m de long est réalisée avec une lentille de 8 mm de focale pour les MMGRIN.

Pour obtenir l'établissement du processus de poling optique, l'initiation d'une rupture de centrosymétrie est nécessaire à l'intérieur de ces fibres. Cette étape est la première phase du poling optique, telle que rappelée au chapitre précédent, et est nommée « phase d'activation ». Pour cela, nous utilisons un cristal non linéaire de KTP de type 2. Un cristal de type 2 est un cristal dont la seconde harmonique générée par celui-ci aura une polarisation perpendiculaire à l'onde fondamentale. A l'accord de phase on obtient un rendement de conversion de 10% soit 100 mW de puissance moyenne à 532 nm (1W au FF) en sortie de KTP. Le KTP est placé dans une monture gérant trois degrés de liberté : les rotations sur les axes OX OY OZ. Cette monture ainsi que le module impliquant le cube polariseur et les deux  $\lambda/2$  vont permettre de rechercher l'accord de phase entre le FF et le cristal. Lorsque l'accord de phase est optimisé et que la SH a atteint son maximum en sortie de KTP, une dernière étape d'optimisation de l'injection de la FF dans la fibre doit être réalisée. Cette dernière est essentielle et ne doit pas être perturbée par l'ajout du KTP dans le chemin optique malgré la double réfraction (Walk-off spatial) introduit par le KTP. Cette précaution permet de conserver le plus fidèlement possible les conditions de propagation identique de la FF avec ou sans phase d'activation. Lorsque l'accord de phase et le couplage de la FF sont tous les deux optimisés, la SH du cristal et la FF du laser vont se propager dans la fibre et induire une rupture localisée de la centrosymétrie permettant l'inscription du  $\chi^{(2)}$ . Cette étape dure une dizaine de minutes. Une fois cette étape terminée, le KTP est retiré. Le faisceau laser FF seul est conservé pour l'établissement du phénomène de poling. Le maintien de la propagation de la FF, cumulée dans le temps, va conduire à l'augmentation de la conversion vers la SH jusqu'à atteindre une saturation au bout de 2 à 3 heures. L'utilisation de la même injection avec et sans le KTP prend ici tout son sens. Pour optimiser le processus de poling, la propagation de la FF doit être la plus fidèle à celle utilisée lors de la phase d'activation. Elle est alors optimisée pour poursuivre l'inscription du  $\chi^{(2)}$ . Lors de cette phase, plusieurs éléments sont caractérisés et enregistrés toutes les 15 minutes :

- Le spectre en sortie de fibre
- La puissance moyenne de la FF et de la SH
- Le mode de propagation de la FF et de la SH, tous deux caractérisés en champ proche

Lors d'autres expérimentations dont je vais parler dans les parties suivantes, la durée d'impulsion sera également caractérisée.

### **Les effets non linéaires supplémentaires caractérisés**

Lors des sessions de poling optique l'apparition de nombreux autres effets non linéaires sont visibles à la sortie de la fibre. il s'agit d'effets non linéaires d'ordre 3 tels que :

- La cascade de pics Raman Stokes et anti Stokes
- Les GPI
- Les mélanges à quatre ondes
- L'auto-nettoyage de type Kerr.

### **Les instruments de caractérisation**

De nombreuses caractérisations optiques sont nécessaires pour étudier le phénomène de poling dans des fibres multimodales. il s'agit par exemple de caractériser :

- La puissance moyenne, mesurée grâce à un puissance-mètre S405C vendu par Thorlabs
- Le spectre, enregistré à l'aide d'un spectromètre ANDO (AQ-6315A OPTICAL SPECTRUM ANALYZER) dont la gamme spectrale est de 340 à 1700 nm avec une résolution de  $\pm 0.05$  nm
- Le mode de propagation caractérisé en champ proche grâce à une caméra ayant une couverture spectrale de 350 à 1100 nm contenant un capteur de 1360x1024 pixels soit 8,77x6,6 mm dont un pixel carré a un côté de 6,45  $\mu\text{m}$
- La durée d'impulsion, mesurée à l'aide d'une photodiode 40 GHz placée sur un oscilloscope (Tektronix DPO770025X ATI Performance Oscilloscope)

#### **II.1.2. Caractéristiques de la puissance moyenne de la FF et SH**

Pour chacune des fibres, la puissance moyenne de la FF puis de la SH a été mesurée en sortie de fibre. La Figure 28 A représente l'évolution dans le temps de la puissance moyenne de SH mesurée à la sortie des différentes MMGRIN jusqu'à 210 min. Ces résultats représentent les meilleurs scores de puissance moyenne de la SH respectifs des trois fibres obtenues lors de nombreuses séances de poling. Au-delà de 210 minutes, la puissance moyenne reste stable. Comme l'ont montré Osterberg et Margulis, on observe ici que le poling optique est un phénomène mettant un certain temps à atteindre le régime permanent et son maximum de puissance de conversion [Osterberg 1986]. De manière flagrante, dans la situation présente, une grande disparité de conversion entre les trois fibres est apparue. La fibre Alcatel 50/125 délivre une puissance moyenne maximal de SH de 10 mW soit 1% de conversion. La fibre Thorlabs 62,5/125 délivre 3,4 mW soit 0,34 % de conversion et la fibre Thorlabs 50/125 ne présente qu'une légère lumière verte représentant seulement 0,1 mW. On ne peut d'ailleurs pas vraiment considérer que la valeur de 0,01 % de conversion corresponde à l'établissement du phénomène de poling pour cette fibre.

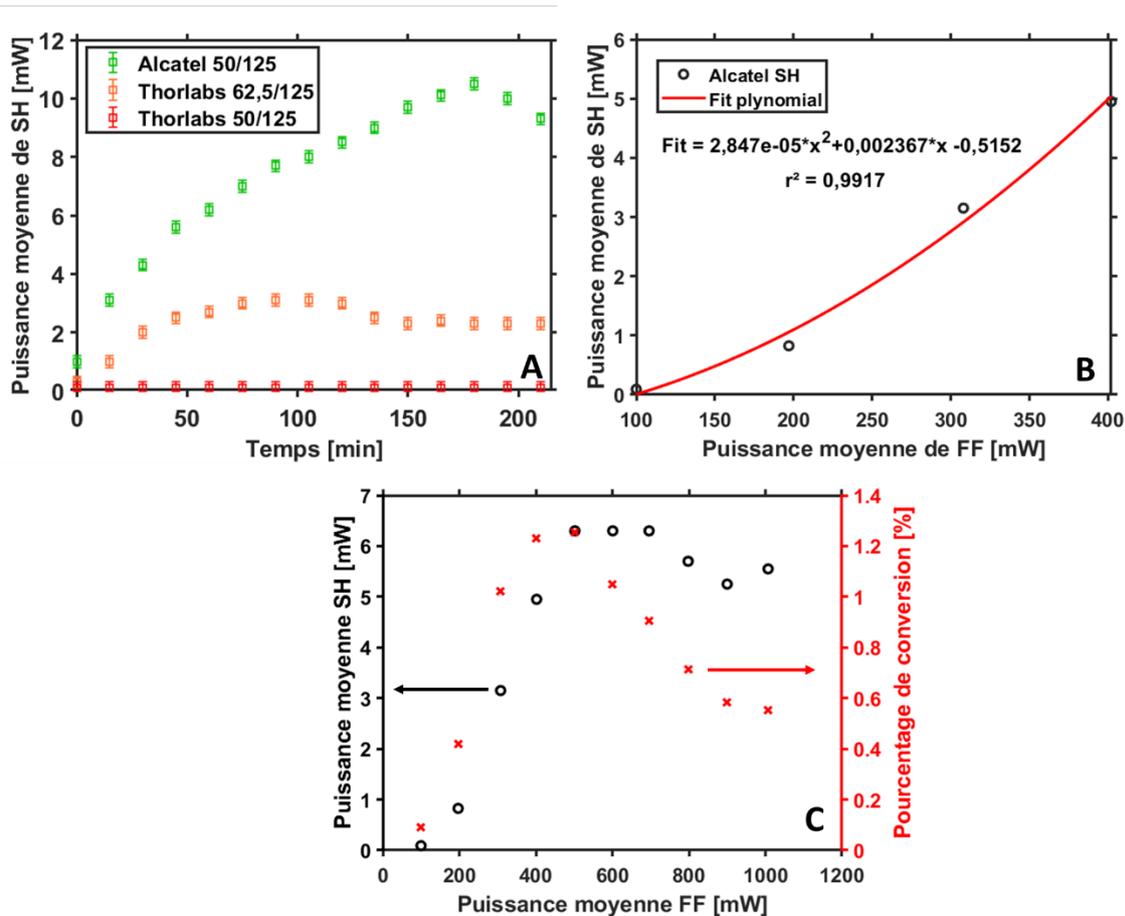


Figure 28 : A. Comparaison de l'évolution dans le temps de la puissance moyenne de la SH dans les MMGRIN Alcatel 50/125 (en vert), Thorlabs 62,5/125 (en orange) et Thorlabs 50/125 (en rouge) avec une incertitude de 0,1 mW, B. Représentation de l'augmentation quadratique de la SH lorsque la puissance moyenne de la FF augmente C. Variation de la puissance moyenne de la SH en fonction de la puissance moyenne de la FF (tous les 100 mW).

A la fin de la séance de poling, lorsque la puissance moyenne a atteint son maximum, nous déterminons l'impact de la puissance moyenne de la FF sur la SH. La Figure 28B montre une augmentation quadratique de la SH représentée par un fit polynomial d'ordre 2 dans un régime à faible puissance.

La Figure 28C représente l'impact de l'augmentation de la puissance infrarouge de 0 à 1 W sur la puissance moyenne de SH. Nous remarquons qu'après une évolution quadratique, la puissance de SH atteint un régime permanent. A haute puissance de FF, une diminution significative de la SH est visible. La courbe rouge de la Figure 28C est le calcul du pourcentage de conversion de la SH par rapport à la FF. Le pourcentage de conversion est au maximum lorsque la puissance moyenne de la FF est de 500 mW. Après avoir atteint ce pic de conversion, une chute du rendement de SH est visible. Cette chute est liée à la répartition de l'énergie sur d'autres composantes fréquentielles qui seront discutées dans la suite de ce manuscrit, à la partie 4 du présent chapitre.

## II.2. Caractérisation des spécifications des fibres MMGRIN

Dans la partie précédente, nous avons observé que chacune des fibres mises sous test présente des rendements de conversion de poling optique drastiquement différents. Parmi ces trois fibres, deux possèdent les mêmes spécifications annoncées par leurs constructeurs respectifs : 50  $\mu\text{m}$  de diamètre de cœur avec un profil parabolique possédant un  $\Delta n$  de 0,015. Dans cette partie, nous avons donc cherché à comprendre pourquoi l'écart d'efficacité de poling optique observé dans ces fibres MMGRIN est si différent.

Pour cela, le premier travail a été de caractériser les spécifications de ces trois fibres afin de s'assurer qu'elles sont effectivement identiques comme le laissent penser les données du constructeur. D'abord, le diamètre cœur/gaine ainsi que par le profil parabolique de l'indice de réfraction sont mesurés avec une résolution spatiale de 0,5  $\mu\text{m}$  et une sensibilité d'indice  $\Delta n$  de  $1.10^{-4}$  par l'IFA-100, un « Interferometric Fiber Analyser » (IFA). Cette technologie permet de caractériser la variation d'indice entre le cœur et la gaine. La composition chimique du cœur est analysée par microscope électronique à balayage (MEB) grâce à la microanalyse par Energie Dispersive de rayons X (EDX). Dans la situation présente, cette mesure donne une indication sur la répartition spatiale du dopant, un paramètre important dans le cas de la fibre à gradient d'indice.

### II.2.1. Mesure de l'indice de réfraction par IFA

Dans un premier temps, nous effectuons une mesure à l'IFA sur les trois fibres étudiées. En plus de la mesure de la variation d'indice entre le cœur et la gaine, cette mesure nous permet d'avoir une première idée sur le processus de fabrication des préformes utilisées pour l'étirage des fibres (à savoir MCVD, OVD, voir Chapitre 1). Dans notre cas, les données du constructeur des fibres Alcatel et d'une des fibres Thorlabs utilisées sont identiques. Elles possèdent un diamètre de cœur de 50  $\mu\text{m}$  et un diamètre de gaine de 125  $\mu\text{m}$ . Leur profil parabolique présente une variation d'indice  $\Delta n$  de 0,015 et une ouverture numérique de 0,2. Pour la fibre Thorlabs 62,5/125 les données constructeur indiquent un profil parabolique ayant un  $\Delta n = 0,030$  pour une ouverture numérique de 0,2. Ces différences avec les deux fibres précédentes ont un impact direct sur la propagation linéaire de la FF et sur certains effets non linéaires comme la position de l'apparition des GPI dans le spectre avec 744 nm pour la fibre Thorlabs 62,5/125 et 728 nm pour les fibres 50/125. Les Figures 29A à 29C représentant les profils d'indices mesurés à l'IFA valident les données des constructeurs.

Les profils d'indice mesurés de ces trois fibres nous donnent des indications complémentaires. Ils permettent en particulier d'identifier la méthode de fabrication des préformes. La partie de la mesure permettant de trouver la technique utilisée lors de la création de la préforme se situe dans la partie centrale du cœur. L'encart de la Figure 29A (fibre Alcatel) montre en effet de légères ondulations de

l'indice, appelées « ripples » en anglais. Ces ondulations de l'indice sont caractéristiques de la superposition de couches formées en MCVD [Carnevale and Paek 1983]. La Figure 29D montre une seconde différence visible grâce à une cartographie 2D effectuée 5 fois dans la longueur de la fibre sur l'indice de la section de la fibre. Cette Figure 29D montre une variation en forme d'anneau de l'indice maximale du cœur, d'un diamètre proche de 4  $\mu\text{m}$ . Cet anneau indique une faible diminution de l'indice de réfraction de l'ordre de  $2 \cdot 10^{-4}$  au centre du cœur de la fibre Alcatel. Cet affaissement est un second défaut connu de la méthode MCVD. Nous ne visualisons pas ces deux empreintes sur les Figures 29B et 29C, représentant respectivement les deux fibres Thorlabs 50/125 et 62,5/125. Les préformes correspondantes pourraient donc avoir été créées par OVD. Une caractéristique visible sur la Figure 29B est un affaissement de l'indice de réfraction au niveau de la transition cœur/gaine. Ce phénomène est dû à l'utilisation de deux tubes en silice pure différents, un tube pour la préforme entourant le cœur et un second utilisé lors du tirage de la fibre pour obtenir le diamètre actuel de la gaine de 125  $\mu\text{m}$ , correspondant au procédé OVD. Ces hypothèses sur la méthode de fabrication des préformes, argumentées par les mesures d'indice de la Figure 29, ont été appuyées par des échanges avec la société Thorlabs, confirmant que les deux fibres Thorlabs seraient issues de préformes élaborées par OVD.

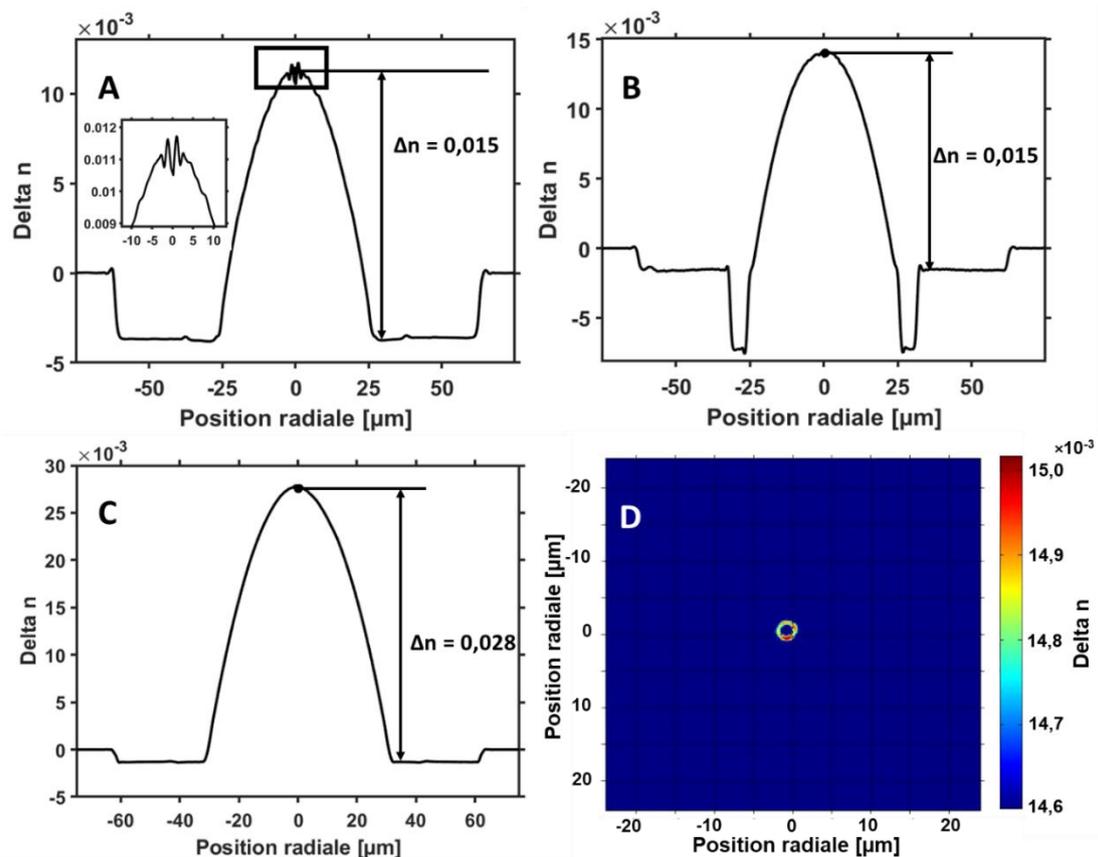


Figure 29 : A. Profil d'indice de la fibre Alcatel 50/125 dont la préforme a été créée par MCVD qui est représenté par la visualisation légères ondulations de l'indice caractéristiques du process MCVD. B. Profil d'indice de la fibre Thorlabs 50/125 dont la préforme a été réalisée par OVD avec deux tubes de Silice. C. Profil d'indice de la fibre Thorlabs 62,5/125 dont la préforme a été réalisée par OVD. D. Mesure 2D de la variation d'indice maximum de l'indice de la fibre l'Alcatel 50/125, l'anneau observé délimite une diminution de l'indice de réfraction au centre de la fibre dans un diamètre de 4  $\mu\text{m}$ .

## II.2.2. Accès à la microstructure et à la composition chimique des diverses fibres

Après avoir caractérisé la variation d'indice, l'étape suivante est la visualisation de la répartition du dopant, ici le Germanium, au sein des fibres. Pour réaliser ces mesures, nous utilisons le MEB permettant d'imager avec précision la section du cœur des fibres et d'effectuer une analyse par EDX ayant une sensibilité de détection des éléments chimiques de 0,2 % massique (pour tous les éléments au-delà du sodium). La Figure 30 montre pour les fibres Alcatel et Thorlabs 50/125 le même profil chimique. L'analyse chimique de ces fibres montre donc qu'elles sont composées principalement des éléments Silicium, Oxygène et Germanium. Le profil chimique dans la gaine est quant à lui uniforme et est composé uniquement de Silicium et d'Oxygène. Dans le cœur, le profil chimique est d'allure parabolique atteignant au centre, une concentration de 3,5% pour le Germanium et 21,5% pour le Silicium en pourcentage atomique (Figures 30A et 30 B). Cependant, un agrandissement de la zone centrale du cœur de la fibre Alcatel 50/125 montre clairement la présence de deux surintensités séparées de 4,2  $\mu\text{m}$  sur le profil chimique de la concentration en Germanium. Cette modification est due à présence d'anneaux lors de la création de la préforme. Pour la fibre à Thorlabs 62,5/125, nous avons également un profil parabolique avec un pourcentage maximum de Germanium de 10 % et 25 % de Silicium (Figure 30C). Comme pour les mesures d'indice de réfraction réalisées avec l'IFA, le MEB nous permet aussi, grâce à l'imagerie en électrons rétrodiffusés, de retrouver la méthode de création de la préforme. Ces images obtenues par collecte des électrons rétrodiffusés représentent en fait le contraste local de densité électronique : plus la zone étudiée apparaît claire dans l'image, plus les éléments chimiques sondés dans la zone concernée seront électroniquement lourds. En d'autres termes, les anneaux plus clairs traduisent en fait un enrichissement local en élément Germanium (et donc un appauvrissement en élément Silicium), alors que les anneaux plus sombres correspondent à des zones plus pauvres en Germanium (et donc plus riches en Silicium). La Figure 30A' prouve l'utilisation de la MCVD sur la préforme de la fibre 50/125 Alcatel grâce à la visualisation de ces anneaux dans toute la section du cœur. Ce défaut représente le dépôt des différentes couches minces de Silice dopée Germanium à concentration variable, phénomène à l'origine du gradient d'indice de la fibre. Cette caractéristique a été décrite précédemment à l'IFA. Ces anneaux sont également présents sur les deux autres fibres, mais les contrastes sont de faible amplitude et leur extension est aussi plus réduite. Ils sont caractéristiques de la création de la préforme par OVD lors de l'étape du rétreint effectué après retrait du mandrin. Les anneaux de la fibre Thorlabs 50/125 sont si faible qu'un zoom et une modification du contraste de l'image doit être effectué pour les visualiser. Ces différences pourraient être créés lors de l'étape de la réalisation de la préforme ou du fibrage des fibres Thorlabs. Afin d'obtenir les diamètres demandés, nous devons adapter la température du four, la vitesse et la tension lors du fibrage comme rappelé dans le chapitre 1. La fibre Thorlabs 50/125 a probablement été créée avec une vitesse de relaxation plus lente permettant à la silice de s'homogénéiser et d'effacer les contraintes liées à la

création de la préforme. La présence prononcée d'anneaux au MEB donnerait des pistes sur la stabilité du matériau et de son histoire thermique.

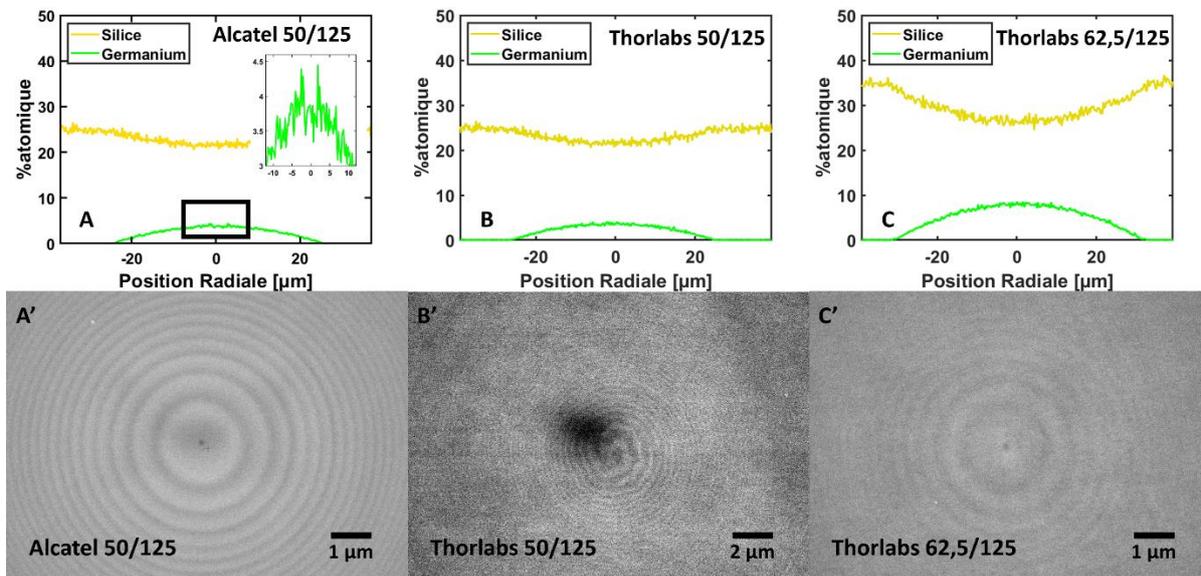


Figure 30 : (Haut) Analyses de la composition chimique (données EDX). L'insert en A permet de bien mettre en évidence les deux surintensités sur le signal du Ge, qui sont à rapprocher de l'anneau central mis en évidence lors de la mesure de l'indice de réfraction par IFA. (Bas) Images MEB (obtention à partir des électrons rétrodiffusés, tension de travail – 15 kV) du cœur des fibres optiques MMGRIN.

Les fibres MMGRIN avec un diamètre de cœur identique apparaissent différemment lors de l'imagerie MEB. Cependant comme le montre la Figure 31, les données de pourcentage atomiques en Silice et Germanium enregistrées par EDX dans le diamètre des deux fibres se superposent, les légères différences ne sont pas significatives et correspondent au bruit mesuré.

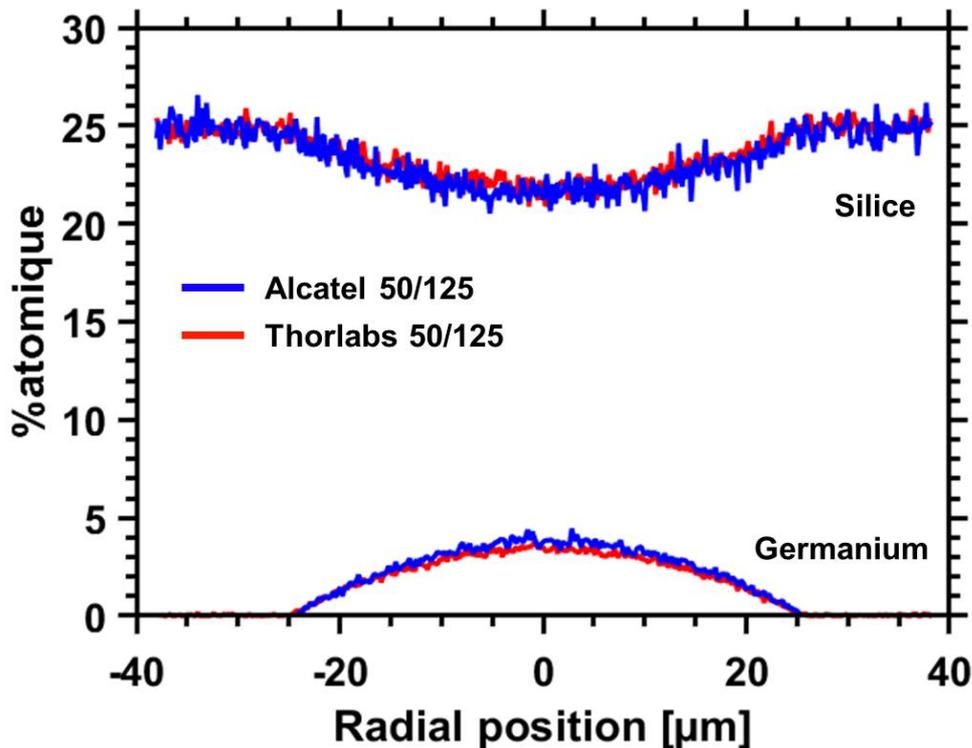


Figure 31 : Compositions atomiques (%) en Silice et Germanium dans le diamètre des deux fibres enregistrées par EDX. La superposition de la mesure EDX des deux fibres MMGRIN de 50  $\mu\text{m}$  de diamètre de cœur montre qu'il n'y a pas de différence de dopage entre les deux fibres.

