Élaboration de lasers few-cycle à fibres optiques dans le moyen-infrarouge

Idris Tiliouine

▶ **To cite this version:**

Idris Tiliouine. Élaboration de lasers few-cycle à fibres optiques dans le moyen-infrarouge. Optique / photonique. Université de Limoges, 2023. Français. NNT : 2023LIMO0015 . tel-04081123

HAL Id: tel-04081123
https://theses.hal.science/tel-04081123

Submitted on 25 Apr 2023

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Thèse de doctorat

Université de Limoges

ED 653 - Sciences et Ingénierie (SI)

XLIM CNRS UMR-7252 Axe Photonique.

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

Présentée et soutenue par
Idris TILIOUINE

Le 10 mars 2023

Élaboration de lasers few-cycle à fibres optiques dans le moyen-infrarouge

Thèse dirigée par Sébastien FEVRIER.

JURY :

Président du jury
M. Ammar HIDEUR, Professeur, Laboratoire CORIA, Université de Rouen

Rapporteurs
M. Ammar HIDEUR, Professeur, Laboratoire CORIA, Université de Rouen
M. Frédéric SMEKTALA, Professeur, Laboratoire Interdisciplinaire Carnot de Bourgogne

Examinateurs
M. Johan BOULLET, Ingénieur R&D, Institut d'optique d'Aquitaine
Mme. Solenn COZIC, Ingénieure R&D, Le Verre Fluoré
M. Christian GRILLET, Chargé de recherche CNRS, Institut des Nanotechnologies de Lyon
M. Benjamin WETZEL, Chargé de recherche CNRS, Laboratoire Xlim

Licence CC BY-NC-ND 3.0

« La racine du travail est parfois amère, mais la saveur de ses fruits est toujours exquise. »

Victor Hugo (1802 - 1885)

« Je suis de ceux qui pensent que la science est d'une grande beauté. Un scientifique dans son laboratoire est non seulement un technicien : il est aussi un enfant placé devant des phénomènes naturels qui l'impressionnent comme des contes de fées. »

Marie Curie (1867 - 1934)

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Remerciements

À l'occasion de la rédaction de cette partie du manuscrit, je tiens à adresser mes plus sincères remerciements à toutes les personnes qui ont contribué à la réalisation de ce travail. Tout d'abord, je tiens à remercier chaleureusement Ammar HIDEUR, Frédéric SMEKTALA, Johan BOULLET, Solenn COZIC, Christian GRILLET et Benjamin WETZEL pour avoir accepté de faire partie de mon jury et pour le temps précieux qu'ils ont consacré à la lecture de mon manuscrit.

Je voudrais également exprimer ma profonde reconnaissance envers mon encadrant de thèse, Sébastien FEVRIER. Son expertise, son soutien et sa confiance en moi ont été des éléments essentiels pour mener à bien ce projet. Son implication, ses conseils et sa disponibilité tout au long de ces trois années m'ont permis de progresser et d'accomplir ce travail de la meilleure manière possible.

Je tiens à remercier également mes collègues et amis de bureau, Lamine, Melek et Yann, pour leur précieuse aide lors de la phase de rédaction de mon manuscrit de thèse. Leurs conseils éclairés, leur expertise et leur disponibilité ont été des atouts majeurs pour améliorer la qualité de mon travail. De plus, leur soutien indéfectible durant les répétitions pour la soutenance a été d'une grande aide pour me préparer au mieux. Je leur suis infiniment reconnaissant pour leur collaboration, leur amitié et leur générosité. Je tiens aussi à exprimer ma profonde gratitude envers mes collègues Geoffroy, Christian et Hugo pour avoir partagé avec moi leurs compétences, leur expertise et leur dévouement. Leur contribution a été cruciale pour la réussite de mes expériences et la réalisation de mes objectifs. Leurs commentaires et suggestions constructifs ont grandement amélioré la qualité de mon travail. Nos échanges scientifiques riches et stimulants, que nous avons eu le plaisir de partager lors des après-midis passées ensemble au bureau et pendant les pauses-café, ont également été très bénéfiques pour mon parcours de recherche.

Je remercie aussi Georges et Sidi Ely, mes autres collègues de XLIM, pour les débats riches et importants sur la Coupe du Monde au Qatar, ainsi que pour leur aide dans la découverte de la carte de France. Je suis reconnaissant envers Philippe Roy, Jean-Louis et Raphaël Jamier pour leurs discussions agréables, leurs encouragements et leur optimisme. Je les remercie également pour leur aide dans la recherche et la préparation de la salle de conférence la veille de ma soutenance. Sans oublier tous les autres doctorants et post-doctorants que j'ai eu la chance de rencontrer durant mes trois années de thèse, Mohamed Ali, Mariem, Ines, Baptiste, Romain, Flavien, Lynn, Marie-Alicia, Nadia, Amine, Yassin et bien d'autres encore. Ce fut un véritable plaisir de vous connaître et de travailler à vos côtés au sein du laboratoire.

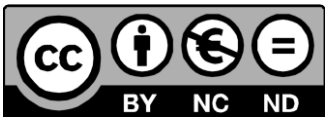
Avant de conclure cette partie complexe à rédiger, je ne peux pas omettre de remercier les personnes les plus importantes dans ma vie, qui ont toujours cru en moi et m'ont soutenu jusqu'au bout. Tout d'abord, mes parents et mon grand frère Ilyes, dont la présence et les mots d'encouragement ont été cruciaux pour me donner la force de persévérer dans les moments difficiles. Ma tante Aida et son mari Zouhir, qui m'ont traité comme leur fils et m'ont offert un foyer et un soutien inconditionnel. Je leur suis très reconnaissant pour leur aide et leur générosité. Je tiens également à remercier mon petit frère Iskander, Feriel ainsi que mes amis Aymen, Melek, Nadia, Raouf et beaucoup d’autres pour leur soutien indéfectible tout au long de la phase de rédaction, même lorsque j'étais très occupé et stressé. Leur présence, en particulier pendant les moments difficiles, m'a donné la force de persévérer. Je suis très reconnaissant pour leur amitié sincère et leur amour.

Enfin, je souhaite exprimer ma gratitude envers toutes les personnes qui ont joué un rôle dans mon parcours de recherche et mon développement personnel au cours des trois dernières années, même si je n'ai peut-être pas eu l'occasion de les nommer individuellement. Je suis parfaitement conscient que sans leur soutien et leur engagement, je n'aurais pas pu atteindre mes objectifs, et je leur suis infiniment reconnaissant. Merci du fond du cœur.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Droits d’auteurs

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



Licence CC BY-NC-ND 3.0

Table des matières

Introduction générale 8

Chapitre I. État de l'art des cavités fibrées à verrouillage de modes dans l'infrarouge moyen 11

I.1. Introduction 11

I.2. Principe de fonctionnement d'une cavité laser 11

I.3. Cavité passive à verrouillage de modes 12

I.3.1. Verrouillage de modes par absorbants saturables à semi-conducteur *SESAMs* 14

I.3.2. Verrouillage de modes par rotation non linéaire de la polarisation *NPR* 15

I.3.3. Cavité passive à verrouillage de modes dans des fibres optiques 16

I.4. Matériaux hôtes de fibres dans l'infrarouge moyen 18

I.4.1. Fibres optiques en verre d'oxyde de germanium 19

I.4.2. Fibres optiques en verre d'oxyde de tellure 19

I.4.3. Fibres optiques en verre de chalcogénure 20

I.4.4. Fibres optiques en verre fluoré 21

I.5. État de l'art des cavités à verrouillage de modes à base de fibres optiques dans l'IR moyen 23

I.6. Conclusion 24

Chapitre II. Propagation et caractérisation d'impulsions ultrabrèves 26

II.1. Introduction 26

II.2. Représentation analytique d'une impulsion courte 26

II.2.1. Profil temporel : intensité et phase 26

II.2.2. Profil spectral : intensité et phase 27

II.2.3. Durée d'impulsion et largeur spectrale 28

II.3. Propagation d'une impulsion courte dans une fibre optique 29

II.3.1. Propagation linéaire : dispersion chromatique 30

II.3.1.1. Impact de la phase spectrale sur le profil temporel d'une impulsion gaussienne 33

II.3.2. Propagation non linéaire : l'automodulation de phase 35

II.4. Caractérisation temporelle des impulsions ultracourtes 39

II.4.1. L'autocorrélation d'intensité 40

II.4.2. La technique de corrélation résolue en fréquence FROG 41

II.4.2.1. Traitement des traces SHG-FROG numériques 43

II.4.3. Autres méthodes 46

II.5. Dispositif expérimental SHG-FROG 46

II.5.1. Mesures et traitement des données 49

II.5.2. Applications du dispositif SHG-FROG 50

II.5.2.1. Caractérisation d'une source solitonique à 1,7 µm 50

II.5.2.2. Compression temporelle à 1,7 µm 52

II.5.2.3. Caractérisation d'une source commerciale 56

II.6. Conclusion 58

Chapitre III. Le régime solitonique et les sources à décalage solitonique dans l'IR moyen 60

III.1. Le régime solitonique 60

III.2. La diffusion Raman stimulée et l'auto-décalage Raman des solitons 63

III.2.1. La diffusion Raman stimulée 63

III.2.1.1. Réponse Raman des fibres en silice 64

Licence CC BY-NC-ND 3.0

III.2.1.2. Réponse Raman des fibres fluorées 65
III.2.2. L'auto-décalage Raman des solitons 67
III.2.2.1. La fission multi-solitonique et l'auto-décalage des solitons d'ordre supérieur 69
III.3. État de l'art des sources SSFS dans le MIR 72
III.4. Sources laser SSFS à impulsions courtes dans l'IR moyen 75
III.4.1. Laser CPA BREVITY HP Novae 75
III.4.2. Source SSFS à 3 µm 76
III.4.2.1. Fibre fluorée à large surface modale (*Large Mode Area* LMA *fibers*) 76
III.4.2.2. Résultats expérimentaux dans la fibre ZBLAN26 77
III.4.2.3. Auto-décalage solitonique dans les fibres LMA en silice 79
III.4.2.3.1. Fibres optiques à grande surface modale en verre de silice 80
III.4.2.3.2. Modélisation de la propagation non-linéaire dans les fibres LMA40 et LMA50 82
III.4.2.3.3. Résultats expérimentaux 83
III.4.2.4. SSFS dans la fibre ZBLAN26 après un étage de SSFS dans les fibres en silice 86
III.4.3. Source SSFS au-delà de 3 µm 92
III.5. Applications des sources SSFS 98
III.5.1. Spectroscopie infrarouge 98
III.5.1.1. Génération de supercontinuum dans le MIR 100
III.5.1.2. Spectroscopie du gaz méthane CH_4 102
III.5.2. Compression temporelle 105
III.6. Conclusion 106
Conclusion générale 110
Références bibliographiques 114
Annexes 123

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Introduction générale

L'invention du LASER, dont l'acronyme signifie « *Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation* en anglais, par Theodore Maiman dans les années soixante a ouvert une nouvelle ère pour les sources lumineuses et leurs applications [1]. D'une invention dite « banale » au moment de sa découverte, le laser est devenu un instrument primordial dans de nombreux secteurs scientifiques et industriels (télécommunications, automobile, micro-usinage et récemment la fusion nucléaire…). Depuis sa première démonstration, de très nombreux types d'architectures lasers ont été proposés. Celles-ci sont regroupées en différentes familles selon le milieu amplificateur (lasers à solide dont les lasers à fibre, à liquide, à gaz), le type de pompage (électrique ou optique dans la plupart des cas) et la configuration de la cavité ou leur mode de fonctionnement (laser à émission continue ou pulsée). Un des grands enjeux récurrents dans le développement des lasers depuis leur invention est, sans nul doute, l'augmentation de l'intensité lumineuse, avec pour objectif d'accéder à des régimes d'interaction lumière/matière de plus en plus extrêmes. Les lasers pulsés de type picosecondes ou femtosecondes représentent un excellent moyen pour y parvenir. Ils permettent d'obtenir de très fortes puissances crêtes en concentrant, dans un temps très court, la quantité d'énergie lumineuse émise par le laser. Les impulsions laser ultracourtes sont considérées comme des impulsions de rayonnement électromagnétique dont la durée est inférieure à la période de vibration thermique des molécules, de l'ordre de la dizaine de picosecondes. Le problème majeur des utilisateurs d'impulsions ultracourtes est de trouver un laser approprié qui fournit un rayonnement à la longueur d'onde d'intérêt. La bande d'émission d'un laser ultrarapide est fixée par son milieu à gain. Jusqu'à la fin des années 1980, la génération d'impulsions ultracourtes était dominée par les lasers à colorant à une basse longueur d'onde de 630 nm [2, 3]. Des recherches intensives ont été menées au fil des années pour trouver d'autres matériaux possédant des bandes de fluorescence plus larges, des bandes d'absorption élevée et une efficacité quantique élevée. Ces recherches ont permis la découverte de nouveaux types de milieux à gain. Il s'agit de divers matériaux solides (cristaux ou verre) dopés avec de petites quantités d'ions métalliques ou d'ions de terres rares (lanthanides). Depuis lors, différentes structures laser ont été obtenues à partir d'ions trivalents de terres rares (Nd^{3+}, Er^{3+}, Ho^{3+}, Ce^{3+}, Tm^{3+}, Pr^{3+}, Gd^{3+}, Eu^{3+}, Yb^{3+}), des terres rares divalentes (Sm^{2+}, Dy^{2+}, Tm^{2+}), ou des métaux de transition (Cr^{3+}, Ni^{2+}, Co^{2+}, Ti^{3+}, Fe^{2+}). Le pompage de ces matériaux solides se fait généralement de manière optique. Les matériaux laser les plus utilisés sont ceux qui possèdent des bandes d'absorption qui correspondent aux bandes spectrales d'émission des sources de pompage facilement disponibles (comme les lampes à arc et les diodes laser). La domination des lasers à colorant a été stoppée avec la découverte du laser Ti:saphir (cristal de saphir dopé au titane). Aujourd'hui, des impulsions avec seulement deux cycles optiques à une longueur d'onde centrale de 800 nm sont générées par des lasers Ti:saphir avec une puissance moyenne de sortie de plus de 100 mW [4-6]. Ce type de laser a la bande de gain la plus large et est donc capable de produire les impulsions les plus courtes. Il fournit également la plus large accordabilité en longueur d'onde entre 0,7 µm et 0,9 µm.

La région de l'infrarouge moyen allant de 2,5 µm à 25 µm est d'un grand intérêt pour les utilisateurs des sources laser. Cette bande de fréquences couvre les bandes d'absorption de la plupart des molécules ainsi que de multiples fenêtres atmosphériques. Les lasers ultrarapides fonctionnant dans le moyen infrarouge ont de nombreuses applications dans divers domaines comme la spectroscopie moléculaire, la synthèse d'impulsions attosecondes

Licence CC BY-NC-ND 3.0

dans l'ultraviolet, la génération d'harmoniques ou l'ablation des tissues biologiques [7, 8]. Afin de couvrir cette bande spectrale, plusieurs types de sources laser ont été développées ces dernières années. Les plus utilisées sont les sources paramétriques optiques. Ces sources se servent généralement des lasers Ti:saphir pour déclencher des processus non linéaires dans des cristaux. Cela permet de générer des impulsions courtes à haute énergie accordables en longueur d'onde couvrant toute la bande spectrale allant du visible jusqu'au moyen infrarouge. Les inconvénients majeurs de ces sources sont leur coût élevé, leur encombrement et leur complexité d'alignement. Afin de remplacer les sources paramétriques, d'autres types de sources ont été proposés au fil des années. Une émission laser continue entre 1 et 1,65 µm a été découverte dans des laser à grenat d'yttrium aluminium (YAG) dopé au chrome Cr^{4+}:YAG et au forsterite dopé au chrome Cr^{4+} : $MgSiO_4$ [9, 10]. Autour de 2 µm, le spectre d'émission ultra large du séléniure de zinc dopé au chrome Cr^{2+}:ZnSe et du sulfure de zinc dopé au chrome Cr^{2+}:ZnS a été observé par DeLoach *et al.* [11]. Ces milieux se présentent comme de très bons candidats pour la génération d'impulsions courtes dans la région spectrale de 2 µm à 3 µm. Le premier laser Cr^{2+}:ZnSe ultracourt a été obtenu par Pollock *et al*. Des impulsions de 10,8 ps autour de 2,5 µm ont été obtenues [12]. La durée des impulsions délivrées par ce type de cavité a été comprimée au fil des années et des impulsions de 29 fs sont délivrées actuellement [13-15].

En tant que sous-catégorie des lasers solides, les lasers à fibre pulsés remontent à 1983, lorsque le verrouillage de modes partiel a été observé pour la première fois dans un laser à fibre dopée au néodyme Nd^{3+} [16]. Les lasers à fibre ultrarapides ont fait des progrès considérables au cours des dernières décennies. Ils sont connus pour leur excellente qualité de faisceau, l'avantage d'être compacts et leur grande évolutivité en puissance. Cela leur a permis de gagner leur place dans un vaste monde d'applications telles que la science des champs forts, la métrologie de précision, les communications optiques, la microscopie et la spectroscopie, etc. Les lasers à fibre ultrarapides fonctionnent aujourd'hui sur quatre, voire cinq, bandes de longueurs d'onde selon les ions de terres rares dilués dans les matrices hôtes. Les plus utilisées sont les lasers à fibres dopées à l'ytterbium Yb^{3+} à 1 µm, à l'erbium Er^{3+} à 1,56 µm, au thulium Tm $^{3+}$et à l'holmium Ho^{3+} autour de 2 µm. D'autres lasers utilisant une matrice fluorée sont en cours de développement pour étendre la gamme de longueur d'onde dans le moyen-infrarouge. Les lasers à fibres fluorées dopées à l'erbium et à l'holmium et au dysprosium émettent autour de 2,8 µm et 3,5 µm. Bien que nombreuses, les bandes d'émission des ions trivalents de terre rare en matrice fluorée peuvent ne pas couvrir la raie d'absorption de certaines molécules. Comme exemple, la bande d'absorption du dioxyde de carbone CO_2 qui se situe autour de 4,2 µm ne peut pas être couverte, pour l'instant, par les cavités à fibres fluorées. Il est donc nécessaire de trouver un autre moyen de couvrir la bande spectrale non couverte par l'émission des ions de terres rares.

L'interaction forte de la lumière avec la matière liée au confinement de l'impulsion laser dans le cœur des fibres optiques sur des longueurs métriques, voire décamétriques, a fait de ces dernières une plateforme intéressante pour l'optique non linéaire dans le moyen-infrarouge. La maitrise des effets non linéaires comme la génération de supercontinuum ou l'auto-décalage fréquentiel des solitons peut mener à l'élaboration de sources émettant à des longueurs exotiques, éventuellement accordables en longueur d'onde. Ces phénomènes sont aussi intéressants pour compresser des impulsions (picoseconde vers sub-100 fs). Mes travaux de thèse ont ainsi consisté en la mise au point d'une source fibrée d'impulsions ultracourtes (quelques cycles optiques) dans le moyen infrarouge. Ces travaux ont été financés par la

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Commission européenne dans le cadre du projet PETACom et par la Région Nouvelle-Aquitaine dans le cadre du projet Femto-VO2 et ont été menés en collaboration avec la société Novae pour la fourniture de lasers de pompe énergétiques et l'entreprise Le Verre Fluoré pour la fourniture de fibres optiques en verre fluoré adaptées à mon étude. Pour parvenir à cet objectif, j'ai exploité les effets non linéaires exacerbés lors de la propagation d'impulsions courtes de haute énergie, délivrées par des sources laser disponibles au laboratoire, dans des fibres optiques en verre fluoré. J'ai axé mes travaux sur l'obtention d'impulsions ultracourtes (sub-100 fs) et hautement énergétiques (50 nJ) à des longueurs d'onde non couvertes, au lancement de ma thèse, par les lasers à fibre optique dopée aux terres rares. Lors de mes travaux, j'ai aussi démontré la pertinence de cette approche pour la génération de supercontinuum ou d'harmoniques d'ordre élevé ainsi que pour la détection de faibles concentrations de méthane à 7,65 µm en collaboration avec le laboratoire ICB de l'université de Dijon.