Afin de compléter l'analyse des fibres, l'ensemble des éléments chimiques présents dans les fibres MMGRIN est analysé par des mesures EDX. La Figure 32 représente le spectre caractéristique des éléments chimiques présents dans le cœur des fibres MMGRIN. Comme attendu, trois éléments principaux composant les fibres apparaissent : la Silice, l'Oxygène et le Germanium. Mais cette mesure révèle également la présence d'autres éléments qui constituent finalement des impuretés. On note que la présence d'Argent à 3,5 keV, qui est due à la préparation de l'échantillon. En effet, les fibres sont positionnées à la verticale sur un porte-échantillon et fixées avec le l'argent. Le Carbone est également lié à la méthode de mesure. Pour préparer un échantillon au MEB, il faut déposer une fine couche de Carbone, étape dite de métallisation permettant d'optimiser la collection du signal. Ainsi, dans la mesure présentée à la Figure 32, nous retrouvons des traces de Chlore à 2,6 keV et de Phosphore à 2,1 keV. Ces deux éléments sont présents dans les gaz injectés lors de la fabrication de la préforme du cœur (process présenté au Chapitre 1). Le pic Sodium à 1,1 keV est visible mais sa présence est inexplicée. La présence de Sodium et de Chlore peut faire penser au sel ionique issu de la transpiration donc lié à une mauvaise préparation, cependant, des gants en latex sont utilisés et les fibres sont nettoyées à l'éthanol avant d'effectuer la clive. Autour de 2,26 keV nous visualisons un pic dont nous n'arrivons pas à déterminer à quel élément chimique il correspond. Ce pic se retrouve sur les trois fibres.

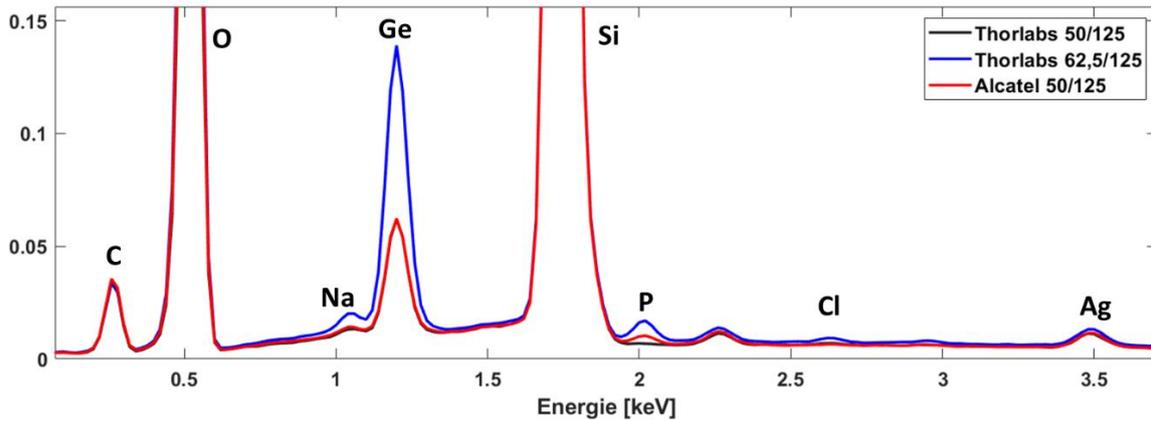


Figure 32 : Analyse spectrale par EDX. Spectres zoomés sur les impuretés présentes dans le cœur des différentes fibres optiques étudiées.

En revanche, l'élément Phosphore est détectable au sein des fibres Alcatel et Thorlabs 62,5/125 mais pas dans la fibre Thorlabs 50/125. La Figure 33 présente une mesure EDX complémentaire dont le but est d'évaluer la répartition du phosphore sur tout le diamètre de la fibre. La Figure 33 montre que le phosphore est réparti de façon homogène en saut d'indice dans le cœur et se trouve à hauteur de 0,5% et de 0,9% en concentration atomique respectivement pour la Thorlabs 62,5/125 et la Alcatel. Comme décrit dans le chapitre précédent, ces impuretés peuvent avoir un rôle dans l'apparition de certains effets non linéaires [Poumellec 1994]. Dans notre cas, la fibre contenant le plus de phosphore n'est pas celle qui génère le plus de SH. L'impureté n'est donc pas l'élément principal qui impacte le poling optique. Cependant, il est important de considérer sa présence car elle peut jouer un rôle de piégeage de charge et ainsi avoir un impact sur la génération de seconde harmonique. En effet, le manque de phosphore sur la fibre Thorlabs 50/125 pourrait être un début de piste sur l'efficacité d'activation du poling optique dans une fibre MMGRIN.

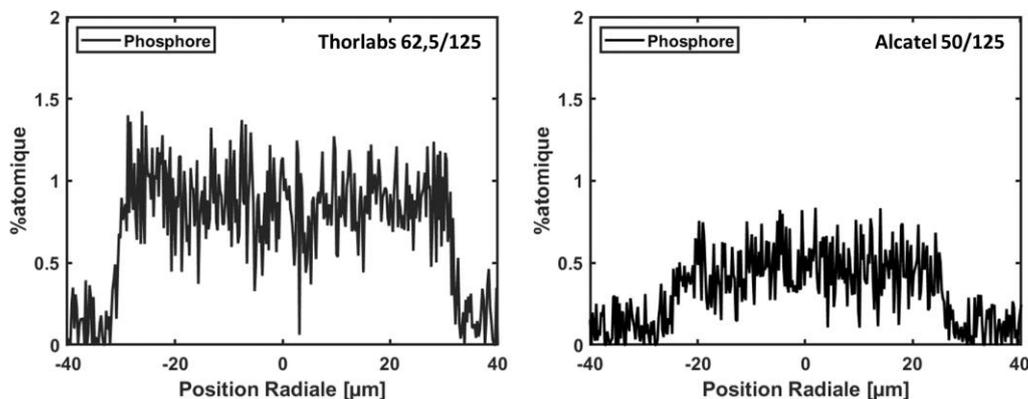


Figure 33 : Mesure EDX du pourcentage atomique du phosphore dans le cœur des fibres Thorlabs 62,5/125 et Alcatel 50/125.

Grâce aux caractérisations effectuées à l'IFA et au MEB, les spécifications des fibres utilisées sont dorénavant connues et les indications complémentaires sont obtenues sur le processus employé pour la création des fibres en présence. Il est donc possible de conclure ici que la préforme utilisée pour la fabrication de la fibre Alcatel est créée par un processus de MCVD et que les fibres Thorlabs sont réalisées à partir de préformes élaborées par le processus OVD. A l'heure actuelle, on ne peut pas statuer catégoriquement sur le rôle du processus de fabrication de la préforme de la fibre optique sur son aptitude à être polée. Ce travail exploratoire sera mené à l'IRCER avec XLIM, à la suite de ma thèse.

### **II.2.3. Discussion et conclusion sur le besoin d'un autre type de caractérisation**

Les analyses présentées à la partie précédente nous ont permis de confirmer les spécifications des fibres par rapport aux données constructeurs. Cette série d'analyses a également mis en évidence des processus de fabrication de préformes différents. Nous pensons que cette dernière différence n'explique pas nécessairement les différences importantes d'efficacité de poling caractérisée par l'inscription plus ou moins efficace d'une non-linéarité d'ordre 2 dans ces fibres. En effet, les deux fibres Thorlabs (procédé OVD) ont des différences de rendements d'efficacité de conversion très significatives.

Nous pouvons nous demander quel est le rôle du dopage en Germanium et sa concentration sur la conversion de seconde harmonique. La fibre Thorlabs 62,5/125 a une concentration en Germanium deux fois plus grande que dans la fibre Alcatel, mais donne une valeur d'efficacité de conversion de 0,35% alors que celui de l'Alcatel est de 1%. Ces résultats montrent que le poling optique est au moins partiellement décorrélié du taux de Germanium présent dans les fibres. Et outre la présence ou l'absence de phosphore dans les deux fibres Thorlabs 62,5/125 et Alcatel 50/125 (Figure 33), nous pensons que l'efficacité de la capacité à induire une non-linéarité d'ordre 2 est liée à d'autres paramètres qui différencieraient ces trois fibres.

La corrélation entre la capacité de la fibre à produire de SH et la structure locale du matériau est la prochaine piste qui est explorée pour expliquer la différence d'efficacité de poling. Ce point est l'objet principal du chapitre III. Avant de passer à l'étude de la structure locale du matériau, j'ai souhaité caractériser les effets non linéaires qui apparaissent dans une fibre optique en contexte de poling et sur l'impact de ce processus sur l'apparition de nouvelles composantes fréquentielles. C'est l'objet de la partie suivante.

## II.3. Caractérisation optique du poling

### II.3.1. Modes transverses de propagation : auto-nettoyage spatial des faisceaux FF et SH dans le temps

#### Fibre MMGRIN Alcatel de 50 $\mu\text{m}$ de diamètre de cœur dopée Germanium

Lors des mesures, les intensités modales des faisceaux de la FF et de la SH ont été caractérisées en sortie de la fibre MMGRIN Alcatel de 50  $\mu\text{m}$  de diamètre, ainsi que son évolution spatiale au cours du temps. Ces images sont normalisées entre les valeurs 0 et 1 selon une échelle linéaire lors de la prise de chaque mesure selon l'intensité du faisceau laser. La Figure 34 représente l'évolution spatiale du mode de propagation transversal de la SH et de la FF en champ proche jusqu'à ce que la puissance moyenne de la SH atteigne sa valeur maximale de 10,5 mW au bout de 165 minutes de poling. Les profils des modes transverses de la FF et de la SH sont un mélange de multiples modes transverses avec une forte représentation du mode LP01 pour la FF et du mode LP11 pour la SH. La Figure 34 met en évidence un auto-nettoyage du faisceau au cours du temps, à la fois au niveau de la FF et de la SH. La structure modale de la SH, dominée par le mode transverse LP11 évolue au cours du temps jusqu'à obtenir une forme majoritairement représentée par le LP01 au bout de 165 min. Cette évolution est imposée par la propagation non linéaire du faisceau fondamental mais aussi par l'effet de l'intensité du faisceau vert. Le nettoyage modal décrit dans [Krupa 2017] est alors mis en évidence. En effet, le faisceau de la FF, qui a une structure multimodale avec une dominance des modes pairs est le résultat de l'effet de self-cleaning instantané avant poling optique. Ainsi, le faisceau de l'onde infrarouge fondamentale à un maximum de faible diamètre au centre et évolue vers un faisceau moins chahuté avec une prédominance du mode fondamental à cause du changement d'indice local imposé par le poling optique. Ce phénomène apparaît comme étant un auto-nettoyage « lent » par modification locale de l'indice linéaire de la fibre, hypothèse que nous discuterons par la suite.

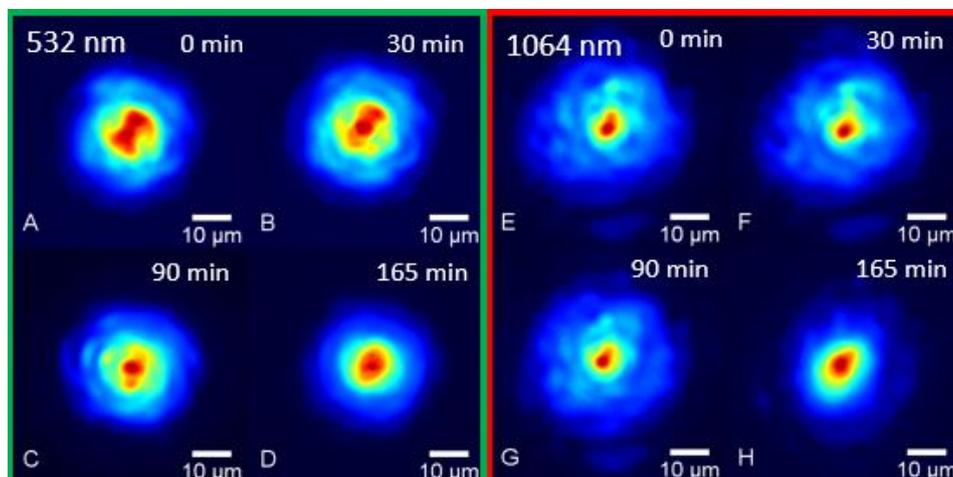


Figure 34 : Mise en évidence de l'auto-nettoyage dans le temps du faisceau FF et SH en champ proche.

## **Deux fibres monomodes dans le domaine infrarouge**

Le poling a par ailleurs été testé dans deux fibres monomodes de 2 m de long : une fibre de 4  $\mu\text{m}$  de cœur dopée Germanium et une fibre de 8  $\mu\text{m}$  de diamètre de cœur, dopée Ytterbium-Aluminium (0,1-0,2% molaire, respectivement). Les spécifications de ces fibres sont drastiquement différentes des précédentes fibres multimodales. Il nous apparaît intéressant de suivre l'évolution des propriétés du poling dans le cas de ces fibres quasi-monomodes à 1064 nm par rapport aux MMGRIN, afin de visualiser le changement de mode de façon plus claire. En effet, grâce à leurs faibles diamètres de cœur, le nombre de modes qui peuvent être guidés à 532 nm est beaucoup plus faible que dans les fibres MMGRIN.

Pour cette expérimentation, nous utilisons le même banc que celui utilisé pour les fibres MMGRIN et nous adaptons la lentille d'injection en utilisant une lentille de 4 mm de focale pour les deux fibres monomodes. La fibre de 4  $\mu\text{m}$  de cœur a été polée, ce qui permet d'atteindre une puissance de SH de 2 mW. La fibre Ytterbium Aluminium (8 $\mu\text{m}$ ) conduit à une puissance de SH identique de 2 mW mais son diamètre permet l'apparition théorique d'un plus grand nombre de modes générés en SH que la fibre monomode dopé Germanium de 4  $\mu\text{m}$  de cœur. Il est donc intéressant pour l'analyse dans le temps de l'auto-nettoyage par effet Kerr, sous l'action du poling optique, d'utiliser la fibre Ytterbium-Aluminium qui est une fibre quasi-monomode à 1064 nm.

Dans le but de visualiser le changement de modes transverses au SH lors d'une étape de poling optique, il est possible de partir d'un mode d'ordre élevé et de regarder, en fonction du temps d'exposition, son changement de forme. Pour cela, nous effectuons, sur la fibre de 8  $\mu\text{m}$  de diamètre de cœur, une injection sélective, du SH nous servant de souche d'excitation, sur le mode LP31 (Figure 35B) tandis que l'onde fondamentale infrarouge est principalement portée par le mode fondamental avec une légère dissymétrie introduite par le mode LP11 (Figure 35A). Cette excitation d'un mode d'ordre élevé au SH est réalisée après passage dans un cristal de KTP dans le but d'initier le poling optique de manière plus efficace. Après initiation du processus de poling, nous retirons le KTP et vérifions, en sortie de fibre, la conservation du mode LP31 au SH (Figure 35C). Pour un temps d'exposition de 60 minutes, il est possible de visualiser une évolution forte du profil du faisceau de sortie avec un maximum au centre (Figure 35C). Pour 120 minutes, on peut observer que la SH est uniquement portée par le Mode LP11. Cette expérience préliminaire montre clairement que l'effet de poling s'accompagne d'un nouvel effet d'auto-nettoyage spatial lent améliorant la brillance du faisceau de sortie du fait de la sélection d'un mode unique à la SH. Cette évolution peut être due au profil transverse de la susceptibilité non linéaire d'ordre deux imprimée dans la fibre mais aussi à une variation locale de l'indice linéaire du cœur de la fibre pendant le poling optique. Nous montrerons par la suite que ces deux hypothèses sont valides. Cette expérience permet d'évaluer les principales évolutions des ondes fondamentales et harmoniques que l'on rencontrera dans des fibres multimodales.

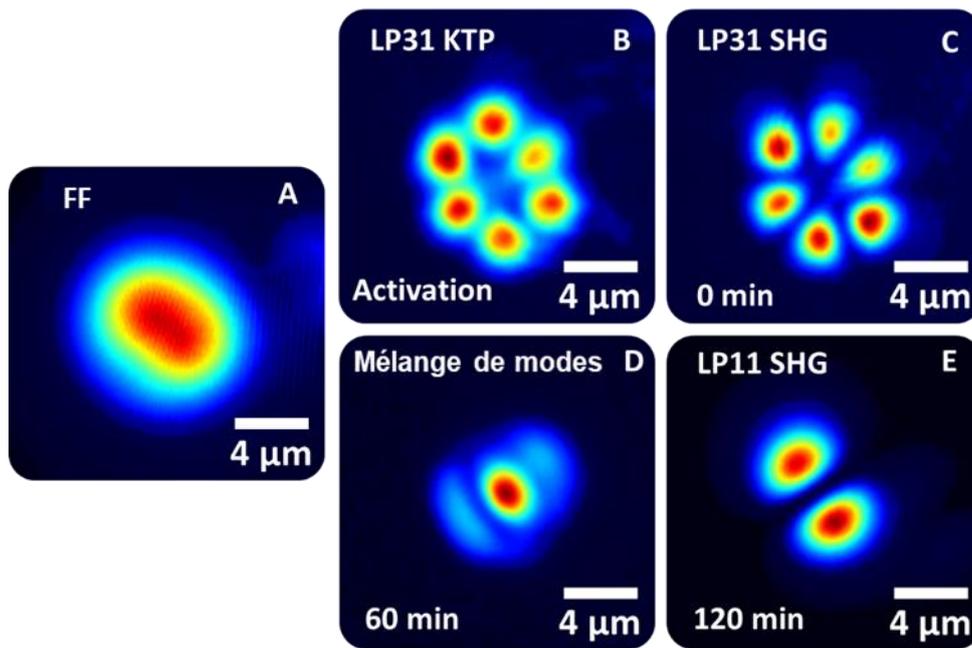


Figure 35 : Représentation des modes transverse dans une fibre dopée Ytterbium-Aluminium de 8 µm de diamètre de cœur en fonction du temps de poling optique. A : profil du mode transverse de l'onde fondamentale à 1064 nm en sortie de fibre ; B : Mode LP 31 au SH en fin de fibre après passage dans un cristal de KTP ; C : Mode LP 31 au SH après suppression du KTP et avant l'expérience de poling ( $t_{\text{poling}} = 0$  min). D : Evolution modale au SH à  $t_{\text{poling}} = 60$  min ; E : Mode LP 11 de la SH après poling pour  $t_{\text{poling}} = 120$  min.

### II.3.2. Caractérisation de l'inscription de la non-linéarité d'ordre 2

La distribution 3D de l'inscription du  $\chi^{(2)}$  par poling est réalisée par microscopie multiphotonique. Cette méthode de caractérisation est souvent utilisée en microscopie du vivant en vue d'obtenir des images d'échantillons biologiques contenant par exemple des structures non centrosymétriques, telles que le collagène ou la myosine [Lefort 2017]. Nous avons utilisé un microscope multiphotonique commercial Olympus (BX61WI) couplé à un système laser femtoseconde accordable à cristal de saphir dopé au titane (Ti:Sa) (Chameleon Ultra II, Coherent Inc). La longueur d'onde d'excitation a été fixée à 810 nm, et la détection a été effectuée par un tube photomultiplicateur (PMT) associé à un filtre de détection centré sur 405 nm, avec une largeur spectrale de 10 nm et un miroir dichroïque (650 nm). Nous avons utilisé deux objectifs de microscope : le premier était un objectif Nikon à grand champ de vue de 1176 µm (MRH00101, 10X, 0.3), tandis que le second était un objectif Olympus à un champ de vue de 508 µm (XLPLN25XWMP, 25×, NA 1.05, W) permettant une imagerie mieux résolue. La fibre optique est alors placée longitudinalement dans le plan optique du microscope. Des acquisitions séquentielles de piles d'images 2D ont été combinées à un balayage axial réalisé par l'objectif du microscope qui a été déplacé par pas de 1 µm. La distribution volumique de la non-linéarité  $\chi^{(2)}$  a été reconstruite et est présentée sur une image 3D. La Figure 36 illustre l'inscription de la non-linéarité  $\chi^{(2)}$  située dans le plan

optique au centre de la fibre sondée. Comme le montre la Figure 36, cette technique a permis d'identifier deux périodes dominantes dans la distribution de la susceptibilité  $\chi^{(2)}$  le long des fibres MMGRIN polées.

Sur les fibres présentant une inscription (Figure 36A et 36C), nous visualisons une grande période de taille différente. La fibre Alcatel 50/125 a une période de 545  $\mu\text{m}$ , tandis que la Thorlabs 62,5 a une période de 324  $\mu\text{m}$ . Cette différence est liée au gradient parabolique deux fois plus important pour la fibre Thorlabs 62,5/125 ; cette propriété est confirmée par l'équation présentée au chapitre 1 (partie 1.3.3.2.2). En d'autres termes, la période la plus longue est due à l'effet d'auto-imagerie bien connu dans les MMGRIN. La période la plus courte correspond au battement entre l'onde fondamentale et l'onde de la seconde harmonique dessinant ainsi un réseau d'indice fournissant un quasi accord de phase pour la génération de second harmonique. La fibre monomode de 4  $\mu\text{m}$  de cœur dopée Germanium étant à saut d'indice, cette grande période n'a pas lieu d'être ; elle n'est d'ailleurs pas visualisée. Seul le battement entre les ondes FF et SH est visible. Dans la fibre Thorlabs 50/125, l'image obtenue en microscopie multiphotonique (Figure 36B) révèle qu'aucune inscription de  $\chi^{(2)}$  n'a été réalisée lors de l'étape de poling, en accord complet avec la puissance minimale de 0,1 mW détectée avec le puissance-mètre (Cf. Figure 28). Cette particularité est très étrange et nous allons, par la suite, expliquer cette absence d'effet dans cette fibre qui est très similaire chimiquement aux autres fibres MMGRIN (Alcatel).

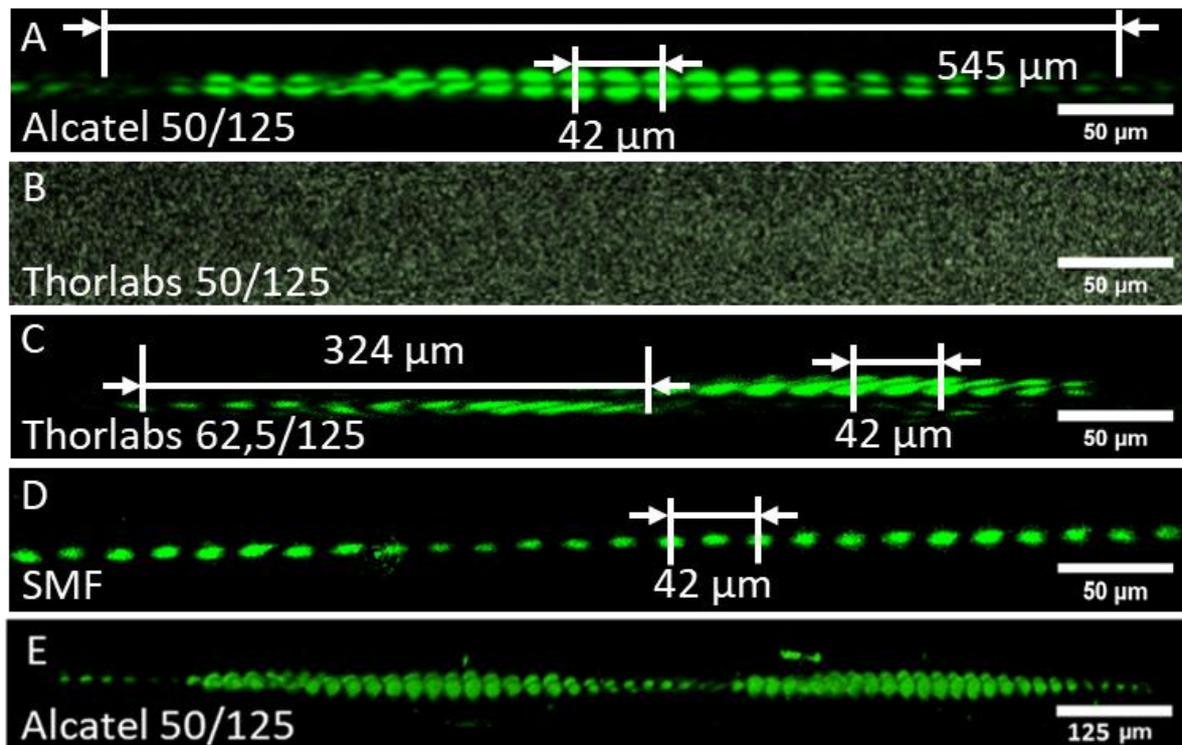


Figure 36 : Images acquises en microscopie bi-photonique : inscription de la susceptibilité non linéaire d'ordre 2 dans quatre fibres différentes. A : Fibre Alcatel 50/125  $\mu\text{m}$  ; B : Fibre Thorlabs 50/125  $\mu\text{m}$  (pas d'inscription). C : Fibre Thorlabs 62,5/125  $\mu\text{m}$  ; D : Fibre monomode dopée Germanium, E : Reconstruction 3D des zones  $\chi^{(2)}$  inscrites lors du poling optique.

Les deux périodes de l'inscription de la non-linéarité d'ordre 2 sont bien observées aux Figure 36A et 36C. Elles sont mesurées et comparées avec le résultat des équations théoriques présentées au chapitre précédent à la partie 1.3.3.2. La petite période de  $42\ \mu\text{m}$  de long est due au battement entre la FF et la SH. Cette période de battement est à peu près identique pour les trois fibres. Cette propriété était attendue car pour une fibre de même composition chimique, la période de poling dépend de l'indice de réfraction de la silice dopée et des deux longueurs d'onde considérées : celle de la FF et de sa SH.

La visualisation transversale de l'inscription de la non-linéarité d'ordre 2 par poling est aussi envisageable grâce au microscope multiphotonique en réalisant cette fois-ci une image sur la face d'entrée et non sur la longueur de la fibre. Dans ces conditions nous pouvons accéder à la répartition transverse de la non-linéarité d'ordre deux inscrite dans la fibre. La Figure 37 présente la différence entre une fibre Alcatel non polée (Figures 37A et 37B) et polée (Figures 37C et 37D). Le signal observé à la Figure 37A est homogène. On distingue nettement l'emplacement du cœur de la fibre dont le diamètre correspond bien à la valeur attendue. Ce signal est attribué à la fluorescence du Germanium et prend la forme d'un plateau. Pour la Figure 37C, le profil en intensité nous permet de mesurer la distance entre les deux lobes mis en évidence par exemple en Figure 37A. Ceux-ci sont espacés de  $10\ \mu\text{m}$  retrouvant bien l'écart visualisé sur l'imagerie longitudinale présent sur la Figure 36A et montrant qu'il ne s'agit pas des anneaux visibles au MEB ou à l'IFA. La détection étant réalisée à  $405\ \text{nm}$ , il s'agit de l'observation de la SH ; il s'agit donc bien de l'inscription de la non-linéarité d'ordre 2 visible sur la face d'entrée de la fibre. Ce profil de non-linéarité inscrite permet aussi de montrer que le recouvrement spatial avec les modes de la fibre est plus en faveur d'un mode impair de type LP<sub>11</sub>. Il est également possible de relier ces résultats aux travaux [Sauvain 1995, Jae H. Kyung 1996, Vince Dominic et al., JOSAB 11, 2016, 1994] publiés par Sauvain, Kyung et Dominic respectivement publiés en 1995, 1996 et 1994 qui montrent les zones de poling sur des verres. Ces zones modifiées possédaient également une symétrie due au déplacement des charges suivant un axe de polarisation.