Ce manuscrit est composé de trois chapitres. Le premier chapitre introduit le principe de génération d'impulsions courtes dans les cavités à verrouillage de modes, puis présente les différentes fibres optiques infrarouges ainsi qu'un état de l'art des cavités à verrouillage de modes émettant dans l'IR moyen. Ensuite, dans le deuxième chapitre, je détaille la notion d'impulsion courte, les moyens de leur caractérisation et les effets linéaires/ non-linéaires que subit une impulsion courte lors de sa propagation dans une fibre optique. Je présente, dans une seconde partie, un dispositif SHG-FROG développé au sein de notre laboratoire en collaboration avec le LIDyL au CEA Saclay. Enfin, dans le troisième chapitre, j'introduis le régime solitonique dans les fibres optiques passives. Je détaille les propriétés physiques nécessaires pour appréhender le SSFS dont la réponse Raman des fibres en silice et en verre fluoré. Je présente finalement les résultats expérimentaux obtenus lors de mes travaux. Ce chapitre est conclu par une présentation de quelques applications de ces sources SSFS à haute énergie dans le MIR. Finalement, une conclusion résume tous les travaux menés durant ma thèse et présente les perspectives à venir au sein de notre équipe.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Chapitre I. État de l'art des cavités fibrées à verrouillage de modes dans l'infrarouge moyen

I.1. Introduction

La région de l'infrarouge moyen (*mid-infrared*, MIR) allant de 3 µm à 50 µm couvre les lignes fondamentales d'absorption ro-vibrationnelle de la plupart des molécules ainsi que de multiples fenêtres atmosphériques. Bien que développés récemment, les lasers ultrarapides MIR ont déjà de nombreuses applications dans des domaines variés. D'une part, le large spectre des impulsions femtosecondes émises par des cavités à verrouillage de modes est exploité dans plusieurs outils de spectroscopie. Ceci permet la détection de substances, la surveillance de l'environnement et le diagnostic des gaz respiratoires [7]. D'autre part, la génération d'impulsions ultracourtes avec des puissances crêtes élevées dans le MIR peut être utilisée pour synthétiser des impulsions attosecondes dans l'ultraviolet par la génération d'harmoniques [8], pour le développement de nouvelles sources de supercontinuum s'étendant plus loin dans l'IR moyen [17, 18] ou pour l'ablation précise de tissus biologiques grâce à la forte absorption de l'eau contenue dans les tissus organiques dans la région spectrale à 2,7–3,0 µm.

Les lasers à fibre ultrarapides basés sur des fibres de silice dopées aux terres rares (à l'ytterbium, à l'erbium et au thulium) ont connu beaucoup de progrès grâce aux technologies de fabrication avancées des fibres. L'architecture guidée de ces lasers ultrarapides à fibres optiques en silice leur confère de nombreux avantages par rapport aux lasers pulsés à l'état solide et à gaz en termes de facilité d'intégration et d'usage, de qualité de faisceau, ou de puissance moyenne accessible. Aujourd'hui, les lasers solides et à gaz traditionnels opérants dans le proche infrarouge ($\lambda < 2{,}5$ µm) sont progressivement remplacés par des lasers à fibre de silice. Dans la bande de l'infrarouge moyen en revanche, au-dessus de la bande de transmission de la silice, les performances des lasers à fibre n'ont pas atteint celles des lasers à fibre en silice. Ceci est dû à une moindre disponibilité des fibres optiques transmettant bien la lumière dans cette gamme de fréquences. Ces dernières années, tirés par les applications de ce domaine spectral, les lasers ultra-rapides à fibres optiques MIR se sont rapidement développés grâce aux progrès des technologies de synthèse des verres infrarouges et de leur dopage en terres rares. Ces avancées importantes dans la génération, la compression et l'amplification d'impulsions ultra-rapides MIR ont élargi considérablement les moyens de recherche et les applications des lasers à fibre dans l'infrarouge moyen.

Dans ce contexte, ce chapitre introductif présente les grands principes de fonctionnement des lasers ultrarapides en général, les matériaux et les fibres disponibles pour leur élaboration dans le MIR, et dresse un état de l'art de ces lasers.

I.2. Principe de fonctionnement d'une cavité laser

L'effet LASER est réalisé par le processus d'émission stimulée dans un milieu à gain inséré dans une cavité optique. L'émission stimulée et l'inversion de population dans le milieu à gain sont obtenues par un pompage optique ou électrique externe. La cavité laser la plus simple est la cavité de type Fabry-Pérot. Elle est composée d'un miroir réfléchissant, d'un miroir partiellement réfléchissant et d'un milieu actif. La réflexion d'une partie des ondes lumineuses émises sur les deux miroirs confine l'émission stimulée dans la cavité. Le miroir semi-

Licence CC BY-NC-ND 3.0

réfléchissant permet de laisser sortir une fraction du faisceau lumineux en dehors de la cavité laser.

Dans une cavité laser, les photons générés par le milieu à gain sont émis dans des modes propres dont les propriétés spectrales et spatiales dépendent de la géométrie de la cavité. Ces modes longitudinaux présentent des fréquences multiples de la fréquence fondamentale de la cavité et définissent les longueurs d'onde qui peuvent se propager et s'amplifier dans la cavité. Elles sont données par la relation suivante :

$$\lambda = \frac{2}{k}.L_c \qquad (I\text{-}1)$$

avec L_c la longueur de la cavité et k un nombre entier. Cette relation s'applique à tous les modes longitudinaux qui peuvent exister dans la cavité. Pour une émission laser, la bande spectrale d'émission est plus étroite et elle est définie par la bande de gain du milieu amplificateur comme le montre la figure I.1.

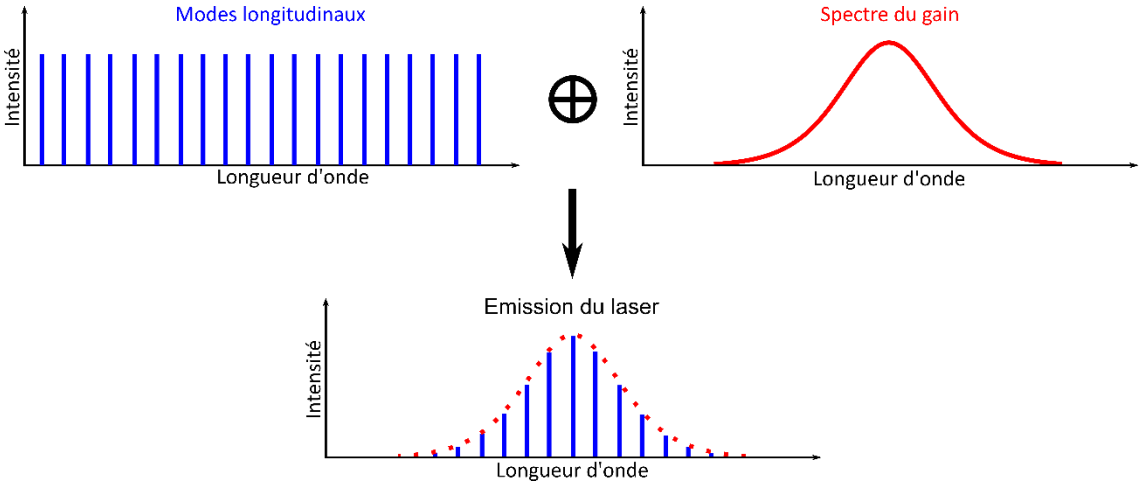


Figure I.1 : Principe de fonctionnement d'une cavité LASER

I.3. Cavité passive à verrouillage de modes

La cavité laser décrite ci-dessus permet l'existence de certains modes longitudinaux. Chaque mode peut être décrit de la façon suivante :

$$\tilde{E}_k(t) = E_k \exp\left(i2\pi\left(f_0 + k\frac{c}{2L_c}\right)t + \phi_k\right) \qquad (I\text{-}2)$$

avec

E_k et ϕ_k sont l'amplitude et la phase du $k^{ième}$ mode.

f_0 est la fréquence fondamentale du laser.

c est la vitesse de la lumière dans le vide.

L_c est la longueur de la cavité.

Le champ électrique résultant en sortie de la cavité correspond à la somme de l'ensemble des N modes oscillants dans la bande de gain. Il peut s'écrire de la façon suivante :

$$\tilde{E}_T(t) = \sum_{k=0}^{N-1} \tilde{E}_k(t) \qquad (I\text{-}3)$$

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Généralement, les modes longitudinaux oscillent dans la cavité d'une façon indépendante. Cela revient à dire que chaque mode a une amplitude et une phase aléatoires différentes de celles des autres modes. Ce type d'émission correspond à l'émission laser continue. Si ces modes oscillent en phase, on obtient ce qu'on appelle une cavité à verrouillage en phase des modes longitudinaux. Dans le cas le plus simple, où tous les modes présentent la même amplitude $E_k = E_0$ et un déphasage nul $\phi_k = 0$, le champ électrique résultant en sortie de la cavité devient :

$$\tilde{E}_T(t) = E_0 \exp(i\omega_0 t) \frac{\sin\left(\frac{Nc}{4L_c}t\right)}{\sin\left(\frac{c}{4L_c}t\right)} \qquad (I\text{-}4)$$

L'intensité lumineuse en sortie de la cavité peut être déduite de la relation du champ et s'écrit de la façon suivante :

$$I_T(t) = |\tilde{E}_T(t)|^2 = {E_0}^2 \left(\frac{\sin\left(\frac{Nc}{4L_c}t\right)}{\sin\left(\frac{c}{4L_c}t\right)} \right)^2 \qquad (I\text{-}5)$$

L'interférence d'un grand nombre de modes longitudinaux entraine une répartition périodique de l'énergie dans le temps. Le faisceau lumineux sort donc de la cavité laser par un miroir semi-réfléchissant sous la forme d'un train périodique d'impulsions espacées dans le temps d'une durée temporelle égale à $2.L_c/c$. Ce type de laser est dit « impulsionnel » ou « pulsé ».

Dans un milieu avec un indice de réfraction n, l'espacement entre deux impulsions successives correspond à la période d'émission, inversement proportionnelle à la fréquence de répétition donnée par :

$$f_{rep}(Hz) = \frac{c}{2nL_c} \qquad (I\text{-}6)$$

La figure I.2 présente l'évolution temporelle de l'intensité en sortie d'une cavité laser avec une longueur de 3 mètres. La figure I.2(a) correspond à l'intensité résultante dans le cas de l'oscillation de 5 modes avec des amplitudes et phases aléatoires et indépendantes. La figure I.2(b-d) présente la répartition temporelle de l'intensité lumineuse en sortie d'une cavité à verrouillage de modes. En considérant que les différents modes présents dans la cavité sont en phase et de même amplitude, on obtient une répartition discrète de l'intensité dans le temps. On remarque que la durée temporelle et la puissance crête des impulsions émises sont dépendantes du nombre de modes oscillants. Plus le nombre de modes est important, plus la durée d'impulsions est courte et plus la puissance crête est élevée.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

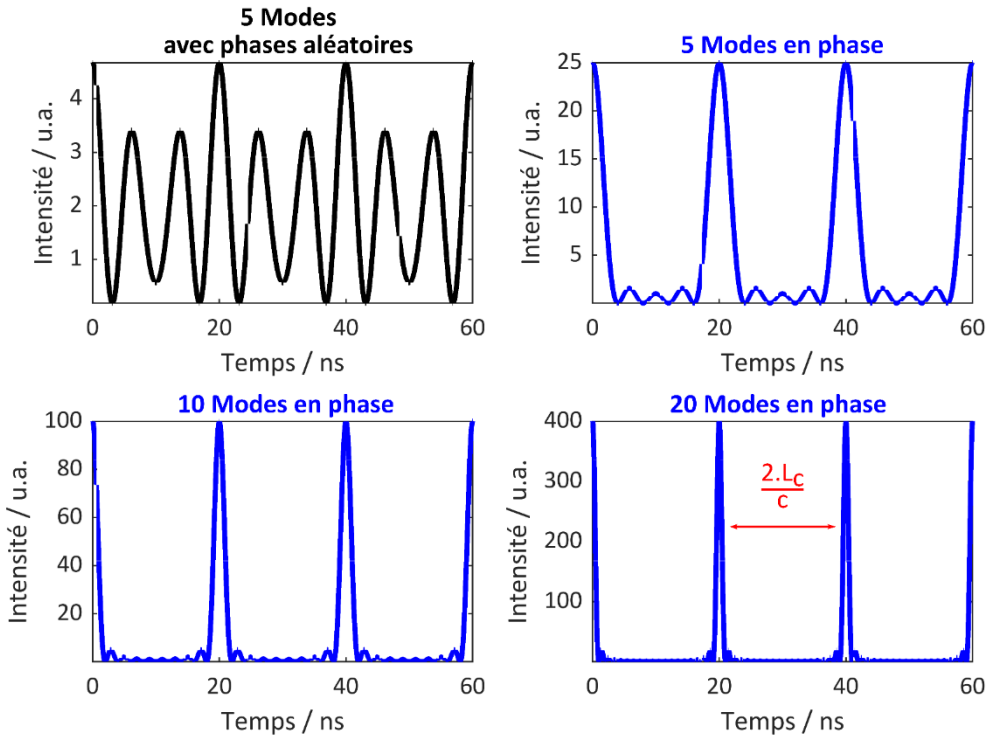


Figure I.2 : Principe de fonctionnement d'une cavité passive à verrouillage de modes : **(a)** 5 modes à phases aléatoires. **(b)** 5 modes en phase. **(c)** 10 modes en phase. **(d)** 20 modes en phase.

Les cavités à verrouillage de modes ont été inventées peu après l'invention du laser et permettent la génération d'impulsions d'une durée de quelques picosecondes [19, 20]. Les techniques de verrouillage de modes se répartissent en deux grandes catégories selon qu'elles utilisent un verrouillage actif ou un verrouillage passif. Dans la première approche, le rayonnement dans la cavité laser est modulé par un signal dérivé d'une source d'horloge externe. Cette technique ne permet pas de générer des impulsions plus courtes qu'une picoseconde. La deuxième approche, celle qui est utilisée dans les lasers exploités durant mes travaux de thèse, se compose généralement d'un milieu amplificateur et d'un absorbant saturable appliquant des pertes dépendantes de l'intensité. La modulation en amplitude est fournie par l'interaction entre le rayonnement incident avec les éléments intracavité. Cette technique est dite « passive » car aucune modulation externe n'est requise. Cette approche permet aisément de générer des impulsions sub-picosecondes et est couramment utilisée dans les oscillateurs lasers ultra-rapides. Les absorbants utilisés dans ces cavités laser sont variés. Les plus connus sont les miroirs à absorbants saturables à base de semi-conducteurs (*SEmiconductor Saturable Absorber Mirror, SESAM* (GaAs, GaSb, Te:GaSb), la rotation non linéaire de polarisation, l'effet non linéaire de lentille Kerr, les nanotubes de carbone ou le graphène. Dans les cavités à verrouillage de modes à base de fibres optiques, on utilise souvent les absorbants saturables réels (*SESAM*) et artificiels (la rotation non linéaire de polarisation).

I.3.1. Verrouillage de modes par absorbants saturables à semi-conducteur *SESAMs*

Les miroirs semi-conducteurs sont couramment utilisés comme absorbants saturables pour moduler les pertes en fonction de l'intensité lumineuse dans les cavités à verrouillage de modes. Ce sont des éléments résonants non linéaires dont le coefficient d'absorption diminue fortement lorsque l'intensité incidente dépasse un certain seuil. Le corollaire est que le SESAM

Licence CC BY-NC-ND 3.0

interdit la propagation, et donc l'amplification, des composantes temporelles dont l'intensité est inférieure à ce seuil. Les composantes temporelles dont l'intensité est supérieure au seuil continuent à se propager dans la cavité et sont progressivement amplifiées pour constituer finalement l'impulsion entretenue dans l'oscillateur laser. La courbe d'absorption α d'un miroir à absorbant saturable est donnée par la relation ci-dessous avec α_0 son coefficient d'absorption maximale aux faibles intensités, I_s son intensité de saturation à laquelle il devient transparent à 50 % et I l'intensité lumineuse dans la cavité.

$$\alpha = \frac{\alpha_0}{1+\frac{I}{I_s}} \qquad (I\text{-}7)$$

La figure I.3 présente le principe de fonctionnement de l'absorbant saturable au sein d'une cavité laser. Au démarrage, les modes dans la cavité commencent à osciller indépendamment sans aucun accord de phase. En augmentant le pompage du milieu amplificateur, le gain dans la cavité commence à augmenter. Lorsque le gain dépasse les pertes d'absorption de l'absorbant saturable, l'intensité dans la cavité commence à son tour à augmenter et à s'amplifier jusqu'à la saturation de l'absorption du SESAM. Ceci implique la chute des pertes de la cavité et par conséquent la génération des impulsions courtes. Cet effet se répète périodiquement au sein de la cavité pour produire un train d'impulsions courtes et stables avec un taux de répétition défini par la longueur de la cavité comme on l'a déjà évoqué précédemment.

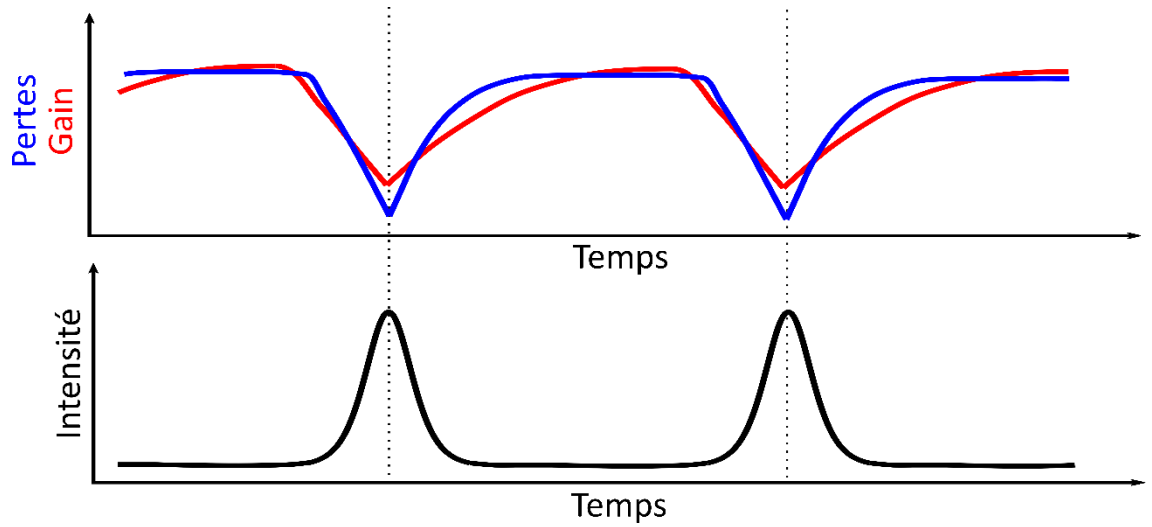


Figure I.3 : Principe de fonctionnement d'une cavité passive à verrouillage de modes par absorbant saturable à semi-conducteur *SESAM*

Les absorbants saturables à semi-conducteurs offrent plusieurs avantages comme la compacité (couramment utilisée dans les cavités fibrées) et la stabilité. Toutefois, les SESAM fonctionnent dans des bandes spectrales étroites définies par le matériau semi-conducteur utilisé. De plus, ils sont vulnérables aux fortes puissances.

I.3.2. Verrouillage de modes par rotation non linéaire de la polarisation *NPR*

Le verrouillage de modes par la rotation non linéaire de la polarisation (*Nonlinear Polarization Rotation NPR*), appelée aussi évolution non-linéaire de la polarisation (NPE), se fait grâce au phénomène de l'effet Kerr optique qui induit une rotation de la polarisation dépendante de la puissance instantanée dans l'impulsion. En plaçant un jeu de polariseurs dans la cavité,

Licence CC BY-NC-ND 3.0

l'effet Kerr peut conduire à la synthèse d'un absorbant saturable artificiel qui transforme la rotation non-linéaire de la polarisation dans la fibre en modulation d'amplitude par des pertes dépendantes de la polarisation. Ce principe est présenté sur la figure I.4. L'absorption saturable à base de la rotation non linéaire de polarisation NRP peut s'expliquer comme suit : l'impulsion se propageant dans la cavité se polarise linéairement après son passage par un premier polariseur P1. L'impulsion passe par un premier contrôleur de polarisation CP1, constitué de lames de phase (λ/2 et λ/4), qui transforme la polarisation linéaire en polarisation elliptique. En sortie du CP1, toutes les composantes temporelles de l'impulsion sont polarisées elliptiquement avec la même direction. Au fur et à mesure que l'impulsion se propage à travers la fibre active, les axes de l'ellipse de polarisation du pic et des ailes de l'impulsion tournent de manière différente en raison de la non-linéarité Kerr. Comme les effets non linéaires dépendent de l'intensité, le centre de l'impulsion, plus intense, subira une rotation de polarisation plus importante que les ailes.