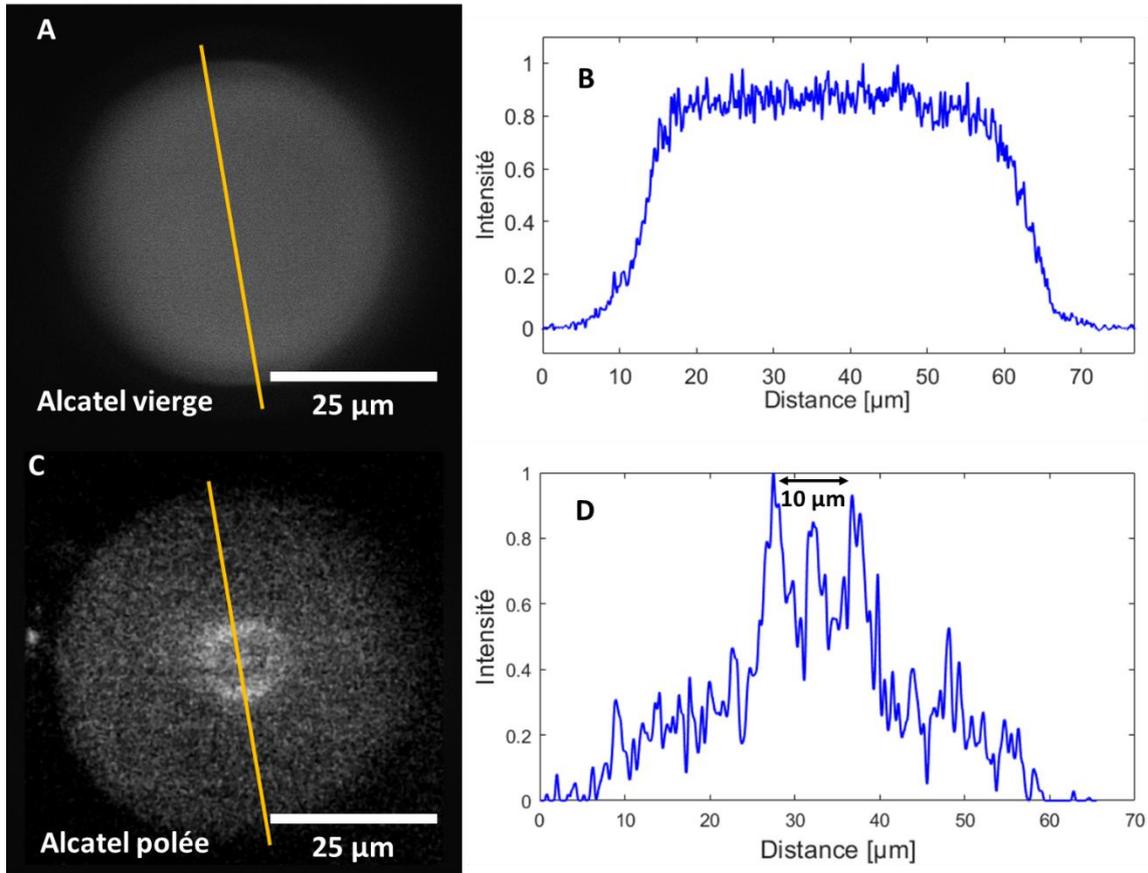


Figure 37 : A. Visualisation de la face d'entrée de la fibre Alcatel avant poling. B. Profil d'intensité dans le diamètre du cœur. C. Visualisation de la face d'entrée de la Fibre Alcatel après poling. D. Profil d'intensité transverse de l'inscription de la SH dans la fibre Alcatel polée.

Quelle que soit la fibre multimode utilisée, la visualisation de la non-linéarité, c'est-à-dire de l'inscription du  $\chi^{(2)}$ , a été réalisée à différentes positions le long de la fibre. Nous remarquons dans la Figure 38 que cette inscription n'est pas uniforme dans l'ensemble des 2 m de fibre. Celle-ci est visible uniquement dans le premier mètre de la fibre polée. Le signal s'atténue au bout d'une longueur de 90 cm jusqu'à ne plus être visible. Cette disparition est due à la déplétion importante de l'onde de pompe à cause de différents autres effets non linéaires dont le seuil d'existence a été atteint au cours de la propagation (Instabilité Paramétrique Géométrique [Krupa 2016], Raman stimulé [January 15, 2010 / Vol. 35, No. 2 / OPTICS LETTERS]). De manière différente, dans les premiers centimètres de propagation nous distinguons une inscription multimode « anarchique » (Figure 38A) qui traduit la propagation initiale multimode de l'onde de pompe infrarouge avant tout effet d'autonettoyage spatial Kerr. Pour une longueur de fibre plus grande (>20 cm), on observe clairement une modification du profil transverse de la non-linéarité d'ordre deux imprimée dans la fibre. Celle-ci est beaucoup mieux organisée avec une localisation centrale sur le mode fondamental de la fibre. Cette évolution est due au nettoyage spatial Kerr démontrés par Krupa et al en 2016 et est une preuve indéniable de ce processus apparenté à la condensation photonique (Figure 38B).

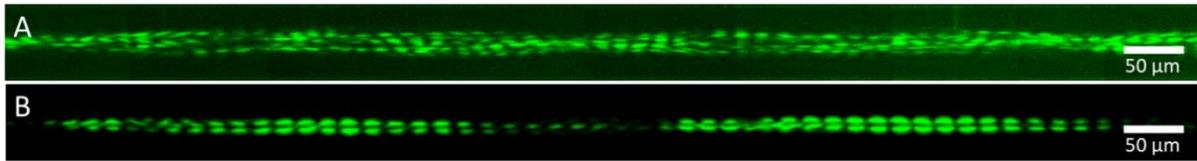


Figure 38 : A. Inscription  $\chi^{(2)}$  au début de la fibre Alcatel 50/125, B. Inscription  $\chi^{(2)}$  au bout de 20 cm de la fibre Alcatel 50/125

Cette inscription peut s'effacer rapidement à l'aide d'un laser ayant des propriétés différentes. Nous avons supprimé cette inscription à l'aide d'un laser 532 nm et 10 ps. Elle peut aussi s'effacer lentement de façon naturelle : toutefois, il est à souligner que dans ce cas, l'effacement n'est jamais total.

## II.4. Impact de l'inscription d'une non-linéarité d'ordre 2 sur l'apparition des non-linéarités d'ordre 3

Le rôle et l'impact du poling sur l'apparition des effets non linéaires du troisième ordre dans les fibres MMGRIN a été étudié lors des expérimentations. Il s'agit maintenant d'identifier puis de caractériser spectralement et temporellement les fréquences concernées et leur évolution dans le temps. Cette caractérisation nous permettra de déterminer les effets non linéaires pouvant entrer en conflit avec le poling optique limitant ainsi son efficacité.

### II.4.1. Caractérisation spectrale de l'apparition des effets non linéaires d'ordre 3 pendant le temps de poling optique

Lors des mesures de poling, l'apparition de nouvelles composantes spectrales a été visualisée. Ces nouvelles fréquences qui peuvent être identifiées sont caractéristiques de la présence d'effets non linéaires d'ordre 3 dans la fibre, qui dépendent de la longueur de la fibre, de la puissance crête ainsi que du diamètre du cœur. Le poling a clairement un impact sur l'apparition de ces phénomènes non linéaires d'ordre 3, c'est ce qui va être illustré à la suite de cette partie.

La Figure 39 représente l'évolution dans le temps des fréquences dans une gamme de longueurs d'onde allant de 340 à 1200 nm. La Figure 39A représente l'évolution dans le temps des longueurs d'onde sans l'activation du poling optique dans des conditions normales d'injection. La Figure 39B montre l'évolution dans le temps des longueurs d'onde avec la présence d'une susceptibilité non linéaire d'ordre 2 inscrite par poling.

Les fréquences caractéristiques visibles sur la Figure 39A sont :

- La FF à 1064 nm,
- Le pic Stokes à 1117 nm

- le pic anti-Stokes du Raman à 1015 nm.

Une cascade de pic Raman commence à apparaître avec le second pic Stokes à 1150 nm (plus visible dans le cas de la fibre polée) montrant l'apparition d'un début de supercontinuum. Les pics des GPI sont situés à 728 nm, 805 nm et 650 nm. Nous retrouvons le pic du SH induit par la susceptibilité d'ordre 2 due au poling optique à 532 nm. La longueur d'onde à 548 nm correspond à un mélange à trois ondes entre la FF et le premier pic Stokes. Nous visualisons aussi un pic à 588 nm qui apparaît au bout de 75 min de poling et dont nous n'avons pas pu, pour l'heure, en déterminer l'origine.

Les variations de certains effets non linéaires en fonction de la présence ou non du poling dans la fibre ont également été caractérisées. La Figure 39 montre la différence de l'évolution spectrale des effets non linéaires présents dans la fibre Alcatel avec et sans poling. La Figure 39A ne montre aucun changement sur le spectre dans le temps aux longueurs d'onde identifiées. La propagation de la FF seule n'induit donc pas de variation des propriétés  $\chi^{(3)}$  de la fibre au cours du temps. A contrario, la Figure 39B met en évidence l'augmentation des conversions non-linéaire vers des instabilités paramétriques géométriques en fonction du temps de poling. En effet, nous observons un élargissement spectral sur le pic principal des GPI à 728 nm ainsi que l'apparition d'une longueur d'onde à 588 nm au bout de 75 min de poling. Ces évolutions sont significatives puisque la puissance moyenne des GPI a augmenté de 14 mW, par rapport au cas sans poling. Dans la fibre polée, nous remarquons également la présence d'un pic Raman à 1150 nm qui n'est pas visible sur la fibre non polée. Nous remarquons également une variation présente à 60 min sur les deux figures. Cependant, nous n'arrivons pas à expliquer cette sous intensité du spectre qui n'est pas visible lors de la prise de mesure au puissance mètre.

Lorsque l'on compare les premiers et derniers spectres des deux cas (Figure 39C et D), nous remarquons une différence significative sur l'intensité des spectres lorsque la fibre possède une non-linéarité d'ordre 2 à la fin de l'expérimentation. La plus grande amélioration sur le spectre de la fibre polée est la forte augmentation de l'effet Raman Stokes sur le pic principal des GPI à 728 nm.

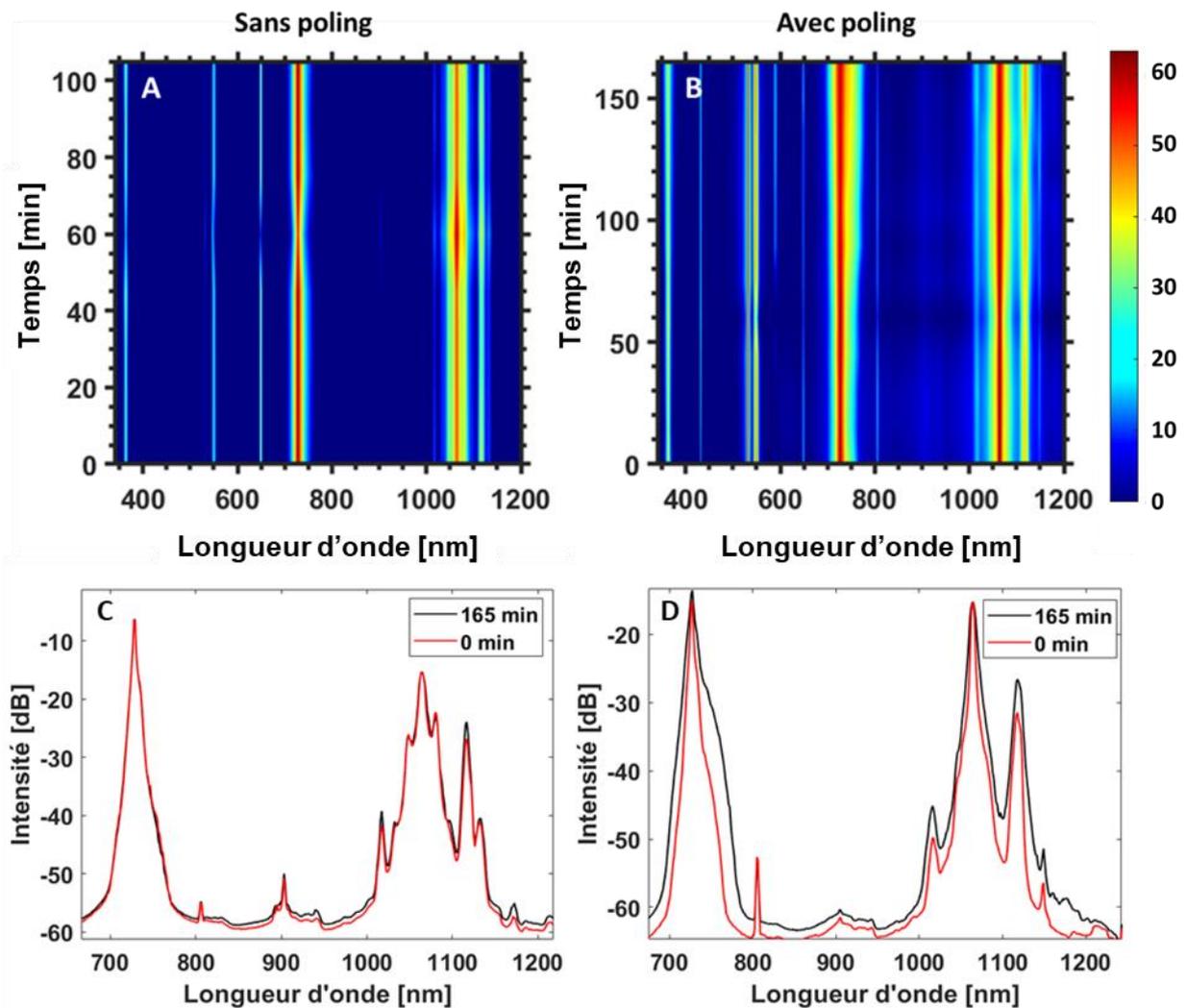


Figure 39 : Impact du poling sur l'évolution des effets non linéaires d'ordre 3 dans le temps, A. Fibre sans poling optique, B. Fibre avec la présence du poling optique. C. Comparaison du premier et du dernier spectre sur l'évolution des effets non linéaires d'ordre 3 sans poling. D. Comparaison du premier et du dernier spectre sur l'évolution des effets non linéaires d'ordre 3 avec poling.

Après ces premières analyses, nous souhaitons mieux souligner l'impact du processus de poling sur la création de nouvelles fréquences dans la fibre MMGRIN. Pour cela, 5 mètres de fibre Alcatel 50/125 ont été utilisés afin de laisser plus de longueur pour que les phénomènes non linéaires s'établissent. La Figure 40 représente le spectre mesuré en sortie de 5 m de fibre Alcatel 50/125 avant (rouge) et après poling (noir). Nous remarquons que le poling accentue la présence de fréquences autour de la SH. Cette inscription favorise également l'apparition d'un élargissement sur le pic principal des GPI (728 nm) et génère de nouvelles fréquences sous forme de peigne autour de 450 nm. Lors de ces mesures, l'injection dans le spectromètre « ANDO », ainsi que l'injection en entrée de fibre n'ont pas été modifiées.

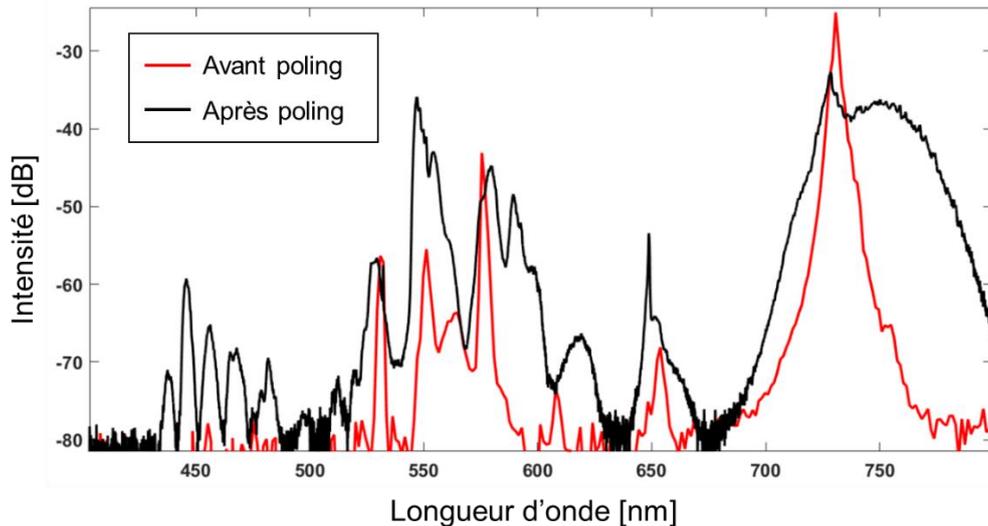


Figure 40 : Comparaison du spectre visible d'une fibre Alcatel de 5 m de long avant et après poling.

Il apparaît clairement que l'effet du poling optique dans les MMGRIN modifie l'efficacité de génération de certaines raies spectrales et notamment celles associées aux GPI. Comme montré dans [Krupa 2016] les GPI sont obtenues avec un accord de phase faisant intervenir l'effet d'auto-imagerie combiné à l'effet Kerr, ce qui produit un réseau d'indice permettant de satisfaire l'accord des vitesses de propagation entre les ondes. Toutefois, cette concentration énergétique permet au poling d'être plus efficace et de modifier plus en profondeur l'indice linéaire du cœur de la fibre grâce à l'effet de déplacement de charges. Cette augmentation périodique de l'indice linéaire profite forcément à la génération de GPI ce qui se traduit par un élargissement spectral de la raie à 728 nm et à toutes cascades de conversion générant une multitude de raies supplémentaires (ordres supérieurs des GPI) [krupa 2016]. On verra également par la suite que les raies supplémentaires autour de la SH sont le résultat de l'association de l'effet périodique de l'auto-imagerie et du battement entre la FF et la SH.

#### II.4.2. Caractérisation des durées d'impulsions du $\chi^{(2)}$ et du $\chi^{(3)}$

En plus de la caractérisation spectrale et spatiale des faisceaux induits par le poling optique, nous avons mesuré la durée d'impulsion de la source laser, du faisceau issu du KTP utilisé ainsi que la durée des impulsions au SH issue du poling optique dans la fibre Alcatel 50/125 de 5 m de long utilisé dans la partie précédente. La Figure 40 représente le schéma expérimental utilisé pour mesurer la durée d'impulsion des différentes fréquences apparaissant avant et après la séance de poling. Un miroir argent est utilisé pour le renvoi du faisceau collimaté en sortie de fibre sur un réseau de diffraction. Ce réseau est placé sur une monture permettant de changer l'angle d'incidence du faisceau et de sélectionner spatialement la fréquence dont on veut mesurer la durée d'impulsion sur la photodiode.

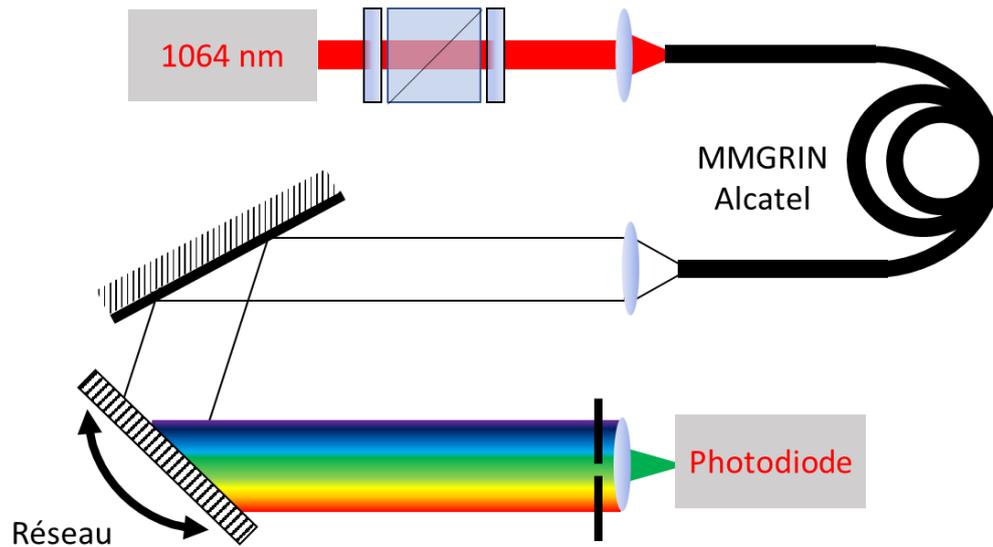


Figure 41 : Schéma expérimental de la mesure par une photodiode de la durée des impulsions des fréquences présentes en sortie de fibre.

La Figure 42 représente les différentes durées d'impulsions mesurées tout au long de l'expérimentation par une photodiode de 40 GHz. Les impulsions sont mesurées à mi-hauteur en intensité (Full Width at Half Maximum, FWHM).

Dans un premier temps, des mesures de durées d'impulsions de la FF du laser et de la SH issue du KTP sont réalisées à la sortie de ces deux éléments. La durée d'impulsion de la FF est de 640 ps (Figure 42A) et la SH en sortie du KTP montre une largeur FWHM de 460 ps (Figure 42B). Cette mesure correspond à une conversion non linéaire due au mélange à trois ondes donnant un écart de durée des impulsions à ces deux fréquences d'un facteur  $\sqrt{2}$ . La SH produite en sortie de fibre optique après la phase d'activation, présente une durée d'impulsion bien plus courte avec une mesure proche de 200 ps (Figure 42C). Cette réduction d'impulsion, d'un facteur supérieur à 3 par rapport à l'impulsion initiale de la FF, est particulièrement surprenante et non conventionnelle. Toutefois cette impulsion est le fruit d'une cascade d'effets non linéaires mélangeant d'une part, l'effet de self-cleaning Kerr et d'autre part le processus de poling optique. Il a déjà été montré que seul le processus de self-cleaning pouvait engendrer une compression temporelle d'un facteur supérieur à deux [Krupa 2018]. L'ajout du rétrécissement d'impulsion introduit par la conversion  $\chi(2)$  permet d'obtenir un facteur trois et d'expliquer ce rétrécissement.

Pour les autres fréquences, une mesure de la durée d'impulsion a été réalisée avant et après poling. Les fréquences caractérisées sont celles présentes avant la création du poling optique et celles qui apparaissent après l'activation. Ces mesures permettent de visualiser l'impact d'une susceptibilité non linéaire d'ordre 2 sur la durée d'impulsion de ces fréquences liées à une non-linéarité d'ordre 3. En effet, pour les effets non linéaires d'ordre 3, chaque fréquence a une évolution différente. La Figure 42D montre une durée d'impulsion de 200 ps pour la longueur d'onde apparaissant après poling à 454 nm.

Cette raie spectrale, dont l'origine sera discutée plus tard, subit la même évolution que la raie à la SH avec l'impact de l'effet de self-cleaning et d'une conversion  $\chi(2)$ . La Figure 42E ne montre pas de différence de durée d'impulsion à mi-hauteur avant et après poling de la longueur d'onde à 590 nm avec 100 ps. La variation la plus importante est représentée par une division de l'impulsion initiale en deux de la fréquence à 728 nm (Premier ordre GPI) passant d'une durée d'impulsion de 340 ps avant poling à deux pics plus fins formant une durée d'impulsion de 400 ps après poling. Cet effet est similaire à l'impact d'une déplétion Raman stimulé qui a pour effet de vider le centre de l'impulsion [Couderc 2010].

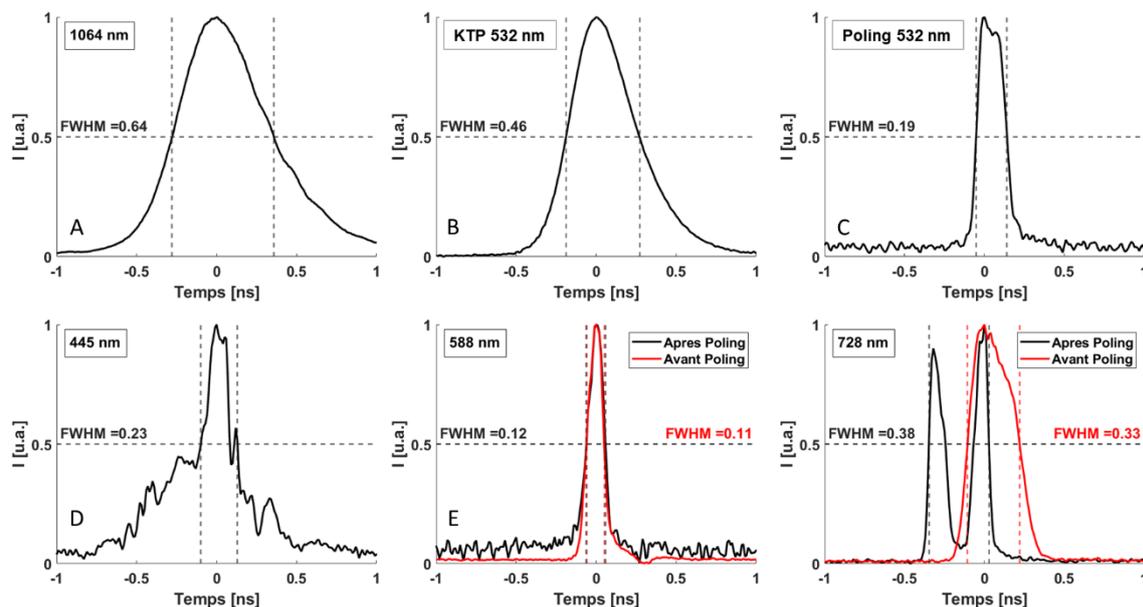


Figure 42 : Mesure à mi-hauteur de la durée d'impulsions avec une photodiode de 40 GHz. A. Durée d'impulsion de la FF, B. Durée d'impulsion de la SH en sortie du KTP, C. Durée d'impulsion de la SH après poling optique, D. Durée d'impulsion de la longueur d'onde apparaissant après poling à 445 nm, E. Durée d'impulsion de la longueur d'onde à 588 nm, F. Durée d'impulsion du pic principal des GPI.

Nous avons pu montrer ici qu'un processus d'inscription par poling optique mélangeait les effets non linéaires d'ordre deux et d'ordre trois. De plus, les principaux mélanges à quatre ondes bénéficient d'une augmentation de leur efficacité après poling ce qui permet, en plus, de détecter la présence de nouvelles composantes fréquentielles. Toutefois, pour la fréquence spécifique de 532 nm (SH), il est très difficile d'obtenir plus de 1% de conversion. A ce stade, ce phénomène peut s'expliquer par l'optique avec la présence d'une compétition entre les effets d'ordre 2 et d'ordre 3 qui impliquent l'utilisation par différents processus de l'énergie de l'onde de pompe.

L'un de nos objectifs est d'améliorer cette efficacité de conversion de la FF vers la SH. C'est pourquoi nous allons tenter de supprimer certains effets non linéaires d'ordre 3 se produisant dans la fibre, pour tenter de concentrer l'énergie de la pompe uniquement sur la production de SH. Pour cela nous pouvons modifier deux paramètres : la puissance moyenne du laser ainsi que la longueur de la

fibre. Afin de conserver une puissance crête similaire lors de nos expériences, le choix de la réduction de la longueur de la fibre semble le plus pertinent.

### II.4.3. Dépendance des effets non linéaires avec la longueur de la fibre

Nous souhaitons maintenant évaluer la longueur de fibre nécessaire à l'apparition des effets non linéaires dans les fibres polées. Pour cela, nous réalisons une coupe de la fibre tous les 10 cm et nous mesurons le spectre à sa sortie. Cette technique nommée « cut back » me permet de relier rétrospectivement l'apparition des effets non linéaires d'ordre 3 avec la longueur de la fibre. Ces fréquences apparaissent et s'intensifient avec la longueur de la fibre.

Comme le montre la Figure 43A, les GPI sont les premières à apparaître à 728 nm, visualisées lorsque la fibre mesure un minimum de 80 cm. La seconde apparition est le pic Stokes Raman à 1117 nm pour une longueur de fibre d'au moins 110 cm. Il est suivi du mélange à trois ondes à 545 nm, du Raman des GPI à 745 nm et du pic à 588 nm au bout de 150 cm de longueur de fibre. Le dernier phénomène visible est le pic Raman anti-Stokes lié à 1015 nm après 160 cm de longueur de fibre. Cette expérimentation a montré que les effets non linéaires d'ordre 3 évoluent et apparaissent lorsque la longueur de la fibre est supérieure à 80 cm. Dans le cas des MMGRIN, l'inscription du  $\chi^{(2)}$  est observé uniquement dans le premier mètre de la fibre. On peut donc attester que l'apparition des effets de mélanges à quatre ondes stoppe l'inscription du  $\chi^{(2)}$  en utilisant l'onde de pompe dans d'autres processus paramétriques. Il est également important de noter que l'inscription non linéaire  $\chi^{(2)}$  peut subir un effacement lorsque celui-ci est irradié par des longueurs d'onde visibles qui ont la particularité de mettre en mouvement des charges électroniques de la silice [Kyung 1996]. Il est donc important d'éviter la génération d'ondes visibles pouvant se propager après réflexion en bout de fibre sur le réseau  $\chi^{(2)}$  créé. Si il est impossible de bloquer l'apparition des effets d'instabilité GPI et l'effet Raman il est tout de même possible de les supprimer en coupant la fibre avant leur apparition.