En sortie de la fibre active, les directions de polarisation sont ajustées à l'aide du contrôleur de polarisation CP2 de manière à ce que la polarisation du sommet de l'impulsion s'aligne avec l'axe du deuxième polariseur. Ainsi seules les composantes de plus forte puissance instantanée traversent le polariseur P2. En sortie de P2, l'impulsion est tronquée de ces ailes et par conséquent réduite temporellement.

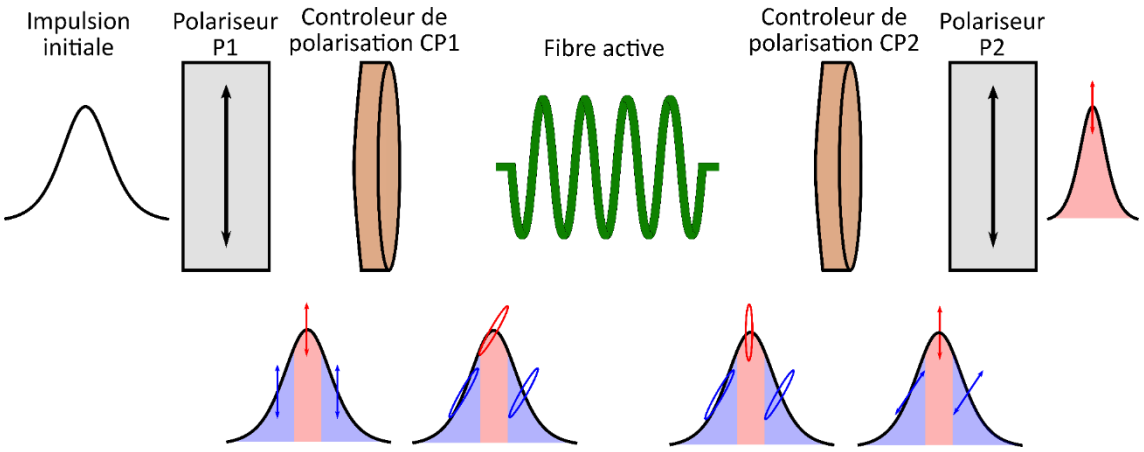


Figure I.4 : Principe de fonctionnement d'une cavité passive à verrouillage de modes par rotation non linéaire de polarisation

I.3.3. Cavité passive à verrouillage de modes dans des fibres optiques

La fibre optique se présente comme une excellente plateforme pour une émission laser avec de nombreux avantages exclusifs tels que la souplesse, la compacité et l'excellente qualité du faisceau. Cette initiative a été proposée dès 1964 [21] et des systèmes de faible puissance ont été réalisés dans les années 1980. L'obtention d'une émission impulsionnelle par verrouillage de modes remonte à 1983 dans un laser à fibre dopée au Nd^{3+} [16]. Plusieurs années plus tard, un verrouillage de modes amélioré dans les lasers à fibre dopée au Nd^{3+} a produit des impulsions picosecondes ou même femtosecondes [22, 23]. Au début des années 2000, grâce aux progrès technologiques dans le domaine des diodes laser, de fortes puissances ont été générées par des lasers à fibre.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Le principe de verrouillage passif de modes dans des fibres optiques est montré sur le schéma ci-après. Ce type de cavité est pompé par des diodes et offre une excellente qualité de faisceau, souvent avec un coefficient de qualité M^2 inférieur à 1,1. La figure I.5 montre que contrairement au laser solide qui utilise un cristal comme milieu amplificateur, le milieu à gain du laser à fibre est constitué de quelques centimètres voire mètres de fibre active, ce qui a beaucoup simplifié les techniques de refroidissement du laser. Aujourd'hui, les lasers à fibre à verrouillage de modes sont capables de produire des impulsions inférieures à 47 fs [24, 25] et à moins de 35 fs en ajoutant une paire de prismes en sortie [26, 27] ainsi que des impulsions sub-100 fs à des taux de répétions dépassant les 500 MHz [28]. De plus, les systèmes à fibres permettent d'intégrer facilement des composants fibrés (comme des isolateurs et des coupleurs) pour construire des systèmes laser entièrement fibrés. Ces systèmes sont compacts, robustes, relativement peu couteux et nécessitent une maintenance minimale. Les lasers fibrés à verrouillage de modes se sont imposés comme une source de premier plan d'impulsions optiques courtes, se classant à égalité avec les lasers solides et les lasers à semi-conducteurs. En utilisant des fibres optiques dopées aux ions trivalents de terres rares, Néodyme Nd^{3+}, Ytterbium Yb^{3+}, Erbium Er^{3+}, Thulium Tm^{3+}, Holmium Ho^{3+} ou Dysprosium Dy^{3+} on arrive à couvrir une émission discrète allant du proche infrarouge, autour de 0,9 µm dans le Nd^{3+}, jusqu'au moyen infrarouge, 3,5 µm dans l'Er^{3+}, selon le matériau de la fibre hôte utilisée.

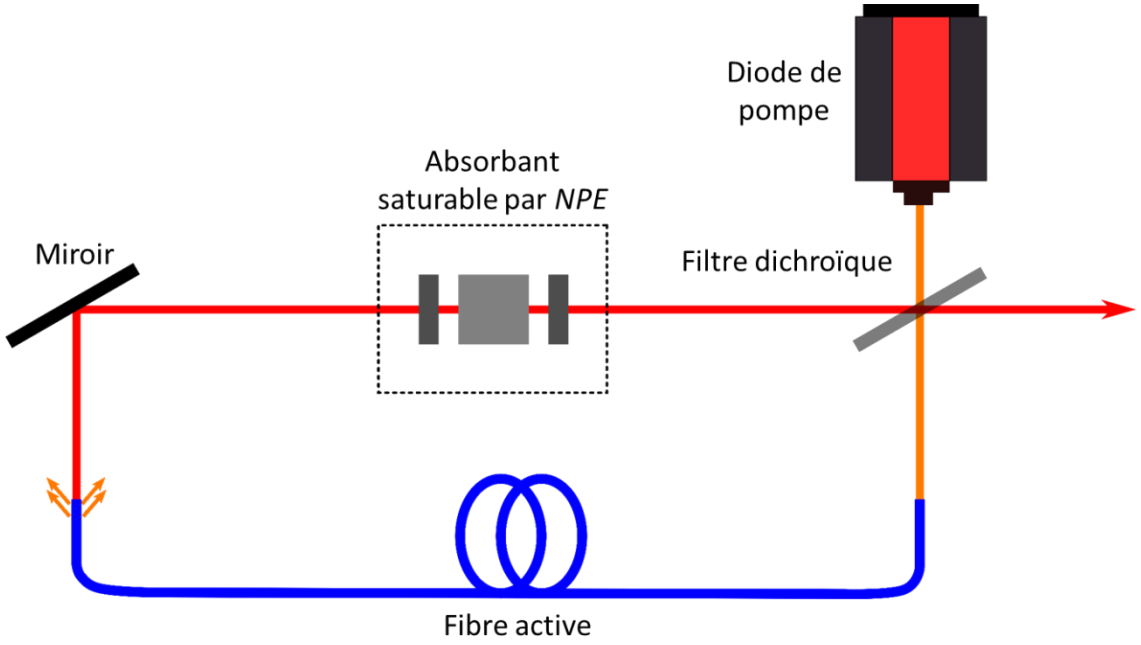


Figure I.5 : Un exemple de schéma de principe d'une cavité laser à fibre par verrouillage passif de modes avec un absorbant saturable de type *NPE*

Dans l'infrarouge proche, la fibre en silice dopée à l'erbium Er^{3+} est la fibre la plus utilisée comme dispositif de gain. La plage de longueur d'onde de fonctionnement correspondante est de 1,53 à 1,56 µm, ce qui explique pourquoi ces fibres dopées sont majoritairement utilisées pour les systèmes de communication. La fibre en silice dopée à l'Ytterbium est une autre fibre très populaire utilisée comme dispositif de gain du laser à fibre et qui a un spectre qui se situe dans une bande comprise entre 1030 et 1100 nm avec un maximum à une longueur d'onde de 1070 nm. Elle présente une efficacité quantique élevée (autour de 80 %), et la puissance la plus élevée a été obtenue en utilisant ce type de fibre. Pour des longueurs d'onde plus grandes, la génération d'impulsions ultracourtes dans les lasers fibrés a

Licence CC BY-NC-ND 3.0

commencé pendant les années 1990 lorsque Nelson *et al.* ont démontré un laser à verrouillage de modes à fibre dopée au Tm^{3+} qui produisait des impulsions de durée inférieure à 500 fs autour de 2 µm [29]. Depuis lors, les lasers ultrarapides à fibre ont évolué rapidement vers des performances toujours plus élevées dans cette région spectrale, et un certain nombre de lasers dopés au Tm^{3+} et à l'Ho^{3+} ont été rapportés. Le record de puissance moyenne pour un oscillateur à verrouillage de modes au thulium a été obtenu en utilisant une fibre silice multimode double gaine dopée Tm^{3+} et qui délivre des impulsions de 31 ps avec une puissance supérieure à 10 W [30]. Les impulsions les plus courtes en sortie des cavités à fibres dopées au Tm^{3+} étaient de 45 fs en utilisant un absorbant saturable de type NPR et une paire de prismes pour la compression temporelle en sortie de la cavité [31].

Au-delà de ces longueurs d'onde, les verres de silice sont responsables de pertes très élevées de l'ordre de 60 dB/m à 3 µm. Cela rend les fibres en verre de silice inexploitables dans l'IR moyen. C'est pourquoi d'autres types de matériaux sont nécessaires pour réaliser des cavités à verrouillage de modes émettant à de plus hautes longueurs d'onde.

I.4. Matériaux hôtes de fibres dans l'infrarouge moyen

Le bord rouge de la fenêtre de transparence d'un matériau diélectrique est lié à l'absorption multi-phonons. L'absorption multi-phonons se manifeste lors de l'absorption d'un photon par les molécules de la matrice vitreuse provoquant une vibration des liaisons atomiques (ou mode vibrationnel) suivie de l'émission de plusieurs phonons. La limite haute en longueur d'onde de la plage de transparence est déterminée par le début d'une forte absorption multi-phonons. Il existe trois grandes familles de verres pour les fibres optiques : les fibres optiques en verre d'oxyde (en verre de silice, en verre d'oxyde de germanium, en verre d'oxyde de tellure), en chalcogénure ou en fluorure.

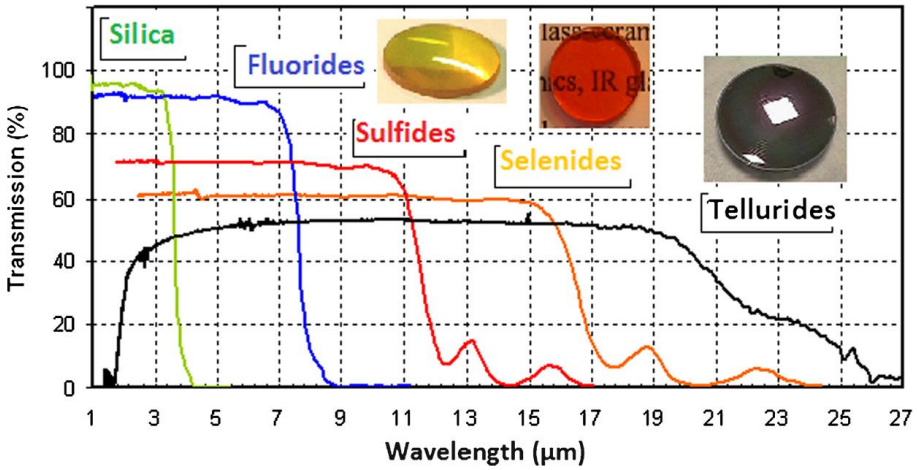


Figure I.6 : Fenêtres de transmission des verres de silice, de fluorure et de chalcogénure [32]

Les fibres en verre de silice SiO_2 ont un bord d'absorption infrarouge situé généralement à 2 µm. Les pertes d'absorption dans ce verre augmentent d'une façon significative au-delà de 1,7 µm. Une fibre de silice peut être exploitée jusqu'à 2,4 µm si sa longueur est relativement courte. Ceci est lié au mode d'étirement des liaisons Si=O, qui a une énergie de phonon de l'ordre de 1150 cm^{-1}. Ceci signifie qu'une émission d'un phonon nécessite une absorption d'un photon à une longueur d'onde optique d'environ 9 µm. Or dans le cas du processus d'absorption multi-phonons, une absorption significative commence déjà pour les longueurs d'onde inférieures à 2 µm. Afin de décaler l'absorption multi-phonons plus loin dans

Licence CC BY-NC-ND 3.0

l'infrarouge et réduire l'énergie de phonon, on peut donc utiliser des matériaux avec des atomes plus lourds (les verres de chalcogénure) ou des verres avec des liaisons ioniques faibles (les verres fluorés).

I.4.1. Fibres optiques en verre d'oxyde de germanium

L'une des solutions utilisées pour baisser l'énergie de phonon et ainsi repousser la barrière d'absorption multi-phonons est le dopage optique des fibres en silice. Le matériau le plus fréquemment utilisé pour les fibres optiques est le verre en silice dopée en dioxyde de germanium GeO_2. Sachant que le dioxyde de germanium a une énergie de phonon plus faible que le dioxyde de silice (900 cm^{-1}), un fort dopage en GeO_2 permet d'étendre la transmission des fibres optiques dans l'infrarouge moyen avec des pertes relativement faibles. Les pertes optiques d'un morceau de verre de dioxyde de germanium mesuré à 2 µm sont de 0,22 dB/km et restent faibles lorsque la longueur d'onde augmente, 0,2 dB/m à 3 µm [33]. L'indice de réfraction et l'indice non linéaire des fibres dopées en germanium dépendent de la concentration de dopage et l'on retrouve des fibres optiques avec des indices non linéaires deux fois supérieurs à celui des fibres en verre de silice dans le cas d'un fort dopage [34]. La bande de transmission de ces fibres optiques dépend également du taux de dopage, elle peut s'étendre jusqu'à 3,2 µm avec un dopage de 98 % en germanium. Ce type de fibre a une longueur d'onde de dispersion nulle (*Zero Dispersion Wavelength* ZDW) autour de 1,7 µm et il est facilement soudable aux fibres en verre de silice ce qui a offert la possibilité du développement de source complètement fibrées pour la génération de supercontinuum [35] ou pour l'auto-décalage solitonique à 2,9 µm [36]. Bien que les fibres en verre de silice fortement dopées en germanium offrent plusieurs avantages, elles sont limitées en transmission dans le moyen infrarouge (3,2 µm). De plus, ces fibres présentent généralement des aires effectives faibles, ce qui limite l'énergie de l'impulsion guidée.

I.4.2. Fibres optiques en verre d'oxyde de tellure

La famille des verres de tellurite a été découverte par Stanworth en 1952 [37]. Depuis lors, de nombreux systèmes de verre à base de dioxyde de tellure TeO_2 ont été étudiés et les premiers développements de fibres de tellurite ont été signalés dans les années 1990 [38]. Les fibres de verre de tellurite présentent un grand intérêt sur une large gamme de longueurs d'onde infrarouges en tant que guides d'onde ou supports de gain pour les lasers à fibre et les amplificateurs à fibre optique dopée aux terres rares. Les verres à base de tellurite sont généralement composés de 60 à 90 % de molécule TeO_2 avec de nombreux types de composants secondaires tels que les terres alcalines et les oxydes alcalins (comme le baryum Ba, le lithium Li, le magnésium Mg, etc.). Ils ont une énergie de phonon relativement faible de l'ordre de 650-800 cm^{-1}, un indice de réfraction élevé (n = 1,8-2,3) et un indice de réfraction non linéaire élevé ($n_2 = 10^{-19}$ à 10^{-18} m^2/ W). Il existe plusieurs compositions pour les fibres en dioxyde de tellure. Parmi elles on trouve : le système $TeO_2 – ZnO – R_2O$ (avec R correspondant aux terres et oxydes alcalins) qui est utilisé pour la fabrication de fibres à faibles pertes, le système TBZL ($TeO_2 – Bi_2O_3 – ZnO – Li_2O$) et le système TBZN ($TeO_2 – Bi_2O_3 – ZnO – Na_2O$) qui ont considérablement amélioré la stabilité thermique du verre. Le ZDW du verre d'oxyde de tellure pur se situe aux alentours de 1,68 µm [39]. Une fois mélangé avec un autre composé chimique, tel que l'oxyde de zinc ZnO ou l'oxyde de baryum BaO, le zéro de dispersion se déplace à plus de 2 µm (λ_{ZDW} = 2,24 µm et λ_{ZDW} = 2,29 µm respectivement) [39, 40]. Ce déplacement est défavorable compte tenu des longueurs d'onde de pompe disponibles. Ce type de fibre est couramment utilisé, grâce à son indice non linéaire élevé, pour la génération

Licence CC BY-NC-ND 3.0

de supercontinuum cohérent [41, 42]. Les fibres microstructurées en tellure sont une solution permettant le décalage du zéro de dispersion vers les basses longueurs d'onde donnant la possibilité d'exploiter l'auto-décalage en fréquence des solitons vers l'infrarouge moyen. Des solitons décalés jusqu'à 2,65 µm par SSFS ont été déjà publiés dans ce type de fibre, cependant l'énergie reste limitée à quelques dizaines de picojoules en raison de leur fort coefficient de non-linéarité [43].

Bien que l'absorption multi-phonons représente la limite fondamentale de la transmission IR d'un matériau quelconque, cette dernière est également limitée par les impuretés dans les verres. En particulier, les groupes hydroxyle (OH^-) présentent de fortes bandes d'absorption dans le MIR. D'une part, les fibres optiques en verres d'oxyde présentent une liaison O-H significativement élevée, ce qui limite leur transmission dans l'infrarouge moyen. D'autre part, les fibres en dioxyde de tellure et germanium présentent un indice non linéaire élevé et il n'existe toujours pas de techniques capables de fabriquer des fibres optiques fortement dopées en dioxyde de germanium à grande surface modale. Ces spécifications limitent la fenêtre de transparence des fibres en verre d'oxyde ainsi que la quantité d'énergie par impulsion qu'elles peuvent transmettre à cause de leur forte non-linéarité due à leur surface modale limitée.

I.4.3. Fibres optiques en verre de chalcogénure

Les verres de chalcogénure sont une classe de verres non oxydés qui sont principalement composés d'un ou plusieurs éléments chalcogènes (soufre S, sélénium Se et tellure Te) alliés à des éléments métalloïdes tels que le germanium Ge, l'arsenic As et l'antimoine Sb. Ces verres possèdent typiquement une large région de transparence infrarouge avec une faible énergie de phonon (autour de 300 cm^{-1}) [44], un indice de réfraction et une non-linéarité optique élevés. Le bord d'absorption infrarouge des verres de chalcogénure est déterminé par la composition de la structure utilisée. Le déplacement du bord d'absorption se fait généralement par les chalcogènes les plus lourds, tels que les éléments sélénium Se et tellure Te. Les fenêtres de transmission spectrale utilisables pour les fibres en verre de chalcogénure, comme toute autre fibre optique, sont considérablement limitées par rapport à la forme massive (*bulk*). Selon la composition, les fibres à base de soufre, de sélénium et de tellure transmettent entre environ 1 et 6 µm, 1,5 et 9 µm ou 2 et 12 µm, respectivement [45, 46]. Les fibres en verre de chalcogénure ont en général des indices de réfraction plus grands que les autres verres, en raison du degré considérable de polarisabilité des éléments chalcogènes. L'indice de réfraction des verres de chalcogénure peut aller de 2,5 pour les verres en trisulfure d'arsenic As_2S_3 à 3,2 pour les verres à fortes concentrations de tellure. Pour les fibres optiques ou les lentilles en verre de chalcogénure, l'indice de réfraction élevé signifie que les pertes optiques dues aux réflexions de Fresnel sur les surfaces peuvent dépasser 17 % sur chaque face. Des revêtements antireflets (AR) sont nécessaires pour réduire ce taux de pertes élevé. Les revêtements AR commerciaux, couramment appliqués sur les faces des fibres à base de silice, nécessitent des températures très élevées pour assurer une bonne densification. Or, en raison de leur température de fusion relativement basse, les verres de chalcogénure ne sont pas aussi facilement revêtus. Les verres de chalcogénure ont des indices non linéaire n_2 très élevés qui peuvent atteindre des valeurs 1000 fois supérieures à celle de l'indice de réfraction non linéaire du verre de silice [45, 47]. On trouve aujourd'hui divers types de fibres optiques en verre de chalcogénure dans le commerce, en particulier celles à base des binaires As-S et As-Se [48, 49]. La longueur d'onde de dispersion nulle ZDW des verres en chalcogénure est toujours située aux grandes longueurs d'onde. Par exemple, le ZDW des

Licence CC BY-NC-ND 3.0

verres en As_2S_3 se situe autour de 4,5 µm [50], 6,7 µm pour le verre en $Ge_{11,5}As_{24}Se_{64,5}$ [51], 7,4 µm pour l'As_2Se_3 [17], et 10,5 µm pour le $Ge_{20}As_{20}Se_{15}Te_{45}$ [52].