La Figure 43B montre l'expérience de poling menée cette fois-ci dans une fibre de 80 cm de longueur afin de caractériser l'évolution du  $\chi^{(2)}$  sans effet non linéaire d'ordre 3. L'augmentation de l'intensité de la SH est suivie au cours du temps. Dans cette session de poling, malgré la suppression de la majorité des effets non linéaires excepté pour le pic principal des GPI à 728 nm qui est très faible et reste constant au cours de la séance de poling. La SH ne dépasse pas le 1% de conversion faisant penser que le pourcentage de conversion généré par la fibre Alcatel 50/125 est plafonné par un phénomène physique qui n'est pas lié à la longueur de la fibre et dont il faut trouver l'origine. Cela permet également de conclure que les réflexions en bout de fibre de rayonnements parasites émis par d'autres processus non linéaires et qui se propagent sur le réseau  $\chi^{(2)}$  n'est pas une limitation du processus d'inscription.

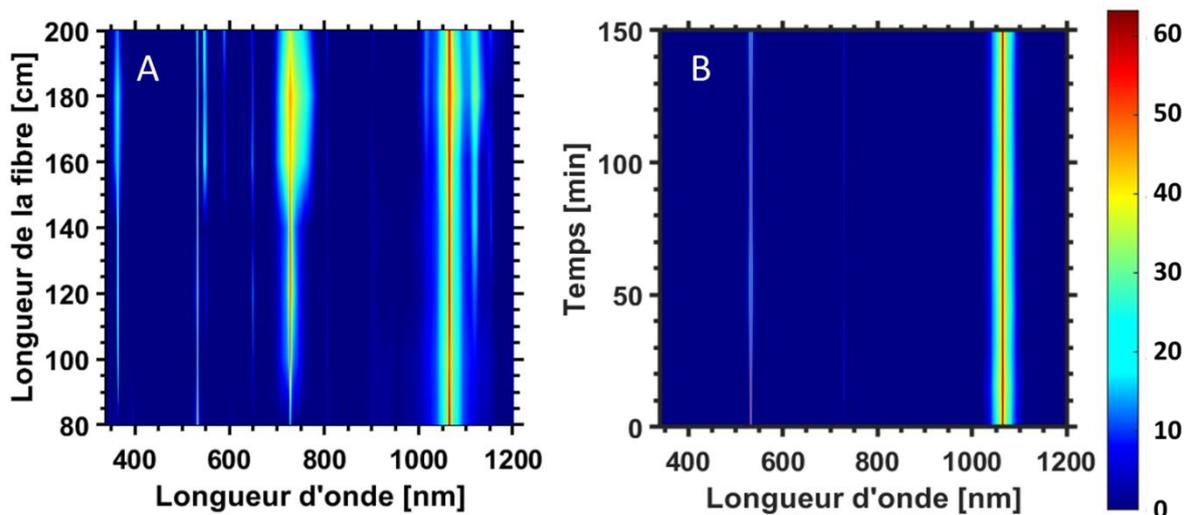


Figure 43 : A. Cut back de la fibre Alcatel. B. Evolution spectro-temporelle du poling optique dans 80 cm de fibre Alcatel 50/125.

Quant à l'apparition du poling, une étude menée par Osterberg et Margulis en 1986 (Figure 44A [Osterberg 1986]) a démontré l'importance d'avoir une fibre supérieure à 20 cm de long. Eftekhar et al. montrent quant à eux le rôle de la longueur de la fibre multimode parabolique sur l'efficacité de la conversion de la seconde harmonique, comme l'indique la Figure 44B [Eftekhar 2017]. De notre côté, une mesure de poling dans la fibre Alcatel 50/125 de 5 m de long n'a montré aucune évolution dans un sens ou dans l'autre, au niveau de l'efficacité de conversion de la FF vers la SH, contrairement aux travaux de Eftekhar et al.

Notre résultat entre donc en contradiction avec des travaux publiés dans la littérature par l'équipe de Franck Wise. Comme nous n'avons pas observé ce résultat malgré de nombreux essais, nous pouvons émettre des hypothèses sur les origines de cette différence. Le laser utilisé par Eftekhar et al. a une durée d'impulsion de 400 ps, une fréquence de 500 Hz pour 100 kW de puissance crête, ce qui conduit à une puissance moyenne de 40 mW. Nous n'utilisons pas les mêmes puissances crêtes et ce paramètre peut être une explication possible. Dans nos travaux, seule la longueur d'onde à 532 nm (qui correspond strictement à la SH de l'onde de pompe à 1064 nm) est considérée pour conduire à l'efficacité de conversion de 1%. Dans leurs cas de figure, la caractérisation de la SH correspond en revanche à l'ensemble de l'intensité des pics autour de la SH principale à 532 nm, avec un filtre à 532 nm de 10 nm de bande spectrale. C'est en partie pour cela que nous ne trouvons pas les mêmes efficacités de conversion non linéaire. En d'autres termes, nous négligeons les cascades de conversion induite par la SH et qui contribuent à la dépléter.

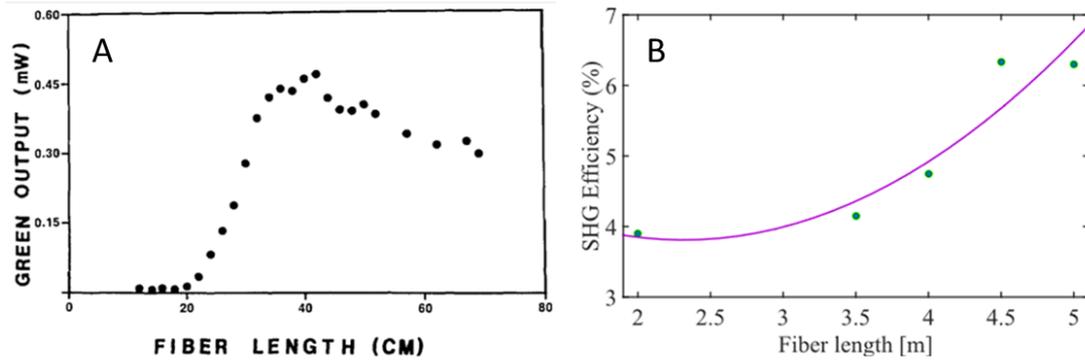


Figure 44 : A. Puissance moyenne de la SH selon la longueur d’une fibre monomode avec un cœur dopé phosphore de 8  $\mu\text{m}$  réalisé par Osterberg et Margulis en 1986. B. Efficacité de conversion de puissance pour différentes longueurs de fibre multimode parabolique. Selon les auteurs, l’efficacité tend à augmenter avec la longueur de la fibre [Eftekhari 2017]

En conclusion, il est possible de s’interroger sur l’analyse des résultats faite par Eftekhari et al. : porte-t-elle purement sur l’analyse du phénomène d’ordre 2 ou inclut-elle également des contributions spectrales liées à des phénomènes non linéaires d’ordre 3 ?

#### II.4.4. Rôle de l’accord de phase dans la création de nouvelles fréquences

Dans les parties précédentes, nous avons montré l’impact du poling sur l’apparition de nouvelles composantes fréquentielles dans le spectre visible. Nous avons souhaité comprendre le mécanisme de génération des nouvelles fréquences apparaissant autour de la SH (532 nm). Dans la littérature, les mesures de poling optique sur une fibre MMGRIN effectuées par Ceoldo [Ceoldo 2017] montrent l’apparition d’un peigne de fréquences autour de la SHG. L’article présente une simulation corrélant l’indice de réfraction et le diamètre de la fibre à l’apparition de ces composantes fréquentielles. Cette approche étant adaptée à la situation expérimentale menée dans le cadre de ma thèse, s’appuyer sur ces travaux pour la compréhension du mécanisme mis en jeu est essentiel.

##### II.4.4.1. Simulation de l’apparition des fréquences du peigne

L’inscription générée par le poling optique permet un accord de phase sur de multiples longueurs d’onde et non uniquement sur la fréquence utilisée pour générer le poling optique. Le quasi accord de phase étant lié aux spécifications de la fibre, nous avons voulu comprendre les phénomènes physiques régissant l’apparition du peigne de fréquences autour de la SH caractérisé par Ceoldo et al. [Ceoldo 2017].

Dans l’article de Ceoldo et al., la simulation de la position des pics est calculée selon la période de propagation de la FF et de la SH avec l’équation suivante :

$$\Delta\beta' - \frac{2\pi}{\Lambda_{FF}} - q \frac{2\pi}{\Lambda_{SH}} = 0$$

Avec  $\Delta\beta'$  l'accord de phase,  $\Lambda_{FF}$  la longueur de la période de la FF et  $\Lambda_{SH}$  la longueur de la période de la SH avec  $q$  étant le nombre de fois que  $\Lambda_{SH}$  apparait dans  $\Lambda_{FF}$ . Si la condition est égale à 0, un pic apparaîtra sur le spectre. Cette simulation est visible sur la Figure 45 en rouge.

La simulation effectuée de notre côté pour réaliser cette expérience a été réalisée avec Yago Arosa au laboratoire XLIM. Cette simulation définit la position des longueurs d'onde de ce peigne de fréquences en considérant la périodicité de la constante de propagation entre les modes. Dans nos résultats, seule la constante de propagation du mode fondamental à 1064 nm a été prise en compte. Cependant, dans la réalité, il existe de multiples constantes de propagation supplémentaires liées aux modes transverses sur lesquels se propage les ondes FF et SH et qui peuvent satisfaire à la condition de quasi accord de phase  $\Delta\beta'$  qui s'exprime par :

$$\Delta\beta' = \beta_{2\omega}^n - 2\beta_{\omega}^0 = 0$$

Ici,  $\beta_{2\omega}^n$  représente les constantes de propagation de la SH pour un mode  $n$  donné. Les constantes de propagation des ondes sont calculées en fonction des longueurs d'onde. A partir de ces calculs nous pouvons vérifier les conditions pour lesquelles  $\Delta\beta'=0$  dans la bande spectrale 900 – 1300 nm. Lors des calculs, nous avons pu remarquer qu'à partir d'une longueur d'onde critique (environ 980 nm) une seconde harmonique ne peut pas être générée car l'indice de la FF sera alors plus petit que l'indice de sa SH dans la gaine. Cette simulation est représentée sur la Figure 45 en bleu.

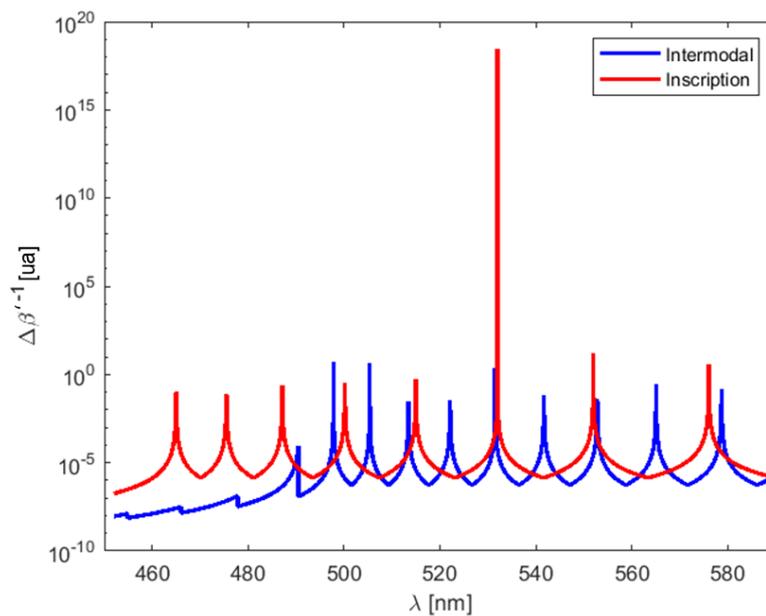


Figure 45 : Condition pour le quasi accord de phase utilisant la périodicité de l'inscription (en rouge) et le quasi accord de phase intermodal de SH (en bleu)

Dans la simulation effectuée par Ceoldo et al., seuls les pics avec le mode de propagation fondamentale de la SH sont calculés grâce à l'équation suivante :

$$\chi^{(2)}(z) = \chi_0^{(2)} \cos\left(\frac{2\pi}{\Lambda} z\right) \sum_{q=1}^5 \left\{ 1 + \cos\left(\frac{2\pi}{\Lambda_S} z\right) \right\}$$

Avec  $\Lambda$  étant l'accord de phase de la seconde harmonique et  $\Lambda_S$ , la période d'auto-nettoyage de l'onde fondamentale.

Dans notre cas, nous calculons le  $\Delta\beta'$  pour tous les modes transverses de la SH. C'est pour cela que nous visualisons sur la courbe bleue, des pics supplémentaires apparaissant entre les pics de la courbe rouge.

On constate également dans la Figure 45 que les deux approches fournissent des valeurs similaires pour les pics en commun, mais, qu'un décalage de pics entre les deux modèles apparaît à mesure que nous nous éloignons de la SH à 532 nm. Dans la partie suivante, une mise en œuvre expérimentale est réalisée.

#### II.4.4.2. Montage expérimental

Nous avons en parallèle à la simulation, essayé de retrouver le peigne de fréquences décrit par Ceoldo et Eftekhar avec un laser délivrant une puissance crête adaptée pour générer un supercontinuum autour de la FF dans une fibre Alcatel 50/125 polée de 2 m de long. Toutefois, l'utilisation d'impulsions subnanosecondes avec une longueur de fibre limitée à 2 m ne permet pas de réaliser cela ce qui nous a conduit à changer de source d'excitation. La fibre MMGRIN est polée au préalable sur le banc expérimental présenté au début de ce chapitre avec la source à 1064 nm. Comme le montre le Figure 46, un nouveau laser Tangerang HP Amplitude de longueur d'onde centrale à 1030 nm pour une largeur spectrale de 5 nm est utilisé. Son taux de répétition est de 300 kHz et la durée d'impulsion est accordable entre 250 fs et 10 ps. Pour cette expérimentation, une durée d'impulsion de 10 ps a été utilisée.

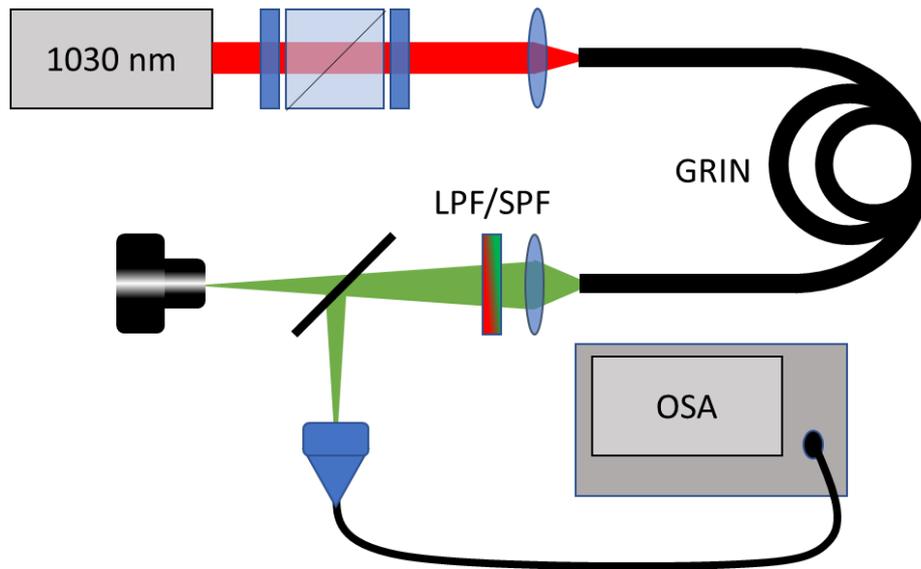


Figure 46 : Expérience d'élargissement spectral dans une fibre Alcatel MMGRIN 50/125 préalablement polée à 1064/532 nm. Utilisation d'un laser 1030 nm, 300 kHz, 10 ps. Un jeu de filtres et une caméra CCD 2D permettent de visionner le mode de différentes fréquences. L'analyse spectrale est réalisée par le spectromètre ANDO OSA.

#### II.4.4.3. Résultats expérimentaux

Pour analyser le spectre en sortie de la fibre, nous avons utilisé le spectroscopie « Ando » pour couvrir à la fois la plage de longueur d'onde de la pompe (900-1300 nm) et celle de la SH (400-600 nm) à l'aide de filtres passe-bas et passe-haut (SPF pour « Short Pass Filter » et LPF pour « Long Pass Filter » sur le schéma du montage). Le spectre a été mesuré à différentes puissances crêtes du signal de pompe allant de 10 à 200 kW en modifiant la durée d'impulsion du laser. Les Figures 47A et 44B illustrent l'évolution de ces spectres avec la puissance crête. En comparant les spectres de la FF et de la SH présentés aux Figure 47A et 47B, nous pouvons voir à faible puissance crête seulement un pic à 513 nm apparaitre qui ne correspond pas rigoureusement à la SH de la FF du laser (515 nm). Lorsque nous augmentons la puissance crête, permettant l'élargissement spectral dans la fibre Alcatel polée autour de la fréquence de la pompe (1030 nm), des pics apparaissent autour de la SH. Les premiers pics surviennent lorsque la puissance crête du laser est supérieure à 30 kW.

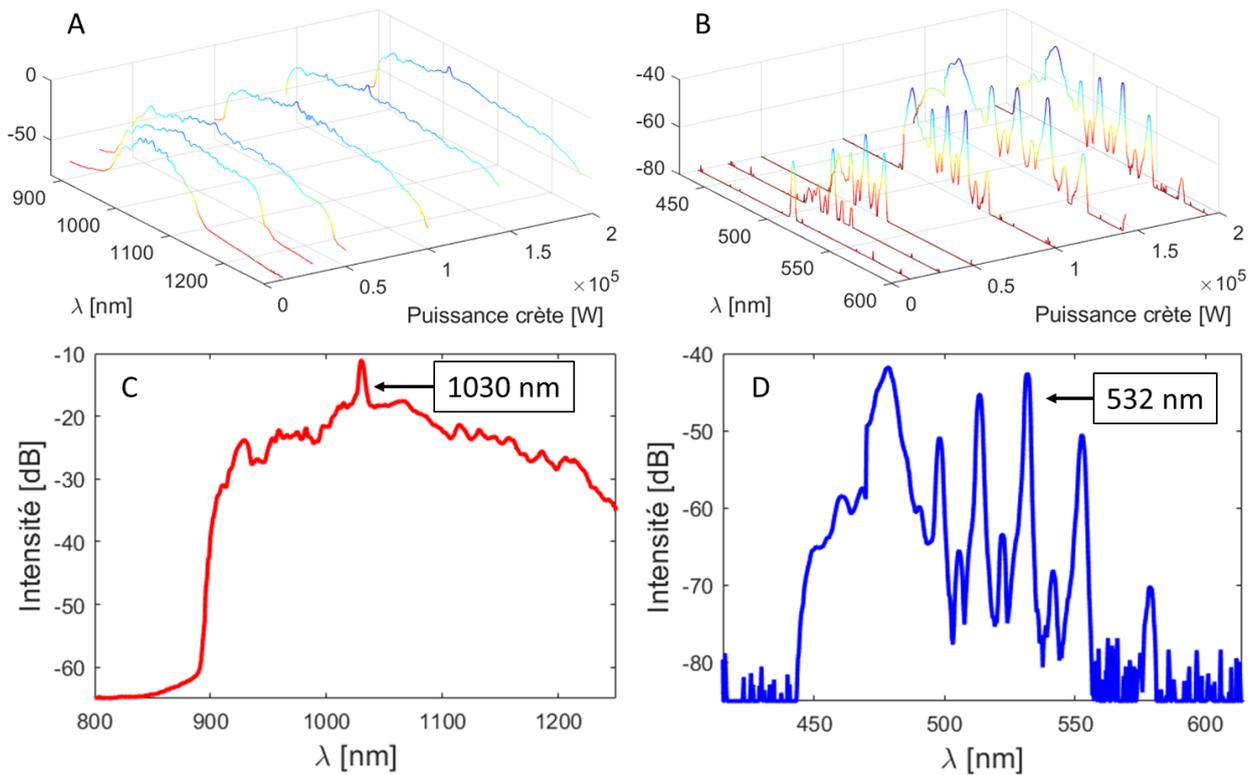


Figure 47 : A. Evolution spectrale mesurée en sortie de la fibre Alcatel 50/125 mesurée entre 900 et 1300 nm autour de la pompe. B. Puis entre 450 et 600 nm autour de la SH. C. Exemple d'un enregistrement spectral entre 900 et 1300 nm à 200 kW. D. Exemple d'un spectre entre 450 et 600 nm pour une puissance crête de la FF de 200 kW.

La figure 47C représente le spectre de la FF avec la plus grande puissance crête (200 kW). Le spectre large engendré dans la fibre est, dans un premier temps, dominé par l'automodulation de phase autour de 1030 nm. Dans un second temps, la propagation en régime solitonique au-dessus de 1.3  $\mu\text{m}$  permet une extension supplémentaire du spectre. Enfin, les solitons infrarouges induisent des ondes dispersives dans le domaine visible-proche infrarouge. La génération rapide d'un tel spectre en début de fibre, permet d'obtenir la réponse d'accord de phase globale du réseau  $\chi(2)$  photo-inscrit. La Figure 47D correspond à la réponse de l'accord de phase dans le visible du spectre infrarouge. La plupart des pics autour de la SH sont fins de quelques nanomètres à leur largeur à mi-hauteur et présentent une alternance en intensité dont les longueurs d'onde sont listées dans le tableau suivant :

FF (nm)	980	996	1010	1026	1044	<b>1064</b>	1084	1106	1130	1158
SH (nm)	490	498	505	513	522	<b>532</b>	542	553	565	579

Tableau : Liste des conversions à la seconde harmonique et des fréquences fondamentales concernées ; puissance crête (200 kW)

Le spectre visible montre que malgré une onde fondamentale de 1030 nm, il n'existe pas de SH à 515 nm. Le pic le plus proche est à 513 nm. La conversion de fréquence la plus efficace est située à 532 nm correspondant à la SH de l'onde de pompe utilisée pour l'inscription (1064 nm). Ainsi le composant fibré doubleur de fréquence, réalisé par poling optique, possède une acceptante spectrale non conventionnelle large bande discrète permettant de convertir des longueurs d'onde sur plus de 150 nm.

La Figure 48 montre à la fois le peigne obtenu avec une puissance crête de pompe de 200 kW (afin d'observer un élargissement maximal) et les positions prédites par la simulation des pics en tenant compte de l'accord de phase (méthode de simulation en bleu sur la Figure 48) ainsi qu'en ajoutant à cette simulation l'intensité de la FF ainsi qu'un coefficient de couplage entre les modes et les ondes en interaction. Ces ajouts permettent de prendre en compte la différence d'intensité des pics générés. En utilisant la simulation, nous pouvons prédire correctement non seulement la position des pics, qui correspondent maintenant parfaitement, mais aussi l'alternance entre les pics de fortes et faibles amplitudes.

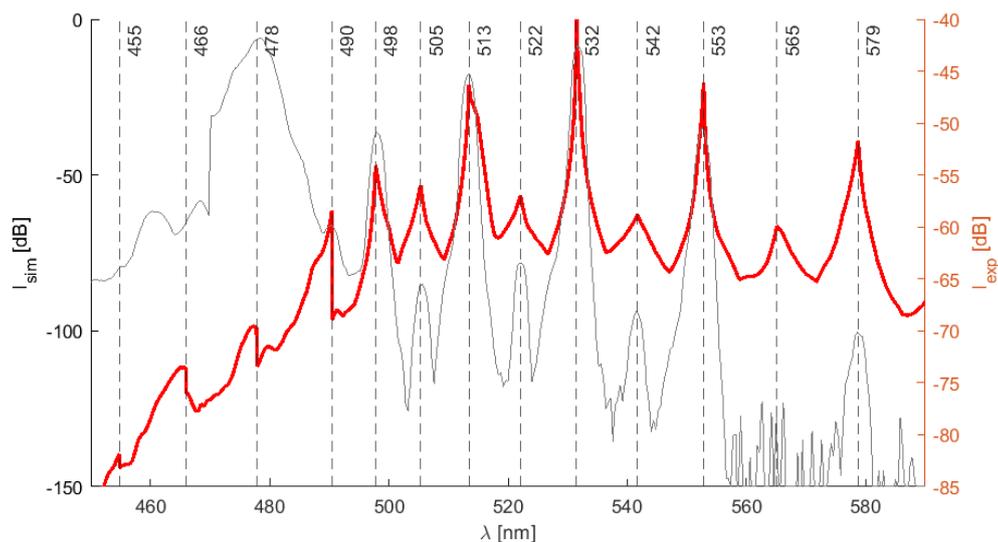


Figure 48 : Corrélation entre la simulation des longueurs d'onde où se produit le quasi accord de phase (en rouge) avec la mesure expérimentale du peigne de fréquences (en gris).

## II.5. Conclusion

Dans cette partie de ma thèse, le mécanisme de poling optique dans différentes fibres a été étudié de manière minutieuse, en tentant systématiquement de rechercher un moyen d'optimiser l'efficacité de poling pour obtenir un rendement de conversion non linéaire maximum. Tout d'abord, les spécifications des fibres ont été mesurées par nos soins puis les différents effets non linéaires se produisant dans la fibre ont été caractérisés. L'impact de différents paramètres géométriques de la fibre (longueur, diamètre de cœur...), de l'apparition d'effets non linéaires 3, a été évalué sur l'efficacité de poling.

Ces caractérisations ont montré que pour une fibre Alcatel MMGRIN de 50  $\mu\text{m}$  de cœur avec un  $\Delta n$  de 0,015, il est possible d'obtenir une génération de second harmonique avec une majorité de conversion sur le mode fondamental de la fibre. Cette émission quasi-monomode transverse au second harmonique a une efficacité en puissance moyenne de 1% et de 3% si on tient compte du rétrécissement temporel obtenue par cascade non linéaire, impliquant l'effet de self-cleaning et la conversion au SH. On peut également noter que les effets de nettoyage spatial dans la MMFGRIN sont améliorés avec un second nettoyage spatial plus lent obtenu suite au poling optique, c'est-à-dire suite à la modification structurelle de la silice sous l'effet de déplacements de charges électroniques. Une modification de l'indice de réfraction linéaire est envisagée [Brückner 1970, Haken 2000] et sera confirmée dans le chapitre suivant.

Il est par ailleurs possible d'engendrer un peigne de fréquence aux longueurs d'onde situées autour de  $\lambda = 532 \text{ nm}$  (longueur d'onde d'inscription du poling – SH). Dans ces conditions, l'acceptance spectrale sur cette fibre multimode polée est proche de 150 nm (longueur d'onde fondamentale). Cette acceptance atypique permet la création de plusieurs raies spectrales dans la région du visible à partir d'un continuum infrarouge obtenu dans la même fibre. Ce mécanisme apparaît clairement comme une spécificité des fibres optiquement polées pour obtenir un supercontinuum.

Il est toutefois à noter que les expériences de poling optique conduites sur la fibre Thorlabs 50/125, pourtant de même composition chimique et de même gradient d'indice que la fibre Alcatel, n'ont jamais permis d'obtenir les mêmes résultats. Ce point particulier fera l'objet du chapitre suivant.

Au-delà des aspects spatiaux et temporels nous avons également regardé les conversions spectrales pouvant limiter le processus de poling optique. Nous avons clairement identifié l'effet Raman et le processus paramétrique d'instabilité géométrique comme effets limitant. En effet l'apparition de ces processus au bout de 80 cm de propagation ont pour effet de vider l'onde de pompe empêchant ainsi la continuité du processus d'inscription.

De manière plus intéressante, la modification de la structure de la silice, à cause du déplacement des charges électroniques, a pour effet de modifier l'indice central du cœur de la fibre avec une période identique à l'effet de self-imaging. Cela augmente l'efficacité du réseau d'indice Kerr à l'origine de la génération des instabilités géométriques (GPI). Ainsi nous avons constaté une augmentation de l'efficacité de génération de ces mêmes GPI en plus de l'augmentation du self-cleaning qui répond au même réseau spatial.

Dans le chapitre suivant, nous orienterons notre attention vers une approche spectroscopique originale pour la caractérisation des fibres optiques. Cette approche est en effet relativement « standard » en science des matériaux, mais elle conduit à accéder à des informations nouvelles sur la structure locale des fibres optiques, en lien avec l'inscription d'une non linéarité optique d'ordre deux au sein de ces fibres multimodes.

## Résumé du Chapitre 3

Dans ce chapitre, une analyse de la structure locale des fibres optiques à gradient d'indice est réalisée.

Une première approche utilisée est la détermination par imagerie Raman de la variation relative de la température fictive au sein des fibres par une analyse statistique multivariée. Cette analyse permet d'accéder à la modification structurale induite par l'inscription du poling optique. La variation relative de température fictive est alors reliée à l'aptitude des fibres optiques à générer une seconde harmonique.

Une étude par imagerie infrarouge est également réalisée.

## Chapitre III. Corrélation structure-propriété des fibres

### III.1. Détermination de la structure locale des fibres optiques

Le chapitre précédent a d'abord mis en évidence les spécifications des trois fibres MMGRIN utilisées afin de montrer leurs points communs et leurs différences. L'étude réalisée a permis de caractériser la capacité de ces fibres à générer du poling optique, se traduisant par l'inscription d'une non-linéarité du second ordre. Nous avons démontré l'aptitude de la fibre Alcatel à générer de la seconde harmonique contrairement à sa jumelle de la société Thorlabs. Mais malgré les études analytiques et théoriques menées dans le Chapitre 2, nous n'avons pas encore pu déterminer la cause de la différence d'efficacité de conversion entre la fibre Alcatel 50/125 et la fibre Thorlabs 50/125. C'est pourquoi une étude de la structure locale a été mise en œuvre par spectroscopie Raman et par spectroscopie IR en focalisant notre attention sur différentes gammes spectrales comme expliqué dans le Chapitre 1.

#### III.1.1. Méthode d'analyse Raman

Le spectromètre Raman utilisé à l'IRCER, a permis d'un point de vue pratique l'analyse de la structure locale des sections de fibres optiques. Pour cela nous effectuons une clive sur les différentes fibres le jour même afin d'avoir une surface d'entrée lisse et propre. La fibre est tenue à la verticale par un support réalisé en interne. Chaque fibre a été mesurée 5 fois avec des clives effectuées à des endroits différents dans la longueur des fibres.

Un balayage 2D de l'ensemble de la face d'entrée de la fibre est réalisé. Les spectres de 200 à 1400  $\text{cm}^{-1}$  sont enregistrés en mode point sur une surface d'environ 160  $\mu\text{m}$  par 160  $\mu\text{m}$  avec un pas de 3  $\mu\text{m}$  ce qui représente des jeux de données comprenant plus de 3000 spectres sur lesquels seront reconstruits les images Raman bidimensionnelles comme le résume le tableau 3.1. Nous n'étudierons pas le pic Boson dans ce travail, nous avons donc tronqué l'ensemble des spectres à 200  $\text{cm}^{-1}$ .

Type de fibre	Taille	Nombre de spectres	Gamme spectrale ( $\text{cm}^{-1}$ )
Thorlabs 62.5 polée	43 X 43	1849	201 – 1400
Thorlabs 62.5 vierge	46 X 45	2070	201 - 1400
Alcatel polée	46 X 44	2024	201 - 1400
Alcatel vierge	57 X 57	3249	201 - 1400
Thorlabs polée	45 X 45	2025	201 - 1400
Thorlabs vierge	45 X 49	2205	201 - 1400

Tableau 3.1 : Détails des cartographies 2D des fibres MMGRIN en imagerie Raman.

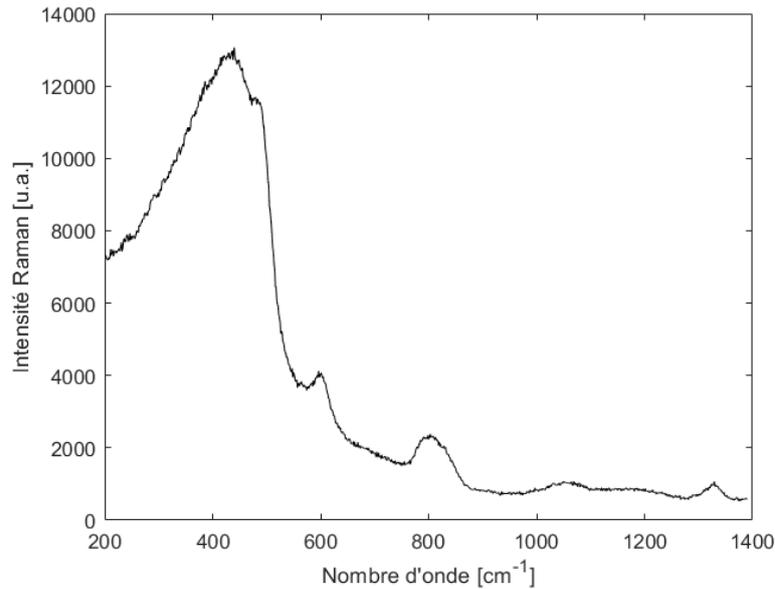


Figure 49 : Allure des spectres Raman d'une silice dopée au germanium. Sur ces spectres, comme présenté au Chapitre 1, on retrouve les pics caractéristiques de la silice : avec le massif large à  $440\text{ cm}^{-1}$ , le pic D1 à  $489\text{ cm}^{-1}$ , le pic D2 à  $606\text{ cm}^{-1}$ , le pic à  $800\text{ cm}^{-1}$  des liaisons Si-O-Si.

Les conditions d'acquisitions sont les suivantes : un temps d'enregistrement de 10 secondes par mesure pour 100% de puissance sortie laser soit 30 mW sur l'échantillon à une longueur d'onde de 785 nm, la lumière diffusée est collectée en rétrodiffusion à l'aide d'un objectif x 100 (ON = 0.85) et dispersée par un réseau de dispersion de la lumière de 1200 traits par millimètre. Le laser 785 nm a été utilisé pour atténuer la luminescence induite par la réponse des fibres polées sous illumination.

Les images Raman seront reconstruites à partir des jeux de données par méthode d'analyse multivariées non supervisées. Ces méthodes encore appelées « chimiométrie » sont des outils puissants qui utilisent des méthodes mathématiques pour obtenir le maximum d'information à partir de l'analyse de données. La chimiométrie fait donc partie des outils très utilisés en machine learning.

### III.1.2. Prétraitement des données

Si ces outils sont puissants, ils nécessitent néanmoins des pré-traitements rigoureux pour que les jeux de données soient « nettoyés » de toutes déformations qui ne seraient pas dues à la variation du paramètre recherché. Pour effectuer tous les traitements nous utilisons le logiciel Wire 5.0.

### III.1.2.1. Les rayons cosmiques

En spectroscopie Raman, une étape primordiale dans le traitement des données Raman est la suppression des artefacts causés par les rayons cosmiques détectés par le CCD. Ces raies prennent la forme de pics fins dans le spectre Raman. Cette caractéristique est simple à visualiser ce qui permet de les identifier facilement. Ce traitement de données permet de supprimer ces artefacts de manière automatique en utilisant deux méthodes de manière successive, d'abord la comparaison du spectre avec ses plus proches voisins puis le contrôle de la largeur à mi-hauteur des raies.

### III.1.2.2. Sélection de la gamme spectrale

Nous voulons étudier les modes impactés par la température fictive. Comme détaillé dans le chapitre 1, les modes D1 et D2 respectivement à 489 et 606  $\text{cm}^{-1}$  sont les deux bandes que nous voulons étudier. Les spectres seront donc tronqués entre 200 et 700  $\text{cm}^{-1}$  comme montré à la Figure 50 afin de focaliser notre étude sur la gamme spectrale d'intérêt.

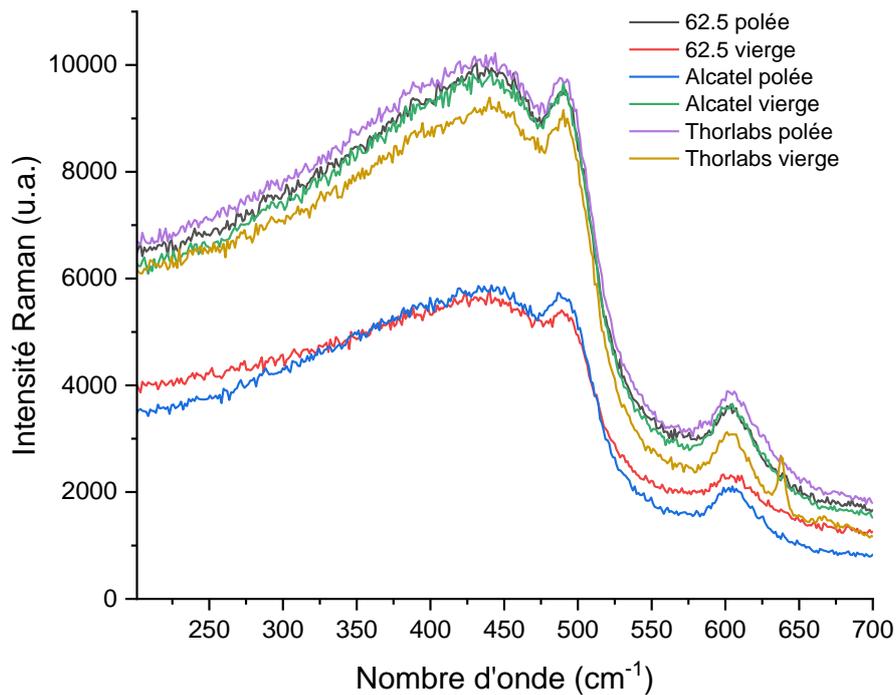


Figure 50 : Exemples de spectres Raman extraits de chaque cartographie Raman, les spectres sont bruts (pas de normalisation, ni de soustraction de ligne de base)

### III.1.2.3. Soustraction de la ligne de base

La soustraction de ligne de base est particulièrement utile dans de nombreux contextes analytiques où nous souhaitons isoler des signaux ou des phénomènes spécifiques. L'utilisation d'une ligne plus complexe peut engendrer une modification sur la position des pics et sur leurs amplitudes.

Dans notre cas, une ligne de base linéaire a été choisie sur la même gamme de fréquence pour l'ensemble des jeux de données. La Figure 51 montre que la soustraction de la ligne de base choisie n'a pas impacté la position du pic D1

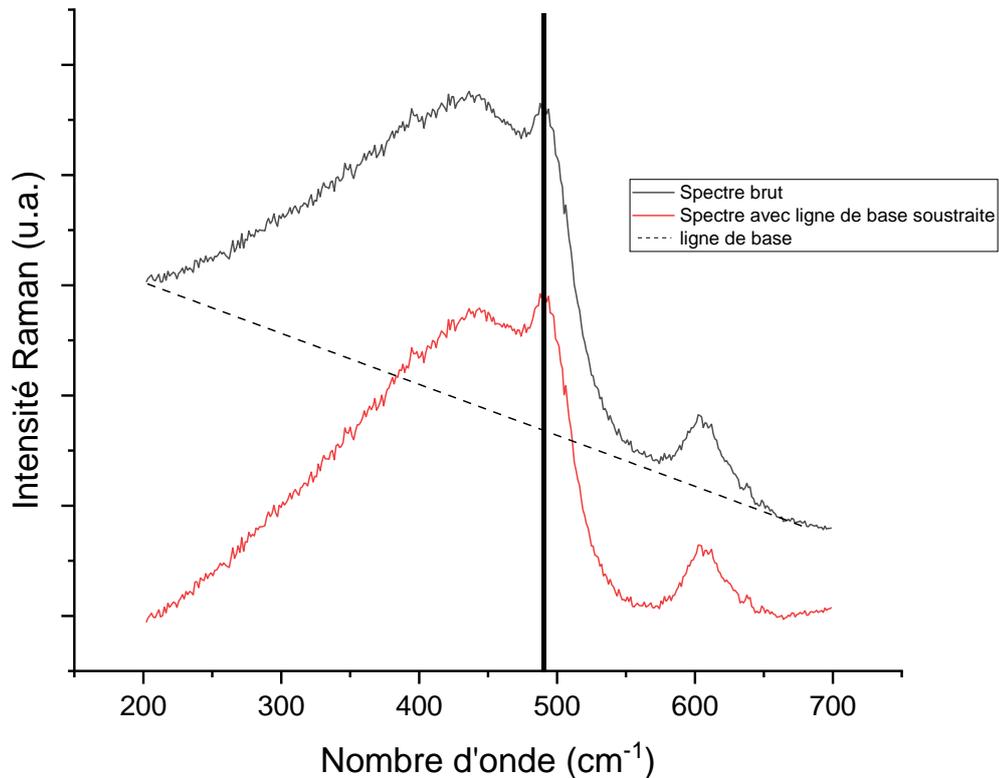


Figure 51 : Soustraction d'une ligne de base sur un spectre de silice dopée germanium

#### III.1.2.4. Normalisation des données

La normalisation des données vise à corriger les variations d'intensité entre les différents spectres. Dans notre cas, comme tous les modes évoluent, le choix d'une normalisation sur l'intensité intégrée totale par rapport à la ligne de base a été fait.

#### III.1.2.5. Evolution de la fréquence du mode D1 dans la fibre

Nous illustrerons notre propos en travaillant sur une seule fibre, l'approche étant équivalente dans les deux autres fibres. Dans la section de la fibre, il est connu que les pics présents D1, D2 ainsi que le massif large évoluent en nombre d'onde et en intensité selon la température fictive et les contraintes subies par la fibre [Martinet 2008]. Les travaux de thèse de V. Martinez montrent également qu'une différence de recuit de 350°C sur de la silice induit une variation de la position du pic D1 d'environ 2 cm<sup>-1</sup> comme montré dans la Figure 52A extrait de [Martinez 2004]. L'impact des températures lors de la création de la préforme et du tirage de la fibre sur les temps de relaxation de la Silice est faible mais très clair et bien connu et nécessite des méthodes d'analyse des jeux de données très précises. Le mode

D1 diminue en intensité et sa position varie en nombre d'onde lorsque l'on s'approche du centre de la fibre comme montré dans la Figure 52B.

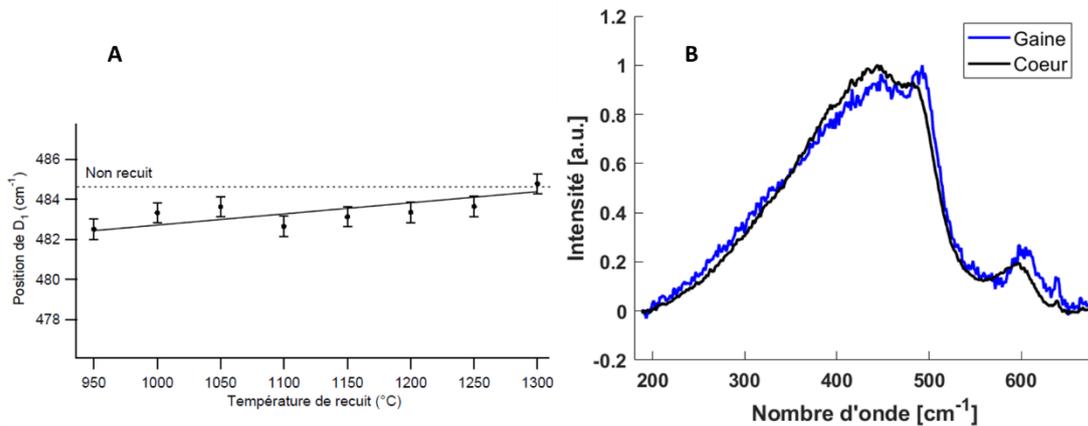


Figure 52 : A. Position du pic D1 en fonction de la température de recuit réalisé par Valérie Martinez [Martinez 2004] B. Exemple du spectre Raman de la fibre acquis dans le centre du cœur et dans la gaine.

Par imagerie Raman bidimensionnelle il est possible de suivre l'évolution en fréquence du mode D1 de manière radiale dans la section de fibre comme le montre la Figure 53A. L'image Raman 2D est reconstruite du mode D1 en fonction de sa position en nombre d'onde après décomposition de l'ensemble du spectre. La visualisation 3D permet de mieux rendre compte de cette distribution de fréquence radiale. La Figure 53B représente quant à elle une projection radiale de la Figure 53A. Le premier constat sur la représentation 3D est que la position du mode D1 varie très peu dans la gaine alors qu'elle varie significativement dans le cœur. La première question que l'on peut se poser est : est-ce que cette distribution de fréquence est corrélée uniquement à la distribution parabolique de la concentration de Germanium dans le cœur ou non ?

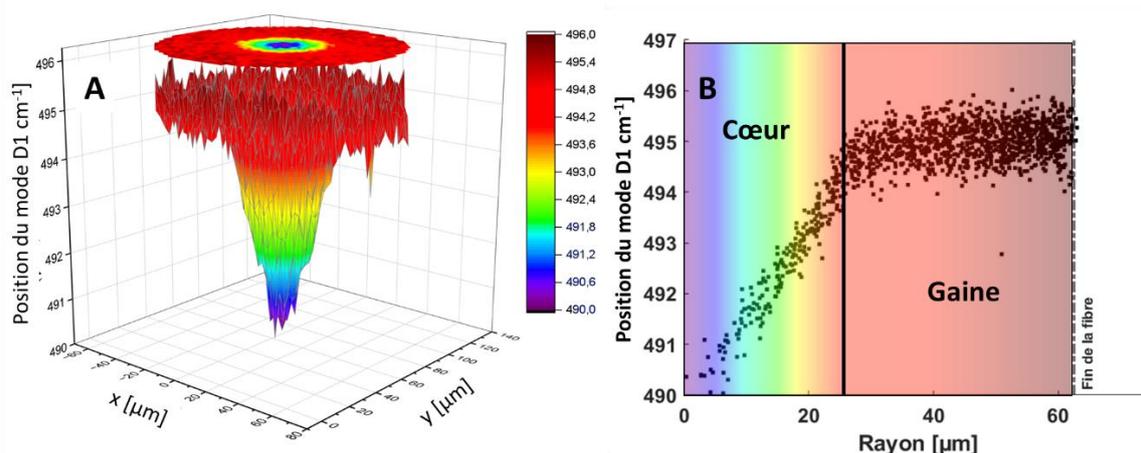


Figure 53 : Etude de la position du pic D1 dans la fibre Alcatel 50/125 :  
A. Représentation 3D de la position du pic D1 dans la section de la fibre Alcatel.  
B. Représentation de la position spectrale du pic D1 projeté selon le rayon de la fibre.

Si tel était le cas, la relation entre la position du pic D1 et la concentration en Germanium devrait être parabolique.

En effet, la Figure 54a représente l'évolution de la concentration en Germanium dans le cœur de la fibre obtenue par EDX. Cette évolution parabolique (avec une loi  $y = -0,0165x^2 + 0,0132x + 12,114$ ) est à l'origine du gradient d'indice de la fibre. La Figure 54A réunit l'information sur la distribution radiale de la concentration en germanium avec l'évolution radiale de la position du pic D1. La Figure 54B montre qu'il n'existe pas une corrélation linéaire donc directe entre variation de la fréquence du mode D1 et la concentration en Germanium dans le cœur. De plus, cette variation n'est pas parabolique ce qui permet de mettre en évidence que les variations entre la position du pic D1 et le pourcentage en Germanium ne sont pas corrélés.

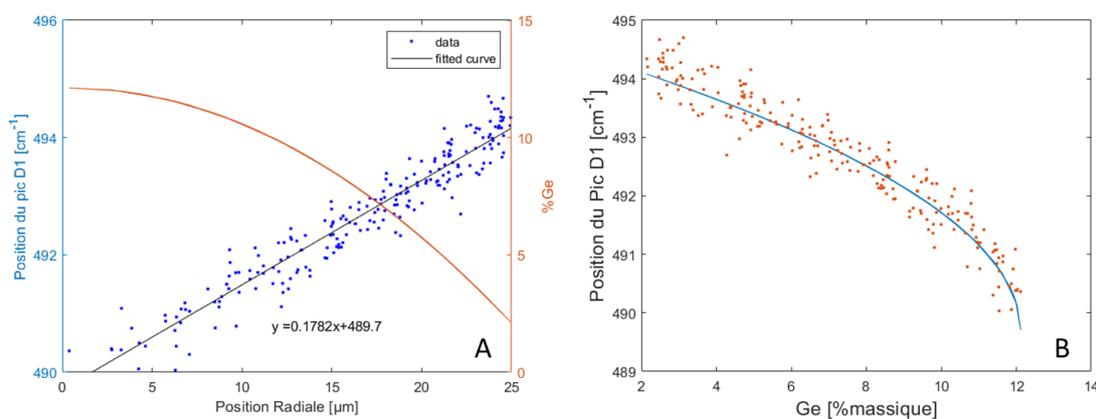


Figure 54 : A. Distribution du pic D1 dans le cœur avec en rouge le fit parabolique de la concentration en Germanium. B. Variation du pic D1 en fonction de la concentration massique en Germanium.

Afin de visualiser l'impact de la concentration en Germanium sur la position du pic D1, nous divisons la position du pic D1 par la concentration en Germanium. Le résultat présent sur la Figure 55 montre que la variation entre D1 et le Germanium n'est pas constante. Cette approche nous permet bien d'affirmer que la variation en fréquence du mode D1 est impactée par un autre facteur et notamment la distribution de température fictive dans la fibre comme l'avait souligné C. Martinet dans la gaine composée de silice dans une fibre monomode [Martinet 2008].

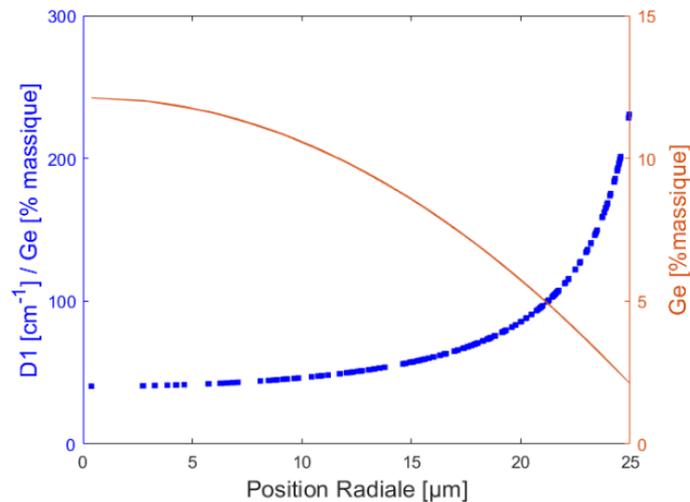


Figure 55 : Relation entre le résultat de la division du pic D1 sur la concentration en Germanium dans le rayon du cœur de la fibre.

La suite des analyses Raman pour la reconstruction des images 2D sera réalisée par approche multivariée non supervisée, dans notre cas par Analyse en Composantes Principales (ACP) et nous permettra ainsi de rendre compte de la variation de la position et de l'intensité du mode D1 que nous corrèlerons à la distribution de température fictive d'un point de vue relatif. Ces points seront détaillés dans le paragraphe suivant.

### III.2. Caractérisation de la structure locale des fibres

Comme détaillé dans le Chapitre 1, il est bien connu que la structure locale de la silice est déterminée par l'histoire thermique du verre [Tool 1946]. La température fictive est la température à laquelle la structure liquide est figée lors de la trempe et dépend donc de paramètre physique comme la vitesse de trempe qui va impacter la vitesse de refroidissement. Ce paramètre permet alors de mettre en évidence le désordre local de la structure vitreuse. Une revue détaillée de M.Lancry [Lancry 2012] donne un aperçu de la façon dont la température fictive peut être mise en évidence avec des fibres optiques à base de silice.

#### III.2.1. Principe de l'analyse Raman (composantes principales)

L'Analyse en Composantes Principales (ACP) est une technique d'analyse statistique qui est couramment utilisée pour explorer et réduire la dimensionnalité des données multivariées. L'objectif principal de l'ACP est de transformer un ensemble de données potentiellement complexe en un ensemble de variables linéairement non corrélées appelées composantes principales, de telle sorte que la variance des données soit maximisée le long de ces nouvelles dimensions. La signature vibrationnelle des matériaux amorphes, dû au désordre local est composée de modes larges complexes à analyser. L'ACP permet de réduire la dimensionnalité tout en préservant autant que possible l'information contenue dans

les données d'origine. La première étape de l'ACP est celle de pré-traitements que nous avons réalisés précédemment (suppression des pics cosmiques, la soustraction de la ligne de base, normalisation sur l'air). Ensuite, l'ACP s'effectue en différentes étapes listées ci-dessous :

**Standardisation des données :** Pour que l'ACP soit efficace, il est généralement recommandé de standardiser les données, en les centrant autour d'une valeur zéro (soustraction de la valeur moyenne)

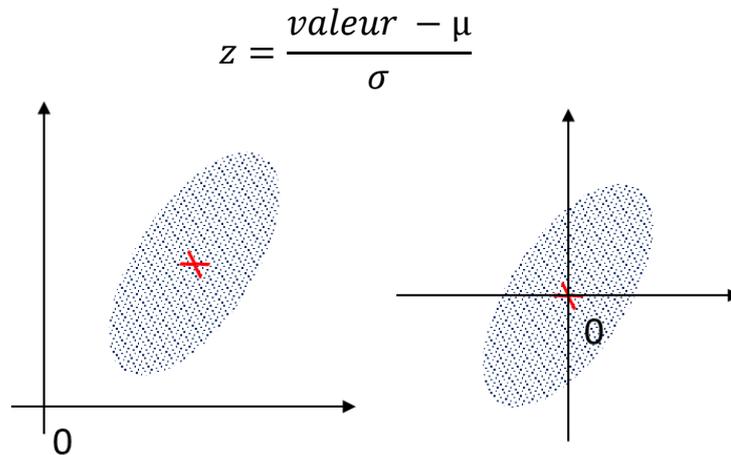


Figure 56 : Schémas de centrage des données.

**Calcul de la matrice de covariance :** L'étape suivante consiste à calculer la matrice de covariance des données. Cette matrice quantifie les relations linéaires entre les différentes variables.

$$\text{cov}(X, Y) = \frac{1}{n} \sum (X_i - \bar{X})(Y_i - \bar{Y})^T$$

**Calcul des composantes principales :** Les composantes principales sont calculées à partir de la matrice de covariance. La première composante principale représente la plus grande variance des données, la deuxième composante principale représente la deuxième plus grande variance, et ainsi de suite. Les composantes principales sont des combinaisons linéaires des variables d'origine.

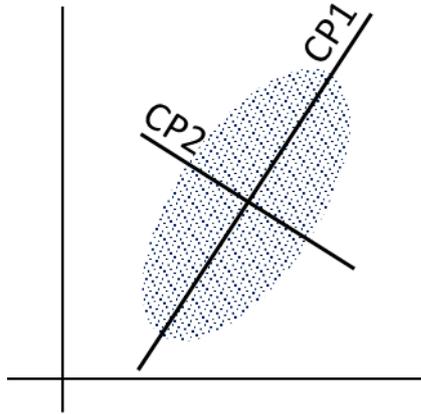


Figure 57 : schémas de principe du calcul des valeurs propres [Pearson 1901].

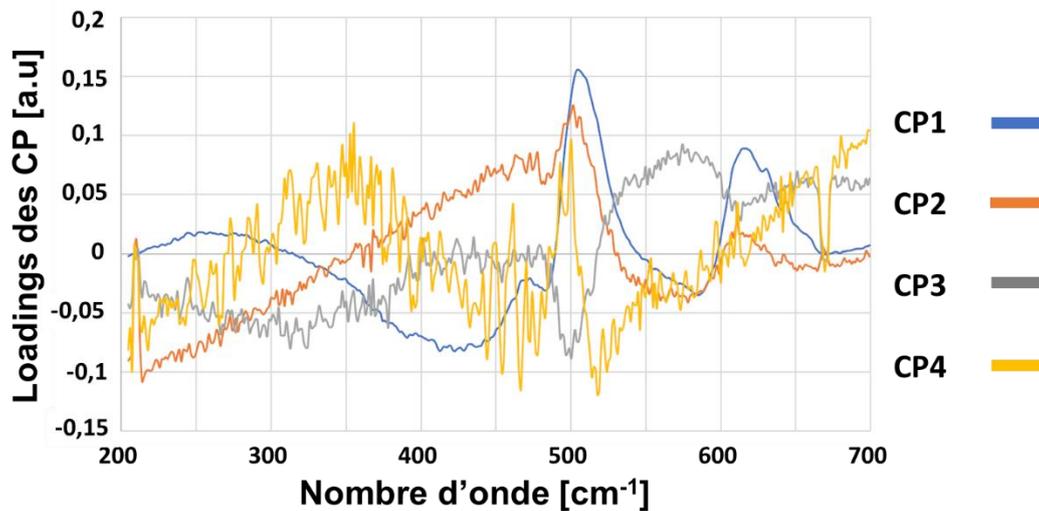
**Sélection des composantes principales** : Selon l'objectif de l'analyse, nous pouvons choisir de conserver un nombre spécifique de composantes principales qui utilise la majeure partie de la variance (par exemple, 99 % de la variance totale). Cela permet de réduire la dimensionnalité des données tout en préservant l'information essentielle. Comme les variations  $\Delta$  que nous cherchons sont faibles nous avons sélectionné 99,9% des données.