Ces dernières années, les fibres microstructurées en chalcogénure sont devenues populaires grâce à leur dispersion réglable en longueur d'onde et à leur non-linéarité élevée. Ces deux paramètres ont permis à ces fibres de se mettre en avant dans le domaine de la génération de supercontinuum dans le moyen infrarouge [18, 53]. Néanmoins, on ne trouve que peu de travaux concernant l'émission laser dans l'infrarouge moyen dans des massifs ou des fibres optiques en verre de chalcogénure dopés aux terres rares [54, 55]. Cela est dû principalement aux pertes optiques causées par les impuretés d'hydrogène dans ces verres. En outre, les fibres en chalcogénure ne se présentent pas comme de bons candidats concernant l'auto-décalage solitonique à cause de leurs indices non linéaires trop élevés et de la difficulté à atteindre le régime de dispersion anormale, ce qui rend ce domaine peu exploité à ce jour. On note toutefois quelques résultats encourageants. Par exemple, des solitons ont été générés dans une fibre microstructurée hybride $AsSe_2$-As_2S_5 puis auto-décalés à 3,419 µm à partir d'une source (oscillateur paramétrique optique OPO) émettant des impulsions de 200 fs à 2,8 µm. La fibre présentait un indice non linéaire élevé ($n_2 = 1{,}1\times10^{-17} m^2W^{-1}$ à 1,55 µm), un ZDW décalé à 2,759 µm et un diamètre de cœur de 1,32 µm. Le pompage de la fibre était légèrement au dessus du ZDW, dans le régime anormal, et la génération de solitons décalés a été observée en fonction de la puissance moyenne injectée dans la fibre. À cause de la forte non-linéarité de la fibre, il n'y avait pas une génération de soliton unique et l'énergie contenue dans le spectre était relativement faible (1,8 nJ) [56]. Tout comme les fibres en verre d'oxyde, la transmission optique dans les fibres en verre de chalcogénure est limitée par les impuretés dans le verre lié principalement aux relations O-H et aux liaisons moléculaires entre les chalcogènes et l'hydrogène (S-H, Se-H).

I.4.4. Fibres optiques en verre fluoré

En plus des verres en dioxyde de germanium ou de tellure et des verres de chalcogénure, les fluorures (ou verres fluorés) ont utilisé avec succès pour les applications aux grandes longueurs d'onde. La découverte de ce verre par Michel Poulain à l'Université de Rennes en 1974 a lancé des recherches intensives dans les années 1980 et 1990 pour développer des fibres à base des verres fluorés à très faibles pertes. Il existe aujourd'hui deux grandes familles de fibres optiques en verre fluoré : les fibres ZBLAN à base de fluorozirconate ZrF_4 (ZrF_4-BaF_2-LaF_3-AlF_3-NaF) et les fibres à base de fluoroindate InF_3 (InF_3-ZnF_2-SrF_2-BaF_2). Les verres en fluorozirconate ont une énergie de phonon de l'ordre de 580 cm^{-1} et une transparence qui s'étend jusqu'à 7 µm (en massif). Les verres en fluoroindate présentent une énergie de phonon de l'ordre de 510 cm^{-1} et une transparence qui s'étend jusqu'à 8 µm (en massif). La transparence des fibres optiques ZBLAN et InF_3 est plus étroite : 4 µm et 4,5 µm avec une transmission de > 90 % entre 1-3,5 µm et 2-4 µm pour 10 m de fibre respectivement. Les verres de fluorure de métaux lourds sont les seuls matériaux qui peuvent être exploités dans des fibres optiques de haute qualité et qui transmettent la lumière de l'ultraviolet à l'infrarouge moyen sans aucun pic d'absorption. Aujourd'hui, la société « Le Verre Fluoré » en France propose divers choix au niveau des fibres optiques ZBLAN et InF_3. Des fibres optiques ZBLAN et InF_3 monomodes avec des diamètres de cœur allant de 6,5 µm à 14 µm et de 7,5 µm à 9,5 µm respectivement sont commercialisées. Ces fibres optiques ont prouvé leur efficacité pour le guidage dans l'infrarouge moyen. Les valeurs d'indice de réfraction et de l'indice non linéaire des fibres en verre fluoré dépendent de leur composition, mais sont légèrement supérieures à ceux de la silice généralement. Les indices de réfraction ont des valeurs autour

Licence CC BY-NC-ND 3.0

de 1,5. Les valeurs rapportées pour l'indice de réfraction non linéaire sont autour de [2,1 ; 5,4]×10^{-20} m²/W pour les fibres ZBLAN [57] et [3,2 ; 4,3]×10^{-20} m²/W pour les fibres InF_3 [58]. Le ZDW des fibres en verre fluoré conventionnelles à saut d'indice est inférieur à celui des fibres en dioxyde de tellure ou en chalcogénure. Il se situe autour de 1620-1800 nm selon la composition du verre utilisé [59]. Bien que les fibres optiques en verre fluoré, en comparaison des autres types de fibre infrarouge, présentent de bonnes spécifications pour une émission directe ou par SSFS d'impulsions ultracourtes à haute énergie dans l'infrarouge moyen, elles souffrent encore de quelques imperfections. Les fibres en verres fluorés ont une résistance mécanique inférieure à celle des fibres de silice et se cassent facilement. Quand on est habitué à manipuler des fibres en silice à haute résistance, on trouve beaucoup de mal à manipuler ce type de fibres. Cette fragilité a posé beaucoup de problèmes principalement sur le dénudage et la clive. Ces dernières années, la fabrication de ce type de fibres a connu de nouveaux progrès et les fibres sont plus résistantes qu'auparavant. Les fibres actuelles sont bien meilleures et peuvent être clivées à l'aide d'équipements standards en adaptant les paramètres avec les propriétés du matériau de la fibre en question. Le dénudage des fibres actuelles a aussi connu des améliorations et peut se faire mécaniquement pour certaines fibres à double gaine. Des améliorations des propriétés mécaniques des fibres de fluorure sont encore à envisager afin de s'approcher de la résistance des fibres en silice et abandonner le gel à dénuder à base de dichlorométhane (composé organique toxique et dangereux pour la santé).

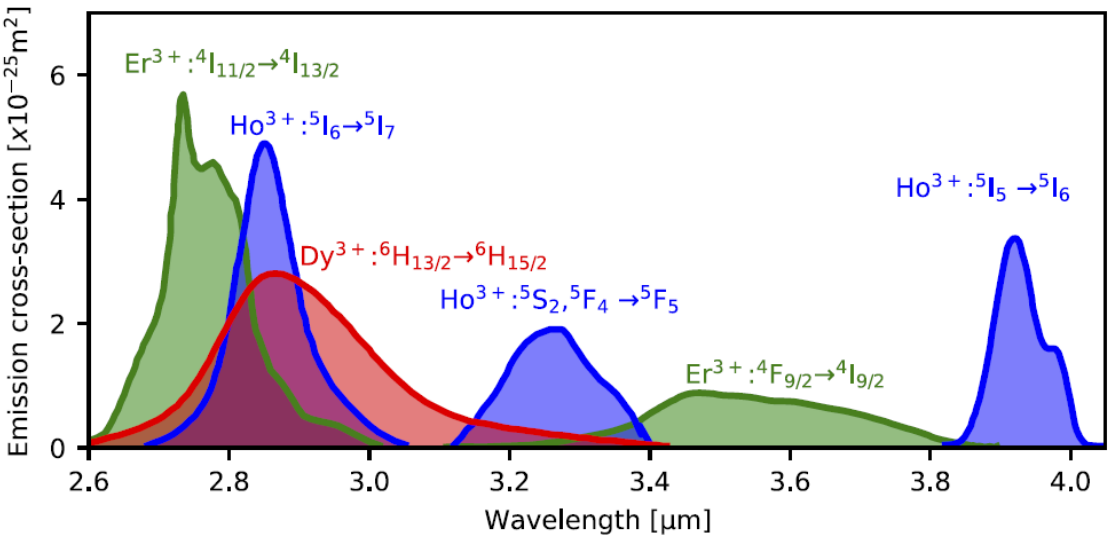


Figure I.7 : Sections efficaces d'émission dans l'infrarouge moyen des principaux ions trivalents de terre rare dilués dans une matrice fluorée [60]

La faible énergie de phonon et la grande solubilité des terres rares dans les matrices en verres fluorés rendent leur dopage aux terres rares accessible. Le dopage des fibres en verre fluorées avec des ions terres rares offre un rendement bien meilleur que dans une matrice en silice. Ceci a ouvert la voie vers l'émission directe dans l'infrarouge moyen. Sur la figure I.7, on trouve les différentes transitions des trois principaux ions de terres rares (l'erbium, l'holmium et le dysprosium) émettant dans l'infrarouge moyen. Le premier laser continu à fibre fluorée dopée à l'erbium a été démontré en 1988 émettant à 2,7 µm [61]. Depuis, d'autres lasers ont été développés dans des fibres optiques en verre fluoré dopées aux terres rares [62-64].

Licence CC BY-NC-ND 3.0

I.5. État de l'art des cavités à verrouillage de modes à base de fibres optiques dans l'IR moyen

Les recherches sur les lasers à fibre ultrarapides dans l'IR moyen ont réalisé d'énormes progrès ces dernières années. L'émission pulsée directe dans le MIR se fait généralement autour de 2,8 µm, dans des cavités à verrouillage de modes par rotation non linéaire de la polarisation. Les premières cavités à verrouillage de modes ont été développées par deux groupes de recherche à peu près au même moment. En 2015, Duval *et al.* de l'Université Laval ont réalisé la première source d'impulsions à verrouillage de modes par NPR [65]. Une impulsion ultracourte avec une durée temporelle de 207 fs et une puissance de crête de 3,5 kW a été obtenue directement en sortie de 3 m de fibre optique en verre fluoré dopée à l'erbium. La même année, Hu *et al.* de l'université Macquarie ont signalé la génération d'impulsions d'une durée de 497 fs avec 6,4 kW à 2793 nm en sortie d'une cavité à verrouillage de modes par NPR dans une fibre optique ZBLAN dopée à l'erbium [66]. En 2016, Antipov *et al* ont publié un laser à fibre ZBLAN dopée Ho^{3+}et Pr^{3+} dans une cavité à verrouillage de modes basée sur la rotation non linéaire de polarisation. Le laser a produit des impulsions de 180 fs avec une puissance de crête de 37 kW à 2876 nm [67]. Cette durée d'impulsion a été encore réduite récemment à 131 fs à 2,8 µm dans un laser à fibre ZBLAN dopée à l'Er^{3+}. À ma connaissance, c'est la durée la plus courte pour une impulsion émise directement par un oscillateur à 2,8 µm [68].