**Interprétation des composantes principales** : Les composantes principales peuvent être interprétées en examinant les coefficients (poids) attribués à chaque variable d'origine dans chaque composante. Ces composantes principales sont représentées par des « loadings » qui représentent les poids attribués à chaque variable dans la construction des composantes principales lors de la transformation des données d'origine. Ces coefficients déterminent l'importance de chaque variable dans la formation de chaque composante principale et permettent ainsi d'interpréter les relations entre les variables et les composantes principales. Cela permet de comprendre quelles variables contribuent le plus à chaque composante principale et de donner un sens aux dimensions extraites.

**Projection des données** : Une fois que les composantes principales sont calculées, nous pouvons projeter les données d'origine dans l'espace des composantes principales. Cela permet de représenter les données dans un espace de dimension réduite. Cette étape nous permet de reconstruire des images 2D sur chacune des composantes principales et les contrastes de couleurs correspondent aux scores de chacune des variables de la composante principale. Elle permet de représenter graphiquement les relations entre les échantillons et les variables, ce qui facilite la compréhension et l'interprétation des données.

### III.2.2. Analyse de la structure locale de la silice par spectroscopie Raman (D1 et D2)

L'analyse en composantes principales réalisée sur les fibres optiques fait ressortir pour toutes les fibres optiques étudiées quatre composantes principales semblables représentées à titre d'exemple par la Figure 58. Pour la fibre Alcatel 50/125, la première composante CP1 (en bleu) avec une variance de 69,39%, représente la variation des modes D1 et D2 dans la section de la fibre. Cette variation ne semble pas être similaire sur le mode principal. La seconde composante CP2 (en orange) semble corrélérer la variation des trois modes, cependant, cette variation est nettement plus faible que pour la CP1 avec un pourcentage de variance de 3,37%. Concernant les composantes CP3 et CP4 avec une variance respective de 1,21% et 0,65% (en gris et jaune), nous ne discuterons pas leur attribution dans ce manuscrit.



Fibre	CP1 (% de variance)	CP2 (% de variance)	CP3 (% de variance)	CP4 (% de variance)
Alcatel 50/125	69,39	3,37	1,21	0,65
Thorlabs 62,5/125	80,84	3,28	1,37	0,33
Thorlabs 50/125	65,57	4,25	1,07	0,89

Figure 58 : Représentation des loadings définis par l'ACP avec le tableau récapitulatif des pourcentages de variances des différentes composantes principales pour les trois fibres optiques étudiées.

Grâce à la littérature, nous savons que l'aire et la position du mode D1 et D2 peuvent permettre de déterminer la température fictive de la silice (voir Chapitre 1.2.5). La CP1 permet de visualiser que la variation de ces deux modes est corrélée et varie de manière anti corrélée du massif large. Grâce à l'analyse multivarié, nous pouvons alors considérer que la CP1 peut nous permettre de visualiser la variation de la température fictive dans la section de la fibre.

Cette analyse est réalisée sur les fibres avant et après poling. Les loadings seront alors comparés de manière relative comme le montre la Figure 59. Cette composante représente 69,39% de la variance expliquée pour la fibre Alcatel Vierge, 65,57% pour la Thorlabs 50/125 et 80,84% pour la fibre Thorlabs

62,5/125. Un spectre Raman typique d'un verre SiO<sub>2</sub> dopé au Ge est ajouté en bleu pour une meilleure compréhension.

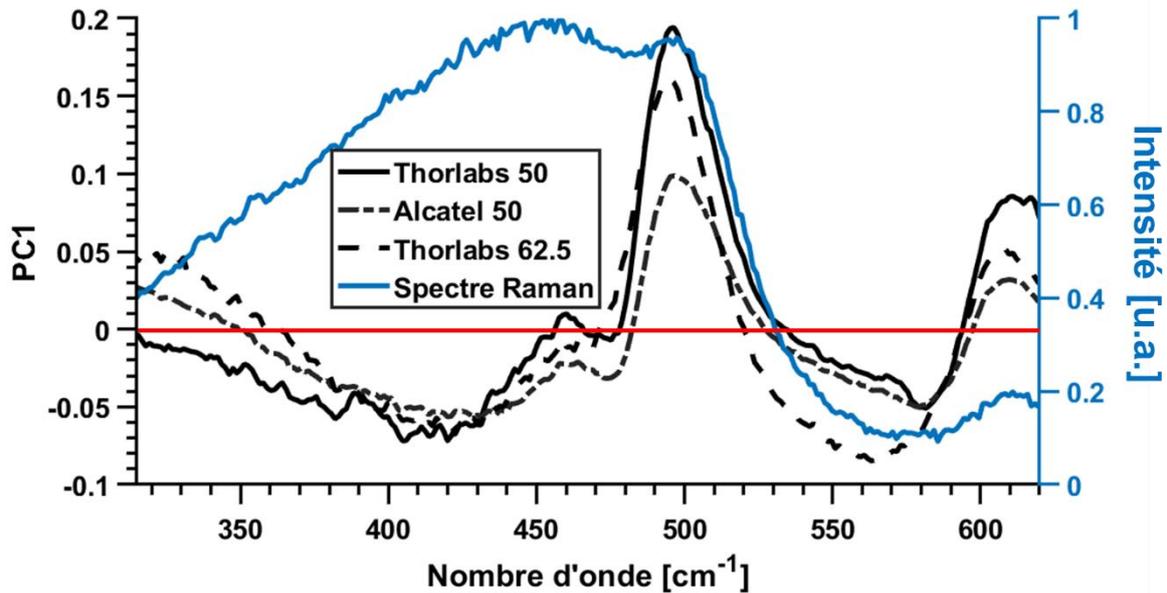


Figure 59 : Composante principale des différentes fibres corrélée à la distribution de la température fictive. En bleu, le spectre Raman de la silice dans le centre de la fibre Alcatel est rappelé.

Chaque composante principale montre une forte variation des pics D1 et D2. Cependant, nous remarquons une variation différente principalement liée à l'intensité entre les trois fibres. Rigoureusement, les données n'ayant pas été concaténées, les intensités des loadings ne peuvent pas être comparées, mais nous permettent de voir que les mêmes gammes de fréquence sont bien corrélées aux mêmes composantes. Afin de quantifier la variation des pics D1 et D2 pour les trois fibres, notre choix s'est porté sur le pourcentage d'écart entre la valeur moyenne de la gaine et du centre du cœur visible dans les scores présentés dans la Figure 60. Nous prenons la valeur du score de la 1<sup>ère</sup> composante principale du bord du cœur comme étant notre 100% et nous calculons ensuite l'écart relatif entre le centre du cœur et son bord. Nous faisons ensuite l'hypothèse simple d'une relation linéaire existant entre la variation relative des valeurs des scores et la variation relative de la température fictive. Ceci nous permet donc d'obtenir déjà une première information relative sur la distribution de température fictive fibre par fibre, qui pourra si besoin être affinée et améliorée dans le futur.

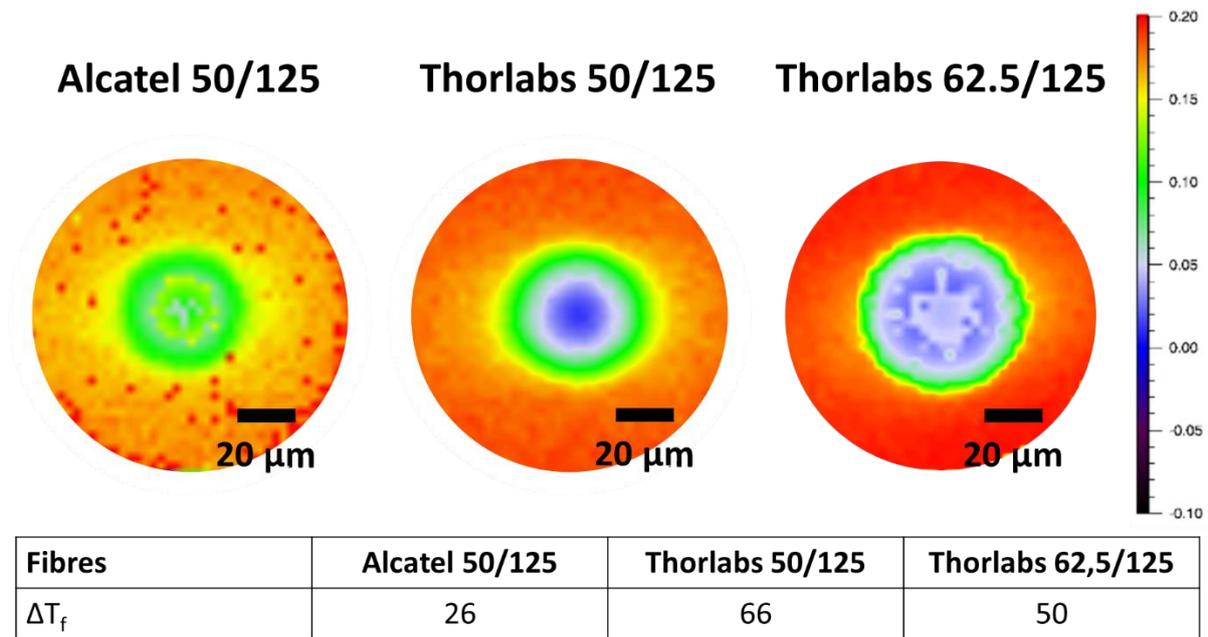


Figure 60 : Cartes 2D des scores de la CPI montrant la structure locale dans les fibres avant poling avec un tableau regroupant l'écart de  $T_f$  entre le bord du cœur et son centre en pourcentage.

La structure locale des fibres dans leur cœur est hétérogène. En normalisant les échelles de contraste de couleur, nous remarquons, une représentation de l'écart de  $T_f$  entre le centre du cœur et son bord est très fort dans la fibre Thorlabs 50/125 avec un  $\Delta T_f$  de 66% (représenté en bleu). La fibre Alcatel 50/125 est celle dont la structure locale est la plus proche de celle du bord de son cœur représentant la  $T_f$  la plus élevée avec un  $\Delta T_f$  faible de 26%. La fibre Thorlabs 62,5/125 est celle avec une valeur de  $T_f$  intermédiaire avec un  $\Delta T_f$  de 50%.

Une première remarque peut être faite pour chercher à corréler cette approche structurale conduite sur les fibres vierges à leur aptitude plus ou moins grande à générer un signal de seconde harmonique. En effet, cette distribution de  $T_f$  entre ces fibres semble être corrélée à l'aptitude de ces fibres au poling à savoir qu'il semble que la fibre ayant le plus grand  $\Delta T_f$  corresponde à la fibre Thorlabs 50/125 qui n'a pas pu être polée, le  $\Delta T_f$  intermédiaire est celui qui correspond à la fibre qui a été polée mais a généré une faible conversion alors que la fibre avec le  $\Delta T_f$  le plus faible est celui qui correspond à la fibre présentant le meilleur taux de conversion.

Une deuxième étape consiste alors à suivre l'évolution de la structure locale après poling dans les différentes fibres.

### III.2.3. Comparaison de la structure locale avant et après poling

De manière similaire, une comparaison de la structure locale entre les fibres avant et après le poling est effectuée. La Figure 61 illustre la comparaison entre composantes des fibres vierges et polées. Les pourcentages de variances de ces nouveaux loadings de la CPI sont de 53.6% pour la fibre Alcatel 50/125, 66.4% pour la fibre Thorlabs 50/125 et 82.3% pour la fibre Thorlabs 62.5/125. Toutes les fibres

polées tendent vers la composante de la fibre Thorlabs 50/125 avant poling, ce qui semble suggérer que la structure locale de la fibre Thorlabs 50/125 est déjà « stable ». Ainsi, la structure de cette fibre Thorlabs ne peut pas être modifiée lors de l'étape de poling.

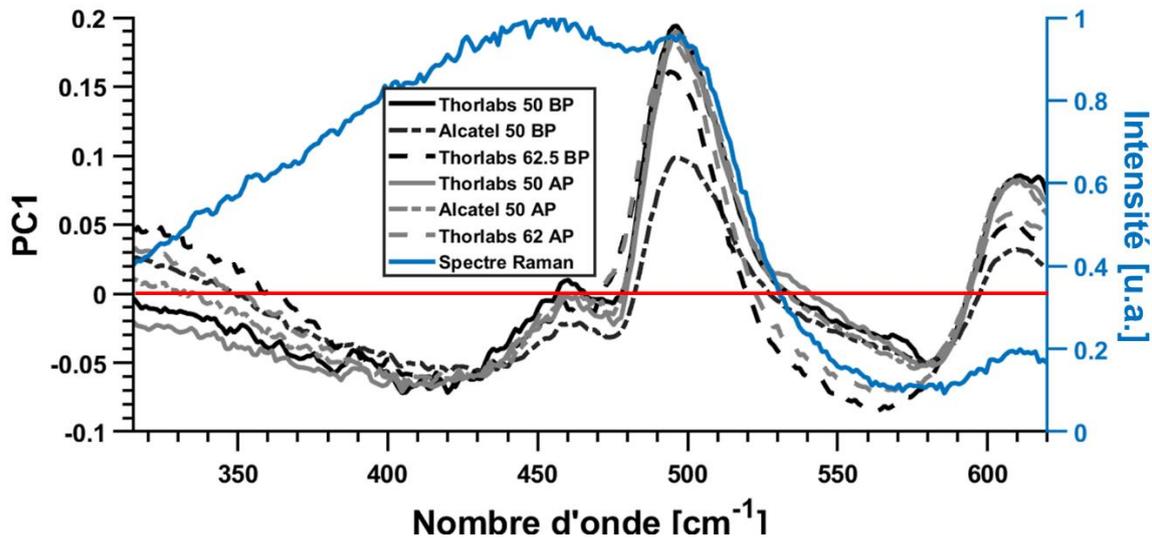
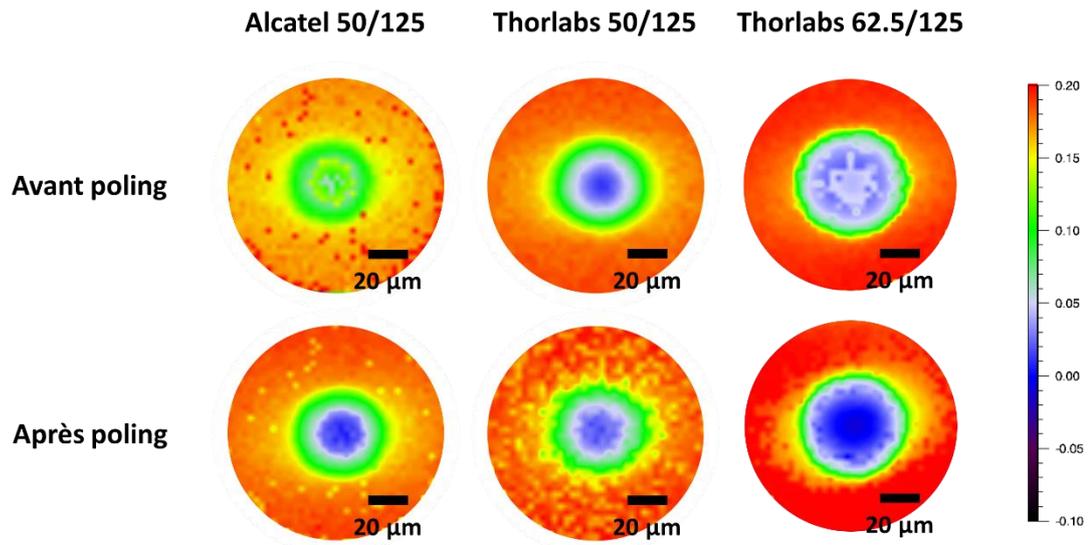


Figure 61 : loadings des composantes principales 1 des fibres avant (V : vierge) et après (P : polée) poling. En bleu, un exemple de spectre Raman de la silice dans le centre de la fibre Alcatel est rappelé.

La Figure 62 compare les cartes des scores des composantes 1 des fibres avant et après poling. Ainsi, la fibre Alcatel 50/125, qui présente l'amplitude de la SH la plus élevée, montre une forte variation d'intensité du score dans le cœur après poling. La fibre Thorlabs 50/125 après poling ne montre pas de modification de la variation de contraste d'intensité significative par rapport à la structure avant poling, ce qui reflète bien que la structure locale du cœur d'une telle fibre ne soit quasiment pas modifiée lors de l'étape de poling. La fibre Thorlabs 62,5/125 a une variation de la structure locale intermédiaire, ce qui est cohérent avec la puissance moyenne de la SH obtenue durant la séance de poling. Ces modifications de la structure locale dans ces trois fibres permettent de déduire un nouveau  $\Delta T_f$ . La fibre Alcatel 50/125, la fibre Thorlabs 50/125 ainsi que la fibre Thorlabs 62,5/125 obtiennent respectivement un  $\Delta T_f$  de 64%, 67% et 68%.

Les structures locales des fibres après poling convergent vers des valeurs de  $\Delta T_f$  similaires, soulignant un état structural final du cœur des fibres MMGRIN proche d'une structure locale stabilisée que l'on qualifierait de recuite en terme verrier.

Le contraste entre le centre du cœur et le bord du cœur expliquerait donc la capacité de la fibre Alcatel à générer plus de SH. Pour la fibre Thorlabs 50/125 avant poling, le contraste d'intensité serait trop important et ne permettrait pas de générer la SH dans le temps.



Fibres	Alcatel 50/125	Thorlabs 50/125	Thorlabs 62,5/125
$\Delta T_f$ avant poling (%)	26	66	50
$\Delta T_f$ après poling (%)	64	67	68

Figure 62 : carte des scores des CP1 des fibres avant et après poling. Détermination de l'écart de  $T_f$  entre le bord du cœur et son centre en pourcentage avant et après poling.

Lorsque nous déterminons l'évolution de la structure locale en fonction du rayon dans la Figure 63, nous remarquons une diminution faible et linéaire du score de la CP1 dans la gaine et une forte dispersion des données au centre du cœur sur les fibres avant poling (représenté par les courbes rouges sur les graphiques). Après poling, nous visualisons très clairement un nettoyage structural du cœur (représenté par les courbes bleues sur les graphiques) donnant un lissage du profil comme visible dans les cercles noirs de la Figure 63. Cette modification du profil est liée aux réarrangements des anneaux au centre de la fibre pour les deux fibres qui ont pu être polées permettant une réorganisation plus stable de la structure locale. Pour la fibre Thorlabs 50/125, nous remarquons aucune amélioration avant et après poling montrant que la structure n'est pas relaxée. Une diminution progressive de la  $T_f$  est visible dans la gaine de toutes les fibres mesurées représentant le gradient de température entre les parties externe et interne de la gaine, lors du tirage de la fibre dans de la silice pure.

Cette projection montre également la différence de la variation de la distribution des données entre le cœur et la gaine révélant probablement un impact du Germanium sur la CP1 ou de la technique de fabrication de la préforme, la gaine n'étant pas nécessairement réalisée en même temps que le cœur. La distribution des données met en évidence la présence d'un profil se rapprochant du profil parabolique du Germanium. Cependant, grâce à la visualisation de la présence d'un désordre structural au centre des fibres Alcatel 50/125 et Thorlabs 62,5/125, nous pouvons certifier que la CP1 met en évidence également la température fictive.

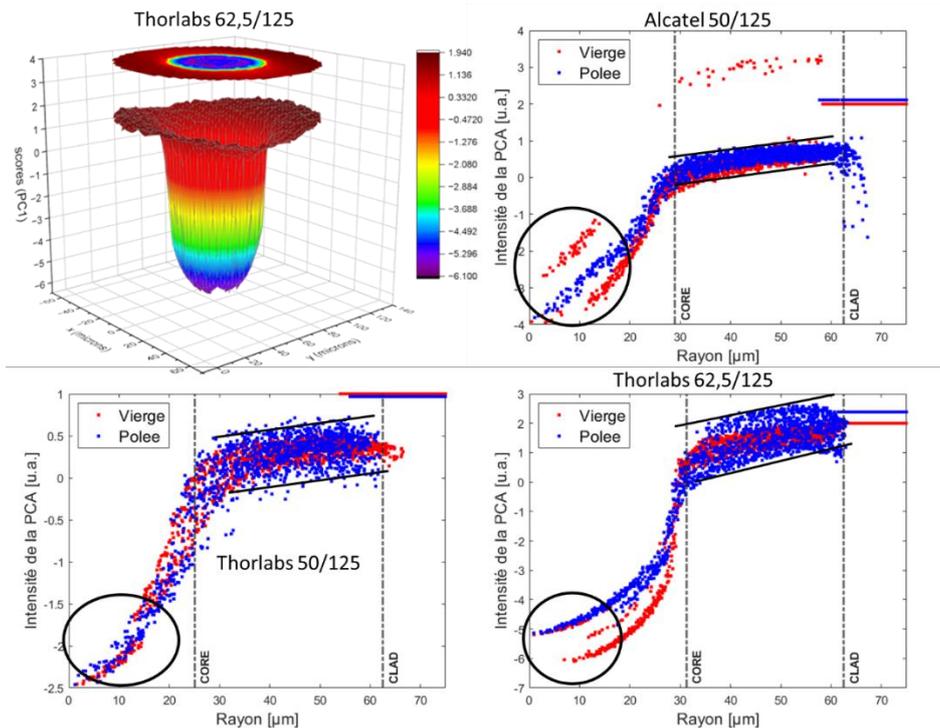


Figure 63 : Relation entre le score des fibres avant et après poling et la position radiale

### III.2.4. Rôle de la température fictive lors du processus de fibrage sur l'aptitude de la fibre à être sensible au processus de poling

Dans la partie précédente, nous avons montré que la distribution de la  $T_f$  d'une fibre serait à l'origine de l'aptitude d'une fibre à générer de la SH par poling optique. Cette hypothèse est à notre connaissance totalement inédite. D'après la littérature, présentée au Chapitre 1, les charges issues du Germanium seraient le seul facteur permettant une génération de la seconde harmonique. Le travail exploratoire mené ici montre donc qu'une température fictive dans le cœur se rapprochant de celle de la gaine représentant une température fictive élevée et donc une structure avec un état peu stable (voir Chapitre 1.2.1) serait un point clé sur la capacité de la fibre à générer de la SH grâce à un effet de recuit lors du passage du laser.

Nous avons également regardé la qualité de l'inscription en fonction du temps, comme le montre la Figure 64. La qualité de l'inscription dépend du temps que la SH met à atteindre son maximum d'intensité. Pour cela, la structure est essentielle pour la création de l'inscription. Grâce à une structure similaire entre le bord et le centre du cœur, la fibre Alcatel 50/125 met un temps important à se stabiliser lors de l'expérimentation de poling optique (165 min) permettant à l'inscription de se mettre en place pour générer une SH efficace. La fibre Thorlabs 50/125, lors de sa création, se forme avec une structure possédant une stabilité ne permettant pas la création de l'inscription. La fibre Thorlabs 62,5/125 possède une structure locale intermédiaire permettant de créer une inscription sur un temps moins important (100 min) engendrant une conversion de fréquence moins important que la fibre Alcatel. La fibre Thorlabs

50/125 ayant une structure locale trop stable, l'inscription ne peut pas se faire. Ces résultats montrent qu'une température fictive élevée engendre une forte conversion en seconde harmonique.

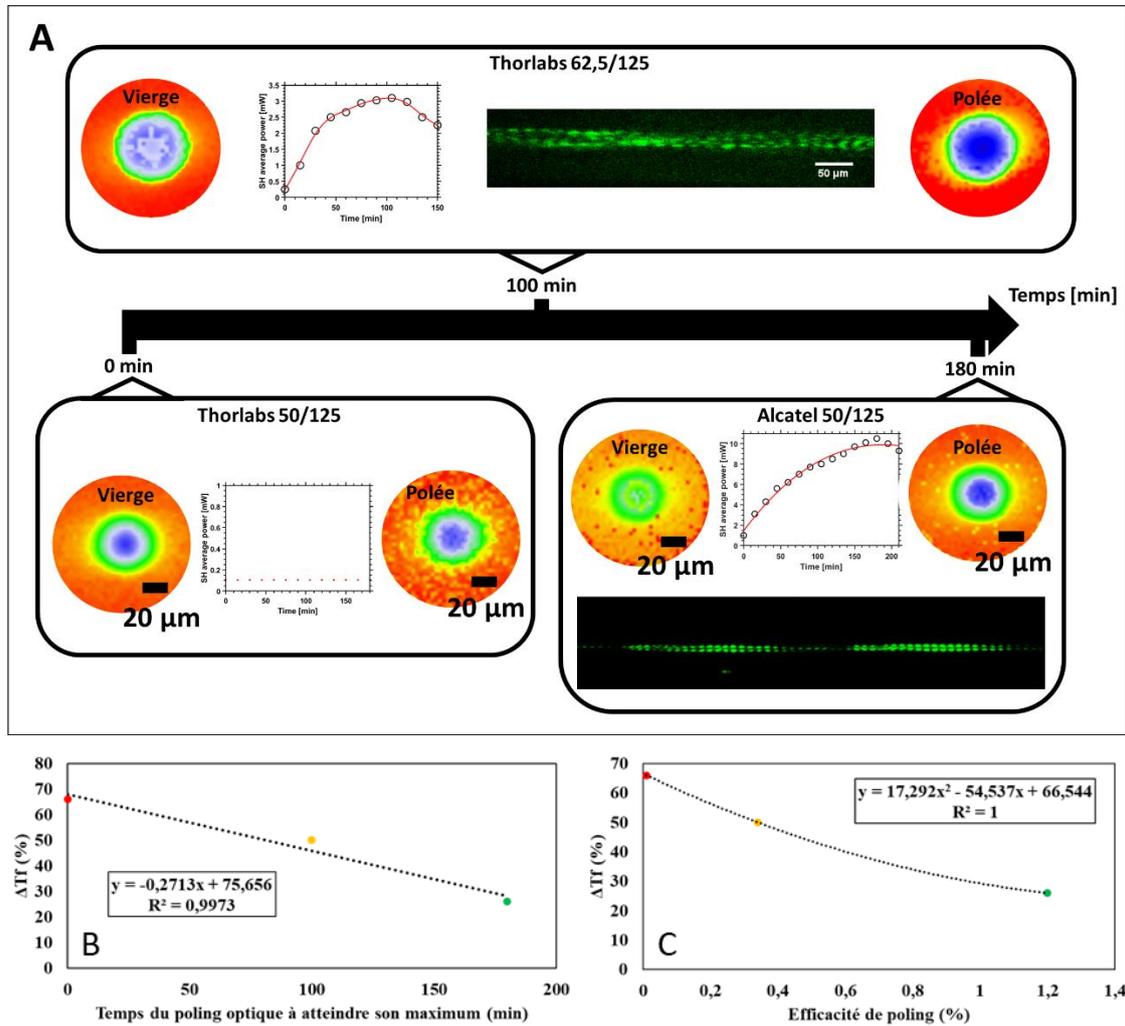


Figure 64 : A. Relation entre la structure locale des fibres optiques avec le temps au poling optique à atteindre son maximum de conversion.

B. Relation entre l'écart de  $T_f$  cœur/gaine et la durée du poling optique.

C. Ecart de  $T_f$  entre le cœur et la gaine en fonction du pourcentage de conversion du poling optique.

Nous remarquons une tendance entre le delta de température fictive présent dans les fibres vierges et leurs capacités à générer la SH. Bien évidemment, ces courbes sont obtenues à partir de seulement 3 points, ce qui est très loin d'être satisfaisant. Il sera donc nécessaire de tester ces courbes de tendance en travaillant sur d'autres fibres qui présenteront des histoires thermiques différentes et connues de manière à améliorer la détermination de la loi qui régirait l'efficacité de poling en fonction de la distribution de  $T_f$  de cœur. Néanmoins, grâce à ce début de modèle qui devra être étoffé avec d'autres échantillons afin de le valider, nous pouvons établir une courbe prédictive permettant de déterminer l'aptitude de conversion du signal  $\chi^{(2)}$  ou de déterminer la structure d'une fibre grâce au temps établi lors d'une séance de poling à atteindre son maximum de conversion. Cette technique nous permet d'avoir des valeurs relatives de la température fictive mais ne permet pas d'avoir une valeur absolue. La partie suivante va tenter de répondre à cette problématique.

### III.2.5. Détermination de la $T_f$ « absolue » par spectroscopie IR

Comme précisé dans le chapitre 1, d'après la littérature, la spectroscopie infrarouge par réflexion est généralement utilisée pour déterminer la température fictive d'un verre de silice grâce à la position du pic principale du spectre de silice.

Nous avons réalisé des cartographies 2D en imagerie infrarouge sur les trois fibres MMGRIN, ainsi que sur un échantillon de la fibre Alcatel polée. Les quatre acquisitions sont réalisées sur l'ensemble de la section des fibres. Les spectres de 850 à 3900  $\text{cm}^{-1}$ , présentés sur la Figure 65, sont enregistrés en mode point sur une surface d'environ 127  $\mu\text{m}$  par 127  $\mu\text{m}$  avec un pas de 1  $\mu\text{m}$  ce qui représente des jeux de données comprenant plus de 16129 spectres.

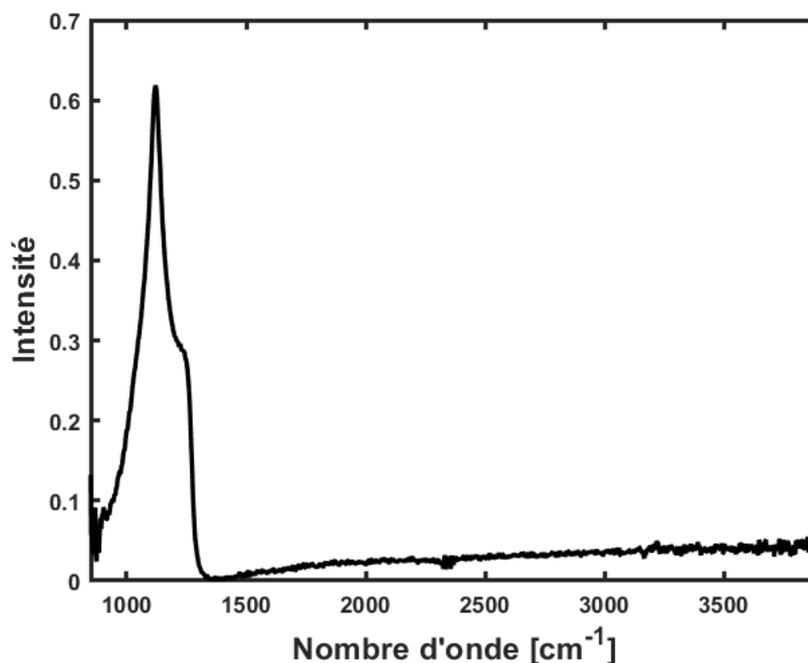


Figure 65 : Spectre brut Infrarouge acquis sur une fibre de silice.

Dans un premier temps, nous devons récupérer avec le maximum de précision la position du maximum d'amplitude de chaque spectre. Pour cela, l'utilisation du fit par une fonction de type Lorentzienne est choisie sur un spectre tronqué dont la plage spectrale est de 900 à 1300  $\text{cm}^{-1}$ . Chaque position du maximum du fit est récupérée, nous pouvons alors tracer l'évolution de la fréquence du mode principal radialement pour les différentes fibres comme présenté dans la Figure 66.

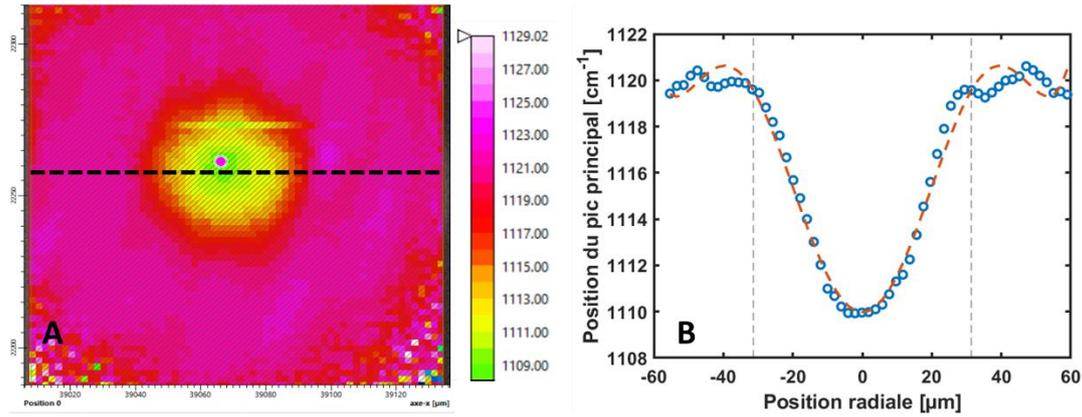


Figure 66 : A. Cartographie 2D représentant la distribution de la position du pic principale de la silice dans la face d'entrée de la fibre. B. Représentation de l'évolution de la position du pic principal du spectre infrarouge dans le diamètre de la fibre Thorlabs 62,5/125 avec un fit polynomial d'ordre 3 (en rouge).

Pour les fibres ayant la même concentration en germanium le pic se situent aux environs de  $1114 \text{ cm}^{-1}$ . La fibre Thorlabs 62,5 a une position spectrale dans le centre de la fibre à  $1110 \text{ cm}^{-1}$ . Cette différence de fréquence est due aux concentrations en germanium comme représenté dans la Figure 67. Nous remarquons également que dans la gaine la valeur est de  $1120 \text{ cm}^{-1}$  et semble identique pour les trois fibres.

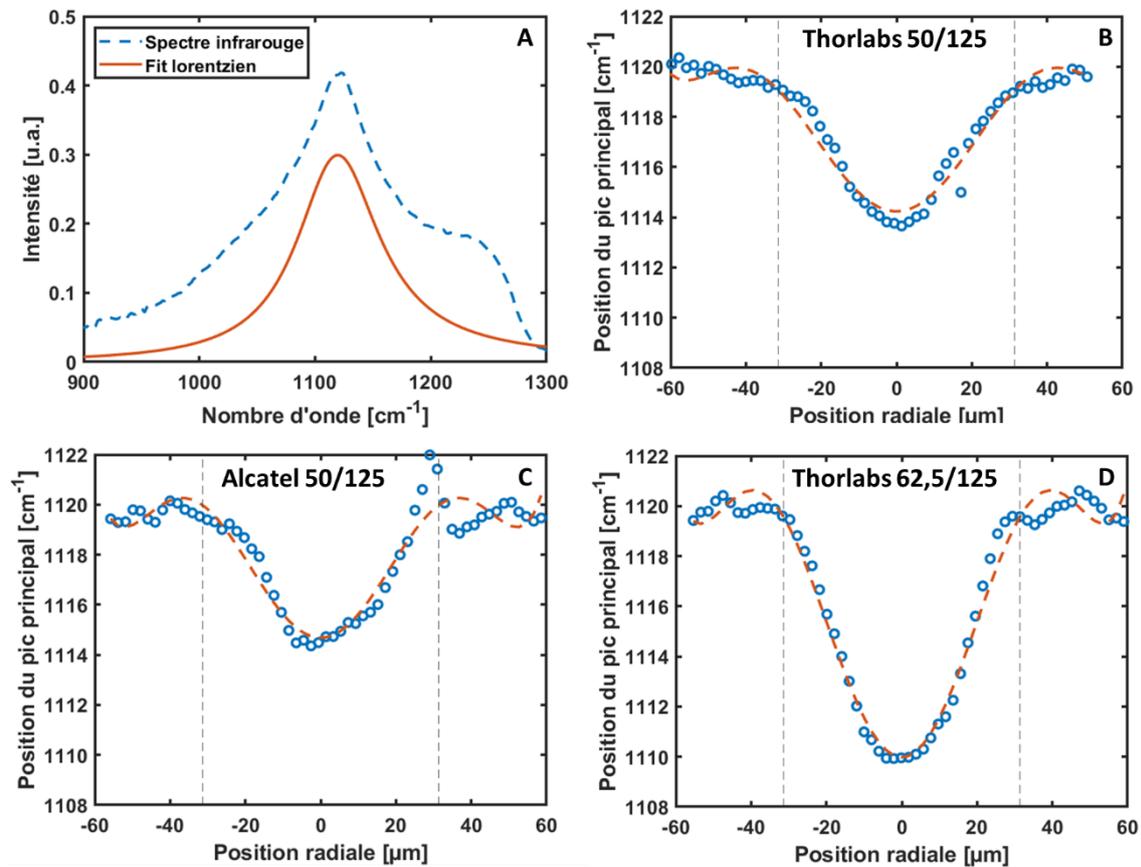


Figure 67 : Répartition radiale de la position du pic principale de la silice dans les fibres MMGRIN, A. Exemple de fit lorentzien le spectre central de la fibre Alcatel. B. Position du Pic de la silice dans le diamètre de la fibre Thorlabs 50/125. C. Position du Pic de la silice dans le diamètre de la fibre Alcatel 50/125. D. Position du Pic de la silice dans le diamètre de la fibre Thorlabs 62,5/125

La position des pics des différentes fibres a permis de démontrer l'impact du Germanium sur la position du pic IR principal des spectres de la silice. La Figure 68 représente l'évolution radiale de la fréquence du mode aux environs de  $1120 \text{ cm}^{-1}$  pour les fibres Alcatel vierge et polée. Il semble qu'aucune variation de fréquence ne soit observée après l'étape de poling optique, alors que les caractérisations conduites par spectroscopie Raman avaient révélé des modifications structurales notables. Une raison qui pourrait peut-être expliquer cette similitude serait l'emplacement de la clive par rapport à l'inscription de la non linéarité d'ordre deux. L'inscription étant périodique, une clive effectuée où l'intensité de l'inscription serait la plus basse pourrait alors se rapprocher de la valeur initiale de la fibre vierge. Cependant, à la vue des similitudes des mesures entre la fibre Thorlabs 50/125 et la fibre Alcatel 50/125 ayant été créés avec des procédures, à des époques et par des constructeurs différents, nous pouvons établir qu'une potentielle variation est dissimulée par la concentration en Germanium qui modifie de façon trop importante la position de ce mode [Lancry 2012].

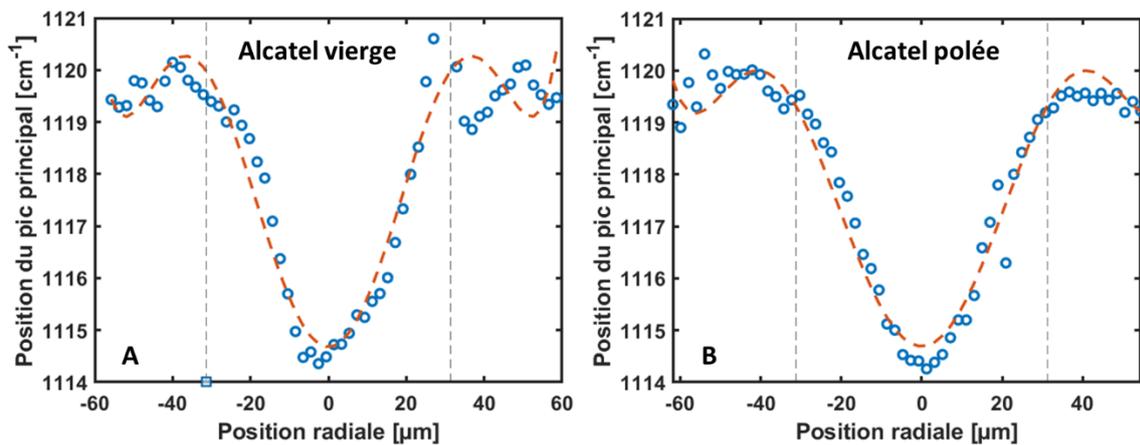


Figure 68 : Comparaison entre la distribution radiale du pic principal de la silice de la fibre Alcatel avant et après poling

Dans ces travaux M. Lancry (Chapitre 1 (Partie 1.2)) [Lancry 2018] a proposé une équation permettant de déterminer la valeur de la température fictive d'une fibre en fonction de la concentration en Germanium. En utilisant les données EDX du pourcentage en Germanium et les données IR nous pouvons donc en théorie déterminer la valeur de la  $T_f$  dans le diamètre de chaque fibre.

$$T_f(r) = \frac{A(\text{Ge}) - \sigma(r)}{B} = \frac{1129.8 - 0.469 \cdot [\text{Ge}](r) - \sigma(r)}{0.0102}$$

La Figure 69A montre les différentes valeurs de  $T_f$  pour les trois fibres. La forme de « moustache » est semblable aux résultats présentés par M. Lancry pour les fibres à saut d'indice. Cependant, la  $T_f$  calculée est bien trop faible pour un verre de silice signifiant que l'équation utilisée n'est pas adaptée pour nos fibres et ne peut donc pas être généralisée. En effet, la valeur calculée de la

$T_f$  est aux alentours de 1050 K donnant une valeur en degré trop basse. Les valeurs attendues devraient plutôt être comprise entre de 1000 à 1400 °C comme a pu retrouver par exemple M. Lancry dans son article [Lancry 2012]. Lorsque l'on met en lien la concentration en Germanium et la position du pic nous remarquons une évolution non linéaire lorsque la concentration en Germanium est faible. Cette différence avec la courbe linéaire de M. Lancry pourrait être une des causes de la valeur basse de la  $T_f$ .

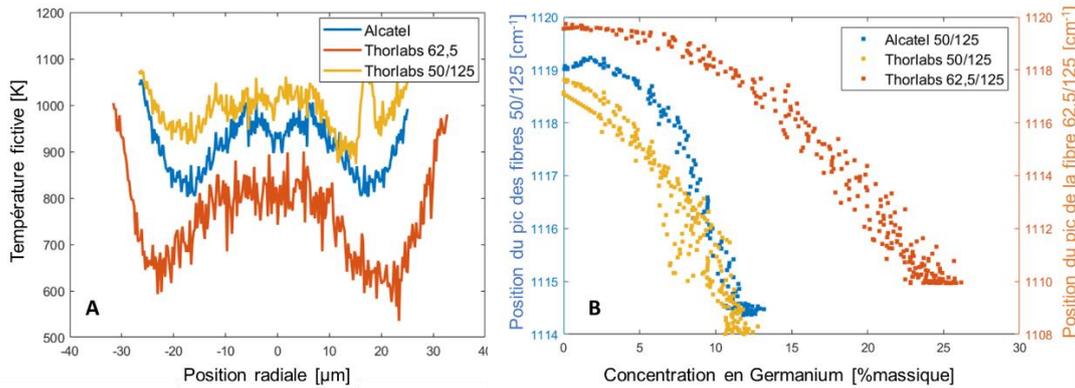


Figure 69 : A. Relation entre la position radiale de la fibre et la température fictive B. Relation entre le pic de la silice et la concentration en germanium.

Il semble que dans le cas d'une fibre MMGRIN la détermination de la  $T_f$  par imagerie infrarouge n'est pas envisageable en utilisant les lois empiriques proposées dans la littérature. Il serait donc nécessaire pour déterminer une valeur absolue de température fictive de réaliser notre propre courbe étalon de manière à obtenir notre propre loi empirique.

### III.2.6. Conclusion

Dans ce chapitre, pour la première fois, un lien entre la structure locale de la silice et l'aptitude à générer du poling optique dans une fibre MMGRIN a été démontré. En effet, une corrélation entre la variation relative de la  $T_f$  dans le cœur de la fibre et le pourcentage de conversion existe. Cette relation a permis de générer l'équation empirique suivante :

$$\Delta T_f = 17,292P_{SH}^2 - 54,537P_{SH} + 66,544$$

Avec  $P_{SH}$ , le pourcentage de conversion du poling optique. De plus, une relation linéaire est mise en évidence lorsque l'on compare le  $\Delta T_f$  avec le temps que met la SH à atteindre son maximum de conversion lors des séances de poling, dont la relation est la suivante :

$$\Delta T_f = -0,2713t_{SH} + 75,656$$

Avec  $t_{SH}$  représentant le temps que met la fibre à générer le maximum de SH. Avec ces deux équations empiriques, nous pouvons penser que la structure idéale pour le cœur de la fibre pour générer le maximum de poling optique serait de se rapprocher de la structure locale présente dans la gaine en créant des fibres à forte température fictive dans le cœur. Nous pouvons, grâce à la fibre Thorlabs 50/125 déterminer une valeur relative seuil qui montre une structure locale déjà stabilisée et donc peu ou pas modifiée par la suite avec la puissance crête utilisée.

L'analyse en composantes principales a également mis en évidence le fait que le poling optique réarrangerait la distribution de l'intensité du D1 et du D2 dans le cœur de la fibre, ce qui traduit la variation de température lors du refroidissement de la fibre qui est différent dans le cœur et dans la gaine.

Grâce à l'étude effectuée sur la  $T_f$  par spectroscopie Raman et infrarouge, nous pouvons conclure que l'analyse Raman serait plus adaptée pour visualiser la variation de  $T_f$  dans les MMGRIN. La microscopie infrarouge est une technique fiable et de nombreuses fois utilisée pour déterminer une valeur absolue de  $T_f$  grâce à une équation empirique. Nous pouvons envisager de réaliser notre propre équation dans le futur pour ainsi déterminer les distributions de températures fictives absolues optimales pour générer des phénomènes non linéaires.

Ce raisonnement mène à une nouvelle hypothèse sur les paramètres régissant l'aptitude d'une fibre à être polée et donc sur l'impact de la structure du matériau sur son aptitude à produire de nouveaux phénomènes d'optique non linéaire et donc de nouvelles composantes fréquentielles,

Afin de compléter la relation entre la température fictive et l'efficacité de conversion de la seconde harmonique par poling optique, deux jeux d'échantillons de MMGRIN de 50/125 avec un  $\Delta n$  de 0,015 et une concentration en Germanium de 3,5% molaire ont été fabriqués avec des paramètres de tirages différentes. Trois paramètres sont contrôlés :

- la température du four
- la vitesse de fibrage
- la tension

Le premier jeu d'échantillons contient 5 fibres avec une température de four fixe à 2080°C et une vitesse de fibrage spécifique allant de 0,4 à 1,6 mm/min. Ces fibres permettront de déterminer l'impact de la vitesse de fibrage sur la température fictive.

Le second jeu d'échantillon contient 5 fibres avec une vitesse de fibrage de 1,32 mm/min et une température de four variable allant de 2020 à 2100°C. Ces fibres permettront de déterminer l'impact de la température du four sur la température fictive.

La tension est ajustée afin de contrôler le diamètre des fibres créées et le garder constant. La multiplicité des données devraient nous permettre d'aller vers la construction d'un modèle beaucoup plus robuste.

## Conclusion et Perspectives

---

Les travaux rapportés dans ce manuscrit concernent l'étude de la susceptibilité non linéaire dans les fibres optiques à gradient d'indice et plus particulièrement le phénomène de poling optique permettant la génération de seconde harmonique dans un matériau initialement centro-symétrique. Ce travail commence par l'étude de la méthode de fabrication des fibres optiques à gradient d'indice, de l'étape de la création de la préforme au tirage de la fibre. Afin d'aider à la compréhension l'histoire thermique de la fibre lors du tirage, un rappel sur l'entropie du matériau est mis en œuvre. Des méthodes de caractérisations du matériau sont expliqués comme l'imagerie infrarouge et Raman. Par la suite, un court rappel des bases de l'optique non linéaire en présentant les susceptibilités optiques non linéaires générées dans une fibre optique. Un focus est alors fait sur les deux premiers termes non linéaires et sur les effets qu'ils peuvent engendrer.

Le manuscrit s'attache ensuite à la caractérisation du phénomène du poling optique ainsi que sur les effets non linéaires présents lors des expérimentations. L'objectif original de cette thèse était d'optimiser la conversion du poling dans les fibres multimodes à gradient d'indice. Cependant, un travail supplémentaire est apparu lors de la visualisation d'une différence significative de conversion de la seconde harmonique sur deux fibres commerciales contenant des spécifications identiques, mais issues de deux fournisseurs différents. La fibre de marque Alcatel obtient une efficacité de conversion de 1% de seconde harmonique alors que la fibre créée par Thorlabs ne permet pas du tout le doublage de fréquence. Cette variabilité des efficacités de poling, complètement inattendue de prime abord, a généré une série de caractérisations sur les fibres mettant en exergue l'importance de chacune de leurs étapes de fabrication, à commencer par la création de leurs préformes. Des analyses comme la mesure du gradient d'indice, la mesure du profil parabolique de la concentration en Germanium, sont effectuées. Cette première étude a permis de mettre en évidence un diamètre de cœur et de concentration du dopage identique tout en utilisant une technique de création de la préforme qui se trouve être différente pour les fibres à gradient d'indice. La préforme de la fibre Alcatel 50/125 fut créée par « **Modified Chemical Vapor Deposition** » alors que celles des fibres Thorlabs ont été générées par « **Outside Vapor Deposition** ». L'analyse au microscope électronique à balayage a aussi mis en évidence la présence d'impuretés comme le Phosphore dans les fibres, connu comme permettant de générer du poling optique. En plus de ces analyses de spécifications, une étude longitudinale et transversale sur l'inscription de la susceptibilité non linéaire du second ordre dans les fibres est réalisée mettant en lien l'impact du gradient d'indice et donc de la propagation linéaire sur les périodes de ces inscriptions.

Une partie est aussi consacrée à l'évolution dans le temps des effets non linéaires dans les fibres à gradient d'indice et en particulier des effets non linéaires d'ordre 3. Cette partie montre l'impact du temps et de la longueur de la fibre sur l'augmentation et l'apparition de nouvelles fréquences par effets non linéaires d'ordre 3. Les multiples analyses ont montré une corrélation entre l'inscription d'une susceptibilité d'ordre deux et la manifestation d'effets non linéaires d'ordre 3 exacerbés dans le visible.

Parmi les effets non linéaires d'ordre 3 évoluant dans le temps nous retrouvons le poling optique, les instabilités géométriques paramétriques, les pics Stokes et anti-Stokes et l'autonettoyage Kerr et l'apparition de fréquence dans le bleu et le vert. Grâce aux spécifications des fibres et à la période de l'inscription, un peigne de fréquence peut apparaître à des fréquences précises lorsque la puissance crête de la fréquence fondamentale est suffisamment élevée pour générer un supercontinuum dans l'infrarouge. Cette dernière partie est étayée par des simulations numériques. Ce peigne de fréquence apparaît comme une nouvelle vision de la génération du doublage de fréquence dans le domaine de l'optique guidé. Contrairement aux cristaux non linéaires qui sont très sélectif, l'inscription par poling optique permet un choix plus large sur la fréquence fondamentale initiale.

Le dernier chapitre s'interroge sur la question de l'impact de la structure locale sur la capacité des fibres optiques à générer une amplitude de seconde harmonique plus ou moins importante. Pour cela deux études ont été faites, une première sur la détermination de la valeur absolue de la température fictive par imagerie Infrarouge en s'inspirant du travail réalisé par M. Lancry et M. Tomozawa. Et une nouvelle étude sur les cartographies 2D Raman utilisant l'analyse statistique multivariés pour la variation de la structure locale dans la section des fibres. Dans le cas de l'étude Infrarouge, une variation absolue a pu être déterminé cependant, l'impact du Germanium dans la position spectrale du pic a un impact trop important donnant une température fictive trop basse. De plus, malgré les différentes équations empiriques visibles dans de nombreux articles scientifiques, l'utilisation de celles-ci dans notre cas n'est pas adaptée donnant des valeurs absolues trop basses de températures fictives, et probablement irréalistes. La solution pour utiliser cette méthode qui a prouvée maintes fois son efficacité serait de créer notre propre équation empirique. Dans le cas de l'analyse en composantes principales des données Raman, les fibres ont montré une différence significative de structure locale qui est liée à la différence de température fictive. Cette différence montre qu'une fibre avec un gradient relatif de température fictive faible est plus apte à générer une non linéarité d'ordre 2 plus forte. De plus, cette analyse montre que le poling optique dans le temps améliore le lissage de la structure locale dans le cœur de la fibre. Ce changement de gradient de température fictive agit comme un recuit qui stabiliserait la structure locale vers une température fictive plus basse augmentant l'écart de température fictive entre le cœur et la gaine. Ce gradient après poling se rapproche de la valeur du gradient de la fibre Thorlabs 50/125 qui ne permet pas la génération du poling optique dans cette fibre. Avec cette analyse, nous avons déterminé une corrélation entre la structure locale d'une fibre à gradient d'indice et sa capacité à générer une conversion de seconde harmonique plus efficace : plus l'écart cœur/gaine est faible indiquant une température fictive du cœur élevée plus le poling optique est efficace. Ce résultat a permis la création d'une équation empirique reliant l'écart de la température fictive entre le bord du cœur et son centre avec le pourcentage de conversion de la seconde harmonique. Ces résultats importants et novateurs ont fait l'objet d'un brevet français qui a été validé, nommé : « Fibre optique, dispositif d'amélioration des propriétés non linéaires d'une fibre optique et procédé d'amélioration des propriétés non linéaires d'une fibre optique » dont le numéro de référence est le suivant : FR2207644. Dans le

futur, une amélioration de notre approche relative sur la détermination de la température fictive peut être envisagée en prenant en compte le pic principal Raman de la silice à  $440\text{ cm}^{-1}$ .

Ces avancés ont permis d'étendre cette étude sur la création d'un panel de fibres multimodes à gradient d'indice de  $50\text{ }\mu\text{m}$  de diamètre de cœur et  $125\text{ }\mu\text{m}$  de gaine avec un  $\Delta n = 0,015$  dont les paramètres du fibrage ont été contrôlés pour visualiser leurs impacts sur la température fictive. Deux jeux de données ont été réalisés : un premier lot d'échantillons porte sur l'impact de la vitesse de fibrage allant de  $5$  à  $25\text{ m/min}$  avec un pas de  $5$  en gardant une température de four à  $2080^\circ\text{C}$  et un second lot d'échantillons variant la température du four variant de  $2020$  à  $2100^\circ\text{C}$  avec un pas de  $20^\circ\text{C}$  pour une vitesse de fibrage de  $20\text{ m/min}$ . Ce contrôle sur la température du four et la vitesse du tirage permettra de définir les paramètres optimisés pour créer la fibre parfaite pour la génération de seconde harmonique par poling optique. Cette analyse pourrait également vérifier la stabilisation de la structure locale vers celle de la Thorlabs 50/125 permettant de prendre cette structure comme valeur étalon. Cette approche permettrait ainsi de pouvoir relier la capacité à générer une seconde harmonique avec l'écart entre la structure d'une fibre et la structure stabilisé.

## Références bibliographiques

---

- [Agrawal 2007] G. P. Agrawal, *Nonlinear Fiber Optics* (2007).
- [Agrawal 2019] G. P. Agrawal, *Nonlinear Fiber Optics* (2019).
- [Alessi 2011] A. Alessi, S. Girard, C. Marcandella, M. Cannas, A. Boukenter, et Y. Ouerdane, « Raman investigation of the drawing effects on Ge-doped fibers », *Journal of Non-Crystalline Solids* (2011).
- [Alfano 1989] R. R. Alfano, (Ed.). “The supercontinuum laser source.” (1989).
- [Balakirev 1996] M. K. Balakirev, L. I. Vostrikova, V. A. Smirnov, and M. V. Éntin, “Relaxation of the optical density of glass modulated with bichromatic radiation,” *JETP Letters* (1996).
- [Balakirev 2008] M.K. Balakirev, L.I. Vostrikova, V.A. Smirnov, “Efficiency of optical poling of isotropic media”, *Quantum Electronics* (2008).
- [Boucher 1983] D. Boucher, B. Wurrier, P. Aldebert, V. Neuman, P. Ripoche, “ALPD (axial lateral plasma deposition) : a new process for the production of high quality optical fibers”, *SPIE* (1983).
- [Bricks 1997] T. A. Birks, J. C. Knight, and P. S. J. Russell, "Endlessly single-mode photonic crystal fiber," *Optics Letters* (1997).
- [Bricks 2000] T. A. Birks, W. J. Wadsworth, and P. S. J. Russell, "Supercontinuum generation in tapered fibers," *Optics Letters* (2000).
- [Brücker 1970] R. Brückner, « Properties and structure of vitreous silica. I », *Journal of non-crystalline solids* (1970).
- [Burllet 1988] P.-A. Burllet et D. Pavy, « Élaboration des fibres optiques », *Électronique* (1988).
- [Carnevale and Peak 1983] A. Carnevale, et U. C. Paek. « Empirical Evaluation of Profile Variations in an MCVD Optical Waveguide Fiber Using Modal Structure Analysis ». *Bell System Technical Journal* (1983).
- [Ceoldo 2017] D. Ceoldo, K. Krupa, A. Tonello, V. Couderc, D. Modotto, U. Minoni, G. Millot, and S. Wabnitz, “Second harmonic generation in multimode graded-index fibers: spatial beam cleaning and multiple harmonic sideband generation”, *Optics Letters* (2017).
- [Chollet and Saada 1983] P. Chollet and S. Saada, “Model and rate constant determination for SPCVD fiber preform fabrication”, *Optica Publishing Group* (1983).

[Conforti 2017] M. Conforti, et al. "Fast and accurate modeling of nonlinear pulse propagation in graded-index multimode fibers." *Optics letters* (2017).

[Couderc 2010] Couderc, Vincent, Alessandro Tonello, Christelle Buy-Lesvigne, Philippe Leproux, et Ludovic Grossard. « Unprecedented Raman Cascading and Four-Wave Mixing from Second-Harmonic Generation in Optical Fiber ». *Optics Letters* (2010).

[Delahaye 2018] H. Delahaye, G. Granger, M. Jossent, J. T. Gomes, L. Lavoute, D. Gaponov, & S. Fevrier. Nanjoule sub-100 fs mid infrared pulse generated from a fully fusion-spliced fiber laser. In *Nonlinear Photonics*. Optical Society of America (2018).

[Deliancourt 2019a] E. Deliancourt, M. Fabert, A. Tonello, K. Krupa, A. Desfarges-Berthelemot, V. Kermene, G. Millot, A. Barthelemy, S. Wabnitz, and V. Couderc, "Kerr beam self-cleaning on the LP11 mode in graded-index multimode fibers," *OSA Continuum* (2019).

[Deliancourt 2019b] E. Deliancourt, M. Fabert, A. Tonello, K. Krupa, A. Desfarges-Berthelemot, V. Kermene, G. Millot, A. Barthelemy, S. Wabnitz, and V. Couderc, "Wavefront shaping for optimized many-mode Kerr beam self-cleaning in graded-index multimode fiber," *Optics Express* (2019).

[Djanov 1995] M. Djanov, D. S. Starodubov, "Photoinduced generation of the second harmonic in centrosymmetric media", *Quantum Electronics* (1995).

[Dominic 1994] V. Dominic, J. Feinberg, "High-resolution map of the dc electric field in second-harmonic-generating glass", *Optical Society of America* (1994).

[Dudley 2006] J. M. Dudley, G. Genty, and S. Coen, "Supercontinuum generation in photonic crystal fiber," *Reviews of Modern Physics* (2006).

[Eftekhar 2017] M. A. Eftekhar, Z. Sanjabi-Eznavah, J. E. Antonio-Lopez, F. W. Wise, D. N. Christodoulides, and R. Amezcua-Correa, "Instant and efficient second-harmonic generation and down-conversion in unprepared graded-index multimode fibers", *Optics Letters* (2017).

[Essiambre 2013] J. Essiambre, R. W. Tkach, and R. Ryf, "Fiber nonlinearity and capacity: Single-mode and multimode fibers," in *Optical Fiber Telecommunications, Optics and Photonics* (2013).

[Faraday 1831] M. Faraday. On a peculiar class of acoustical figures; and on certain forms assumed by groups of particles upon vibrating elastic surfaces. *Philosophical transactions of the Royal Society of London* (1831).

- [Fabert 2021] M. Fabert, M. Săpânțan, K. Krupa, A. Tonello, Y. Leventoux, S. Février, T. Mansuryan, A. Niang, B. Wetzel, G. Millot, S. Wabnitz, V. Couderc, "Coherent combining of self-cleaned multimode beams," *Scientific Reports* (2021).
- [Fontaine 2012] N. K. Fontaine, R. Ryf, J. Bland-Hawthorn, and S. G. Leon-Saval, "Geometric requirements for photonic lanterns in space division multiplexing," *Optics Express* (2012).
- [Franken 1961] E. P. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters, & G. Weinreich. Generation of optical harmonics. *Physical review letters* (1961).
- [Gaida 2016] C. Gaida, M. Gebhardt, F. Stutzki, C. Jauregui, J. Limpert, and A. Tünnermann, "Thulium-doped fiber chirped-pulse amplification system with 2 GW of peak power" *Optics Letters* (2016).
- [Galeener 1982] F. L. Galeener, « Planar rings in glasses », *Solid State Communications* (1982).
- [Geissberger et Galeener 1983] A. E. Geissberger et F. L. Galeener, « Raman studies of vitreous Si O 2 versus fictive temperature », *Physical Review B* (sept. 1983).
- [Gordon 1986] J. P. Gordon, "Theory of the soliton self-frequency shift," *Optics Letters* (1986).
- [Grudin 1988] A. B. Grudin, E. Dianov, D. Korbkin, A. M. Prokhorov, and D. Khaidarov, "Nonlinear mode coupling in multimode optical fibers; excitation of femtosecond range stimulated-Raman-scattering solitons", *JETP Letters* (1988).
- [Guenard 2017a] R. Guenard, K. Krupa, R. Dupiol, M. Fabert, A. Bendahmane, V. Kermene, A. Desfarges Berthelemot, J. L. Auguste, A. Tonello, A. Barthelemy, G. Millot, S. Wabnitz, and V. Couderc, "Kerr self-cleaning of pulsed beam in an ytterbium doped multimode fiber," *Optics Express* (2017).
- [Guenard 2017b] R. Guenard, K. Krupa, R. Dupiol, M. Fabert, A. Bendahmane, V. Kermene, A. Desfarges-Berthelemot, J. L. Auguste, A. Tonello, A. Barthelemy, G. Millot, S. Wabnitz, and V. Couderc, "Nonlinear beam self-cleaning in a coupled cavity composite laser based on multimode fiber," *Optics Express* (2017).
- [Hädrich 2016] S. Hädrich, M. Kienel, M. Müller, A. Klenke, J. Rothhardt, R. Klas, T. Gottschall, T. Eidam, A. Drozdy, P. Jójárt, and others, "Energetic sub-2-cycle laser with 216 W average power," *Optics Letters* (2016).
- [Haken 2000] Haken, U, O Humbach, S Ortner, et H Fabian. « Refractive Index of Silica Glass: influence of Fictive Temperature », *Journal of non-crystalline solids* (2000).

[Izawa 1980] T. Izawa et N. Inagaki, « Materials and processes for fiber preform fabrication—Vapor-phase axial deposition », Proceeding IEEE, (1980).

[Jauregui 2013] C. Jauregui, J. Limpert, and A. Tünnermann, "High-power fibre lasers," Nature Photonics (2013).

[Jiang 2006] X. Jiang et al., « Deep-ultraviolet to mid-infrared supercontinuum generated in solid-core ZBLAN photonic crystal fibre », Nature Photonics (2015).

[Karam 2020] L. Karam et al., « Electrically Micro-Polarized Amorphous Sodo-Niobate Film Competing with Crystalline Lithium Niobate Second-Order Optical Response », Advanced Optical Materials (2020).

[Kim 2008] Kim, Young Ho, Kim, Myoung Jin, Park, Min-Su, Jang, Jae-Hyeong, Lee, Byeong-Ha, et Kim, Kwang Taek, « Hydrogen Sensor Based on A Palladium-Coated Long-Period Fiber Grating Pair », Journal of the Optical Society of Korea (2008).

[Kitayama] K. I. Kitayama, A. Maruta, Y. Yoshida, N. P. Diamantopoulos, Y. C. Huang, M. Nakazawa, & T. Isoda, (2014, December). Mode division multiplexing network: a deployment scenario in metro area network. IEEE Global Communications Conference (2013).

[Knight 2003] J. C. Knight, "Photonic crystal fibres," Nature (2003).

[Krupa 2016a] 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," Physical Review Letters (2016).

[Krupa 2016b] K. Krupa, A. Tonello, B. M. Shalaby, M. Fabert, A. Barthélémy, G. Millot, S. Wabnitz, and V. Couderc, "Spatial beam self-cleaning in multimode fiber", Nature Photonics (2017).

[Krupa 2018] K. Krupa, A. Tonello, V. Couderc, A. Barthelemy, G. Millot, D. Modotto, and S. Wabnitz, "Spatiotemporal light-beam compression from nonlinear mode coupling," Physical Review Letters (2018).

[Krupa 2019] K. Krupa, A. Tonello, A. Barthélémy, T. Mansuryan, V. Couderc, G. Millot, P. Grelu, D. Modotto, S. A. Babin, and S. Wabnitz, "Multimode nonlinear fiber optics, a spatiotemporal avenue", APL Photonics (2019).

[Kyung 1996] Kyung, Jae H., et N. M. Lawandy. « Direct Measurement of Photoinduced Charge Distribution Responsible for Second-Harmonic Generation in Glasses ». Optics Letters (1996).

- [Lancry 2007] M. Lancry et al., « Fictive-Temperature Mapping in Highly Ge-Doped Multimode Optical Fibers », *Journal of Lightwave Technology* (2007).
- [Lancry 2012] M. Lancry, E. Régnier, et B. Poumellec, « Fictive temperature in silica-based glasses and its application to optical fiber manufacturing », *Progress in Materials Science* (2012).
- [Lefort 2017] C. Lefort, « A Review of Biomedical Multiphoton Microscopy and Its Laser Sources », *Journal of Physics D: Applied Physics* (2017).
- [Leon-Saval 2014] S. G. Leon-Saval, N. K. Fontaine, J. R. Salazar-Gil, B. Ercan, R. Ryf, and J. Bland-Hawthorn, "Mode-selective photonic lanterns for space-division multiplexing," *Optics Express* (2014).
- [Lesvigne 2007] C. Lesvigne, V. Couderc, A. Tonello, P. Leproux, A. Barthélémy, S. Lacroix, F. Druon, P. Blandin, M. Hanna, and P. Georges, "Visible supercontinuum generation controlled by intermodal four-wave mixing in microstructured fiber," *Optics Letters* (2007).
- [Leventoux 2021] Y Leventoux, G Granger, K Krupa, A Tonello, G Millot, M Ferraro, F Mangini, M Zitelli, S Wabnitz, S Février, V Couderc, "3D time-domain beam mapping for studying nonlinear dynamics in multimode optical fibers," *Optics Letters* (2021).
- [Liu 2016] Z. Liu, L. G. Wright, D. N. Christodoulides, and F. W. Wise, "Kerr self-cleaning of femtosecond-pulsed beams in graded-index multimode fiber," *Optics Letters* (2016).
- [Longhi 2003] S. Longhi, "Modulational instability and space time dynamics in nonlinear parabolicindex optical fibers." *Optics letters* (2003).
- [Lopez-Galmiche 2016a] G. Lopez-Galmiche, Z. S. Eznaveh, J. E. Antonio-Lopez, A. V. Benitez, J. R. Asomoza, J. S. Mondragon, C. Gonnet, P. Sillard, G. Li, A. Schülzgen, and others, "Few-mode erbium-doped fiber amplifier with photonic lantern for pump spatial mode control," *Optics Letters* (2016).
- [Lopez-Galmiche 2016b] G. Lopez-Galmiche, Z. Sanjabi Eznaveh, M. A. Eftekhar, J. Antonio Lopez, L. G. Wright, F. Wise, D. Christodoulides, and R. Amezcua Correa, "Visible supercontinuum generation in a graded index multimode fiber pumped at 1064 nm," *Optics Letters* (2016).
- [Lydtin 1986] H. Lydtin, « PCVD: A technique suitable for large-scale fabrication of optical fibers », *Journal of Lightwave Technology* (1986).
- [Mafi 2012] Mafi, Arash. "Pulse propagation in a short nonlinear graded-index multimode optical fiber." *Journal of Lightwave Technology* (2012).

- [Majérus 2008] O. Majérus, L. Cormier, D.R. Neuville, L. Galois, et G. Calas. « The Structure of SiO<sub>2</sub>–GeO<sub>2</sub> Glasses: A Spectroscopic Study ». *Journal of Non-Crystalline Solids* (2008).
- [Margulis 1995] W. Margulis, F. Laurell, and B. Lesche. “Imaging the Nonlinear Grating in Frequency-Doubling Fibres.” *Nature* (1995).
- [Martinet 2008] C. Martinet, V. Martinez, C. Coussa, B. Champagnon, et M. Tomozawa, « Radial distribution of the fictive temperature in pure silica optical fibers by micro-Raman spectroscopy », *Journal of Applied Physics* (2008).
- [Martinez 2003] V. Martinez, R. Le Parc, C. Martinet, B. Champagnon. ” Structural studies of germanium doped silica glasses: the role of the fictive temperature”, *Optical Materials* (2003)
- [Martinez 2004] Manuscrit V. Martinez (2004).
- [McClelland 2004] A. McClelland, V. Fomenko, et E. Borguet. « Ultrafast Time-Evolution of the Nonlinear Susceptibility of Hot Carriers at the Ge(111)–GeO<sub>2</sub> Interface As Probed by SHG ». *The Journal of Physical Chemistry* (2004).
- [Mohammadzahery 2021] Zahra Mohammadzahery, Maryam Jandaghi, Ebrahim Aghayari & Hasan Nabavi, “Observation of spatial nonlinear self-cleaning in a few-mode step-index fiber for special distributions of initial excited modes,” *Scientific Reports* (2021).
- [Moussa 2021] N. O. Moussa, T. Mansuryan, C-H. Hage, M. Fabert, K. Krupa, A. Tonello, M. Ferraro, L. Leggio, M. Zitelli, F. Mangini, A. Niang, G. Millot, M. Papi, S. Wabnitz, V. Couderc, “Spatiotemporal beam self-cleaning for high-resolution nonlinear fluorescence imaging with multimode fiber,” *Scientific Reports* (2021).
- [Mukherjee 1986] Mukherjee, Shyama P., et Shiv K. Sharma. « Structural Studies of Gels and Gel-Glasses in the SiO<sub>2</sub>-GeO<sub>2</sub> System Using Vibrational Spectroscopy ». *Journal of the American Ceramic Society*, (1986).
- [Nazemosadat 2016] E. Nazemosadat, H. Pourbeyram, & A. Mafi. “Phase matching for spontaneous frequency conversion via four-wave mixing in graded-index multimode optical fibers”. *JOSA* (2016).
- [Niang 2019] A Niang, T Mansuryan, K Krupa, A Tonello, M Fabert, P Leproux, D Modotto, ON Egorova, AE Levchenko, DS Lipatov, SL Semjonov, G Millot, V Couderc, S Wabnitz, “Spatial beam self-cleaning and supercontinuum generation with Yb-doped multimode graded-index fiber taper based on accelerating self-imaging and dissipative landscape,” *Optics express* (2019).

[Niang 2021] A Niang, MA Jima, D Modotto, F Mangini, A Tonello, U Minoni, M Fabert, M Zitelli, V Couderc, S Wabnitz, "Spatial beam nonlinear control with multimode GRIN fiber amplifiers," *Fiber Lasers XVIII: Technology and Systems* (2021).

[Ollier 2019] N. Ollier, M. Lancry, C. Martinet, V. Martinez, S. Le Floch, D. Neuville, "Relaxation study of pre-densified silica glasses under 2.5 MeV electron irradiation", *Scientific Reports* (2019).

[Österberg 1986] U. Österberg. et W. Margulis. « Dye Laser Pumped by Nd:YAG Laser Pulses Frequency Doubled in a Glass Optical Fiber ». *Optics Letters* (1986).

[Österberg 1987] U. Österberg, et Walter Margulis. « Experimental Studies on Efficient Frequency Doubling in Glass Optical Fibers ». *Optics Letters* (1987).

[Pearson] K, Pearson. "On Lines and Planes of Closest Fit to Systems of Points in Space". *Philosophical Magazine* (1901).

[Picozzi 2015] A. Picozzi, G. Millot, and S. Wabnitz, "Nonlinear optics: Nonlinear virtues of multimode fibre," *Nature Photonics* (2015).

[Poletti 2008] F., Poletti, & P. Horak. Description of ultrashort pulse propagation in multimode optical fibers. *JOSA B* (2008).

[Poumellec 1994] Poumellec, B. « Nonlinear Optical Generations in Silica-Based Optical Fibers: Material Aspects ». *Optical Materials* (1994).

[Ranka 2000] 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* (2000).

[Renninger 2013] W. H. Renninger and F. W. Wise, "Optical solitons in graded-index multimode fibres," *Nature Communication* (2013).

[Richardson 2010] D. J. Richardson, J. Nilsson, and W. A. Clarkson, "High power fiber lasers: current status and future perspectives [Invited]," *JOSA B* (2010).

[Russel 2006] P. S. J. Russell, "Photonic-Crystal Fibers," *Journal of Lightwave Technology* (2006).

[Sauvain 1995] Sauvain, E., Jae H. Kyung, et N. M. Lawandy. « Multiphoton Micrometer-Scale Photoetching in Silicate-Based Glasses ». *Optics Letters* (1995).

[Schultz 1980] P.C. Schultz "Fabrication of optical wavguides by the outside vapor deposition process", *Proceeding of the IEEE*, (1980).

- [Seraphin 1965] B. O. Seraphin, et N. Bottka. « Franz-Keldysh Effect of the Refractive Index in Semiconductors ». *Physical Review* (1965).
- [Smith 2009] A. V. Smith, B. T. Do, G. R. Hadley, and R. L. Farrow, "Optical Damage Limits to Pulse Energy From Fibers," *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics* (2009).
- [Spinner 1966] S. Spinner, A. Napolitano, "Further studies in the annealing of a Borosilicate glass", *Journal of Research of the National Institute of Standards and Technology* (1966).
- [Stolen 1987] Stolen, R. H., et H. W. K. Tom. « Self-Organized Phase-Matched Harmonic Generation in Optical Fibers ». *Optics Letters* (1987).
- [Stone et Knight 2008] J. M. Stone and J. C. Knight, "Visibly "white" light generation in uniform photonic crystal fiber using a microchip laser," *Optics Express* (2008).
- [Stone et Knight 2012] J. M. Stone and J. C. Knight, "From zero dispersion to group index matching: How tapering fibers offers the best of both worlds for visible supercontinuum generation," *Optical Fiber Technology* (2012).
- [Teğin 2020] U Teğin, B Rahmani, E Kakkava, D Psaltis, C Moser, "Single-mode output by controlling the spatiotemporal nonlinearities in mode-locked femtosecond multimode fiber lasers," *Advanced Photonics* (2020).
- [Tomozawa 1999] M. Tomozawa, Yong-KeunLee, "Surface Fictive Temperature of Silica Optical Fibers", *SPIE* (1999).
- [Tool 1946] AQ, Tool. "Relation between inelastic deformability and thermal expansion of glass in its annealing range." *Journal of the American Ceramic Society* (1946).
- [Wadsworth 2004] W. Wadsworth, N. Joly, J. Knight, T. Birks, F. Biancalana, and P. Russell, "Supercontinuum and four-wave mixing with Q-switched pulses in endlessly single-mode photonic crystal fibres," *Optics Express* (2004).
- [Wallis 1969] G. Wallis and D. I. Pomerantz, "Field assisted glass-metal sealing," *Journal of Applied Physics* (1969).
- [Wood 1987] D. Wood, K. Walker, J. MacChesney, J. Simpson, et R. Csencsits, "Germanium chemistry in the MCVD process for optical fiber fabrication ", *Journal of Lightwave Technology* (1987).
- [Wright 2015a] L. G. Wright, D. N. Christodoulides, and F. W. Wise, "Controllable spatiotemporal nonlinear effects in multimode fibres," *Nature Photonics* (2015).

[Wright 2015b] L. G. Wright, W. H. Renninger, D. N. Christodoulides, and F. W. Wise, "Spatiotemporal dynamics of multimode optical solitons," *Optics Express* (2015).

[Wright 2015c] L. G. Wright, S. Wabnitz, D. N. Christodoulides, and F. W. Wise, "Ultrabroadband Dispersive Radiation by Spatiotemporal Oscillation of Multimode Waves," *Physical Review Letters* (2015).

[Wright 2017] L. G. Wright, D. N. Christodoulides, and F. W. Wise, "Spatiotemporal modelocking in multimode fiber lasers," *Science* (2017).

[Xu 1997] J. Xu et al., « Second harmonic generation investigation on electric poling effects in fused silica », *Optical Materials* (1997).

[Zel'dovich 1991] B. Y. Zel'dovich, Y. E. Kapitskii, and V. M. Churikov, "Induced  $\chi(2)$  gratings in glasses," *JETP Letters* (1991).

## Liste des travaux publiés

---

### **Un brevet :**

Jonard, M., Colas, M., Cornette, J., Lefort, C., Duclere. J.R., Tonello, T., Mansuryan, T.,  
« FR2207644 Fibre optique, dispositif d'amélioration des propriétés non linéaires d'une fibre optique  
et procédé d'amélioration des propriétés non linéaires d'une fibre optique. ».

### **2 conférences internationales :**

Présentations orales avec proceeding :

Jonard, M., Colas, M., Leventoux, Y., Mansuryan, T., Cornette, J., Tonello, A., ... & Lefort, C.  
(2022, May). Towards a new understanding of optical poling efficiency in multimode fibers. In  
*Nonlinear Optics and its Applications 2022* (Vol. 12143, pp. 7-14). SPIE.

Jonard, M., Leventoux, Y., Colas, M., Février, S., Mansuryan, T., Cornette, J., ... & Lefort, C.  
(2022, May). 3D multiphoton characterization of  $\chi(2)$  nonlinearity induced in a multimode  
fiber through optical poling. In *2022 Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO)* (pp.  
1-2). IEEE.

### **2 conférences nationales :**

Présentation orale :

Jonard, M., Colas, M., Cornette, J., Lefort, C., Duclère, J.R., Mansuryan, T., Tonello, A., Lefort,  
C., Vincent, C., (2022). Imagerie Raman 2D pour la corrélation entre la structure et l'aptitude  
à la génération de seconde harmonique par poling optique de fibres optiques multimodes. In  
2022 GFSV

Posters :

Jonard, M., Colas, M., Cornette, J., Lefort, C., Duclère, J.R., & Couderc, V., (2023, May). 2D  
characterization of the local structure by Raman spectroscopy for understanding the efficiency  
of optical poling in multimode fibers. In 2023 GFSV.

Jonard, M., Lefort, C., Mansuryan<sup>1</sup>, T., Cornette, J., Arosa<sup>1</sup>, Y., Tonello<sup>1</sup>, A., Duclère, J.R.,  
Couderc, V., Colas, M., (June 2023). Inscription d'une non-linéarité de second ordre dans une  
fibre multimode. In 2023 JNOG.

### **En cours de publication :**

Jonard, M., Arosa, Y., Tonello, A., Mansuryan, T., Colas, M., Cornette, J., Duclère, J.R.,  
Lefort, C., Couderc, V., (January 2024). Generation of second harmonic at wide conversion  
band in GRIN multimode fibers. To be published in 2024

### **Travaux en co-auteur :**

Article avec comité de lecture :

Ferraro, M., Crocco, M. C., Mangini, F., Jonard, M., Sangiovanni, F., Zitelli, M., ... & Formoso, V. (2022). X-ray computed  $\mu$ -tomography for the characterization of optical fibers. *Optical Materials Express*, 12(11), 4210-4222.

Proceeding:

Crocco, M. C., Ferraro, M., Mangini, F., Jonard, M., Sangiovanni, F., Zitelli, M., ... & Formoso, V. (2022, July). X-ray tomography for the refractive index profiling of standard glass optical fibers. In *Specialty Optical Fibers* (pp. SoTh3G-2). Optica Publishing Group.

## Influence des Paramètres Structuraux de la Silice sur la Non-Linéarité Quadratique Imprimée dans les Fibres Optiques Multimodes

Dans cette thèse, nous caractérisons l'aptitude des fibres multimode à gradient d'indice à générer une non-linéarité d'ordre 2. Lors de notre étude, nous avons visualisé une différence significative sur le poling optique entre deux fibres MMGRIN dopées Germanium. Les deux fibres, produites par deux fabricants différents, Alcatel et Thorlabs, présentent les mêmes propriétés physiques : diamètres de cœur et de gaine de respectivement 50/125  $\mu\text{m}$  et de composition chimique identique. Cependant, nous observons des résultats d'efficacité de poling radicalement différents. Tout d'abord, nous avons caractérisé l'écriture de la non-linéarité de second ordre dans le cœur de la fibre optique en utilisant la microscopie multiphotonique. La non-linéarité  $\chi^{(2)}$  inscrite dans la fibre produite par la compagnie Alcatel et la structuration longitudinale et dans la section de la non-linéarité  $\chi^{(2)}$  ont été observées spatialement. Nous avons complété cette étude par de multiples analyses de l'impact du poling optique sur des effets non linéaires d'ordre 3.

Avec cette analyse purement optique, une étude complète est réalisée dans cette thèse sur la caractérisation de la structure des matériaux avec une analyse des spécifications des fibres. Nous effectuons une étude approfondie sur l'imagerie Infrarouge et Raman des différentes MMGRIN utilisées afin de comparer la structure locale de la silice avant et après le processus de poling. Ce travail de compréhension met en exergue l'impact de la structure du matériau sur sa capacité à générer une non-linéarité  $\chi^{(2)}$ . Nous proposons une discussion sur le rôle de la structure locale de la silice, liée à l'histoire thermique de la fibre au cours de son processus de fabrication et l'impact de la capacité d'un type de structure de silice à produire de nouvelles fréquences avec un processus de poling optique.

---

Mots-clés : Non-linéarité, Fibre à gradient d'indice, Poling optique, Imagerie Raman, Température fictive, Peigne de fréquence

## Influence of Silica Structural Parameters on Printed Quadratic Nonlinearity in Multimode Optical Fibers

In this thesis, we characterize the ability of Graded-index multimode fibers to generate second-order nonlinearity. In our study, we visualized a significant difference in optical poling between two Germanium-doped MMGRIN fibers. The two fibers, produced by two different manufacturers, Alcatel and Thorlabs, have the same physical properties: core and cladding diameters of 50/125  $\mu\text{m}$  respectively, and identical chemical composition. However, we observed radically different poling efficiency results. First, we characterized the second-order nonlinearity in the optical fiber core using multiphoton microscopy. The  $\chi^{(2)}$  nonlinearity inscribed in the fiber produced by the Alcatel company and the longitudinal and cross-sectional structuring of the  $\chi^{(2)}$  nonlinearity were observed spatially. We completed this study with multiple analyses of the impact of optical poling on third-order nonlinear effects.

Alongside this purely optical analysis, a comprehensive study is carried out in this thesis on material structure characterization with an analysis of fiber specifications. We carry out an in-depth Infrared and Raman imaging study of the different MMGRINs used to compare the local structure of the silica before and after the poling process. This work highlights the impact of the material's structure on its ability to generate  $\chi^{(2)}$  nonlinearity. We propose a discussion of the role of local silica structure, linked to the thermal history of the fiber during its manufacturing process, and the impact of the ability of one type of silica structure to produce new frequencies with an optical poling process.

---

Keywords : Non-linearity, Graded-index multimode fiber, Optical poling, Fictive temperature, Frequency comb