Cependant, le développement de lasers à fibre à verrouillage de modes au-delà de 3 µm a été entravé par l'absence d'un absorbant saturable robuste. En 2018, Qin *et al.* ont développé un absorbant saturable en phosphore noir et ont démontré un verrouillage de modes dans un laser à fibre ZBLAN dopée Er^{3+} pompée à deux longueurs d'onde de 970 et 1973 nm. La durée d'impulsion n'a pas été mesurée, mais estimée à quelques dizaines de picosecondes en limite de Fourier par une mesure de la largeur spectrale de 4,7 nm à 3,5 µm [69]. Très récemment, en 2022, le même groupe a fabriqué un absorbant saturable en InAs/GaSb permettant un verrouillage de modes à 3,5 µm [70]**.** Ceci a permis de générer des impulsions de 14,8 ps dans une cavité laser à fibre ZBLAN dopée à l'erbium. La première cavité à verrouillage de modes par NPR émettant des impulsions sub-ps au-delà de 3 µm a été réalisée en 2019 par Wang *et al* [71]. Une impulsion de 828 fs avec une puissance crête de 4,2 kW a été obtenue dans une fibre ZBLAN dopée au dysprosium autour de 3,1 µm. Récemment, en 2021, Bawden *et al*. ont publié le premier laser en régime femtoseconde à verrouillage de modes fonctionnant à 3,5 µm [72]. Des impulsions de 580 fs avec une puissance crête de 5,5 kW ont été obtenues en sortie d'une cavité à verrouillage de modes par NPR dans une fibre ZBLAN dopée à l'erbium doublement pompée à 977 et 1973 nm.

L'émission directe dans le moyen-infrarouge a connu d'énormes progrès. On arrive aujourd'hui à générer des impulsions aussi courtes que 16 fs autour de 3 µm et avec des puissances crêtes qui atteignent les 2 MW après des étages d'amplification et de compression multi-solitonique [73, 74]. En 2022, Yu *et al*. ont publié un record au niveau de la puissance moyenne à 2,8 µm dans une cavité à verrouillage de modes suivie d'un amplificateur dans une fibre ZBLAN dopée à l'erbium pompée en contra-propagatif. Ce laser émettait des impulsions de 59 fs avec une puissance moyenne de 4,13 W [75]. L'émission directe par des cavités à verrouillage de modes par absorbant saturable, quant à elle, n'arrive toujours pas à atteindre le régime femtoseconde à cause du manque de matériaux adaptés à ce genre d'applications [76-78].

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Le tableau I.1 ci-dessus résume l'état de l'art des cavités à verrouillage de modes en émission directe dans des fibres optiques dopées aux terres rares. La puissance crête et la durée d'impulsion sont celles issues directement en sortie des cavités sans utilisation d'amplificateurs externes.

Tableau I.1 : État de l'art des cavités à verrouillage de modes dans le MIR

Année	λ_0 [µm]	Durée d'impulsion [fs]	Puissance crête $\hat{P}$ [kW]	Fibre active	Type de verrouillage de modes	Université	Ref
2015	2,8	207	3,5	fluorée dopée au Er^{3+}	NPR	Université Laval, Canada	[65]
2015	2,793	497	6,4	ZBLAN dopée au Er^{3+}	NPR	Université de Sydney, Australie	[66]
2016	2,876	180	37	ZBLAN dopée au Ho^{3+}:Pr^{3+}	NPR	Université Macquarie, Australie	[67]
2019	3,1	828	4	ZBLAN dopée au Dy^{3+}	NPR	Université Laval, Canada	[71]
2020	2,78	131	23	ZBLAN dopée au Er^{3+}	NPR	Université de Shanghai, Chine	[68]
2021	3,5	580	5,5	ZBLAN dopée au Er^{3+}	NPR	Université d'Adelaïde, Australie	[72]

I.6. Conclusion

Dans ce chapitre, j'ai abordé le principe de fonctionnement d'une cavité laser et du verrouillage passif de modes. Celui-ci permet la génération d'impulsions courtes sub-ps dans des bandes spectrales liées aux bandes d'émission des milieux actifs et aux bandes d'opération des absorbants saturables dans la cavité. Avec une meilleure qualité de faisceau, un faible coût et une maintenance facile, les lasers ultrarapides à fibre se présentent comme une solution idéale pour remplacer les sources paramétriques et les lasers à gaz dans l'infrarouge moyen. Les cavités à verrouillage de modes dans des fibres optiques en silice dopées aux terres rares (Ytterbium Yb^{3+}, Erbium Er^{3+}, Thulium Tm^{3+}, Holmium Ho^{3+}) sont couramment utilisées aujourd'hui dans le proche infrarouge. Le développement des cavités à verrouillage de modes dans l'infrarouge moyen est très récent (première démonstration en 2015) et connait un essor mondial en raison de l'amélioration constante des performances des fibres optiques fluorées dopées aux terres rares.

La découverte du verre fluoré et le développement des fibres ZBLAN et InF_3 ces dernières années a en effet ouvert une autre voie pour le développement des cavités à verrouillage de modes dans le MIR. La faible énergie de phonon et la grande solubilité des terres rares dans les matrices en verres fluorés rendent leur dopage aux terres rares accessibles. En exploitant la bande d'émission des ions Erbium Er^{3+}, Dysprosium Dy^{3+}, Holmium Ho^{3+} dans des fibres optiques ZBLAN, on arrive aujourd'hui à mettre au point des cavités passives à verrouillage de modes délivrant des impulsions sub-ps à 2,8 µm et à 3,5 µm.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Ces progrès sont remarquables, mais hélas restent insuffisants. Face à l'émission discrète des milieux à gain dans les cavités fibrées, une autre approche est nécessaire afin de produire une source laser ultracourte accordable en longueur d'onde dans l'IR moyen. Ceci peut être réalisé en développant l'optique non linéaire fibrée dans l'infrarouge. Les fibres optiques en verre fluoré, proposées principalement par la société Le Verre Fluoré, se présentent comme de bons candidats pour envisager la réalisation d'une source laser à haute énergie par auto-décalage Raman des solitons depuis l'infrarouge proche. Avant d'aborder plus en détail les sources à décalage solitonique, je vais d'abord commencer par introduire, dans le chapitre suivant, les notions mathématiques des impulsions courtes, leur propagation dans des fibres optiques passives et les moyens de leur caractérisation.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Chapitre II. Propagation et caractérisation d'impulsions ultrabrèves

II.1. Introduction

Une impulsion courte est une représentation du champ électrique, dans le domaine temporel et spatial, d'une superposition linéaire d'un très grand nombre d'ondes monochromatiques colinéaires de même polarisation et de fréquences différentes se propageant dans une même direction donnée dans la cavité laser.

La représentation du champ électrique d'une impulsion lumineuse est le produit d'une onde porteuse qui oscille à la fréquence ω_0, fréquence fondamentale du laser, et d'une fonction enveloppe.

Par souci de simplicité, on traite généralement le champ électrique comme polarisé linéairement. Nous n'avons donc besoin d'en considérer qu'une seule composante. C'est ce qu'on appelle l'« approximation scalaire », dans laquelle nous ignorons le caractère vectoriel du champ électrique impulsionnel.

II.2. Représentation analytique d'une impulsion courte

II.2.1. Profil temporel : intensité et phase

Le champ électrique de l'impulsion peut potentiellement être une fonction compliquée de l'espace et du temps, mais, comme les impulsions sur lesquelles nous travaillons sont propagées dans des fibres optiques monomodes, nous ignorerons la partie spatiale du champ. Nous pouvons écrire la dépendance temporelle du champ électrique réel en fonction du champ complexe comme :

$$\varepsilon(t) = \frac{1}{2}\left(\sqrt{I(t)}.\exp\left(i\left(\omega t - \emptyset(t)\right)\right) + C.C\right) \qquad (\text{II-1})$$

I(t) et Ø(t) sont l'intensité temporelle et la phase temporelle de l'impulsion.

Nous supposons que, malgré leur nature ultrarapide, I(t) et Ø(t) varient lentement par rapport au terme à variation rapide exp(iωt) de l'onde porteuse. Cette hypothèse est bonne pour toutes les impulsions sauf les plus courtes. Ceci permet de supprimer le terme rapide et éviter de tracer toutes les oscillations du champ de l'impulsion. La prise en compte du complexe conjugué du champ complexe (CC) permet de rendre l'expression ε(t) réelle. On déduit ainsi que le champ réel ε(t) peut s'écrire en fonction du champ complexe $\tilde{E}(t)$ de la façon suivante :

$$\varepsilon(t) = \frac{1}{2}\left(\tilde{E}(t) + \tilde{E}^{*}(t)\right) = Re\left(\tilde{E}(t)\right) \qquad (\text{II-2})$$

Le traitement des impulsions courtes se fait généralement dans le domaine complexe. Cela simplifie considérablement les calculs mathématiques. Cette méthode est appelée « la représentation analytique du champ réel ε(t)». Cela veut dire que nous ignorons le terme complexe conjugué et nous traitons uniquement le champ complexe $\tilde{E}(t)$.

Le champ complexe $\tilde{E}(t)$ nous permet d'introduire l'amplitude temporelle $|\tilde{E}(t)|$ et la phase temporelle Ø(t) :

$$\tilde{E}(t) = |\tilde{E}(t)|\exp\left(-i\emptyset(t)\right) = \sqrt{I(t)}\exp\left(-i\emptyset(t)\right) \qquad (\text{II-3})$$

Licence CC BY-NC-ND 3.0

L'intensité temporelle $I(t)$ est le carré de l'amplitude temporelle $A(t) = |\tilde{E}(t)|$ et la phase temporelle peut être calculée à partir de l'équation suivante :

$$\emptyset(t) = -\arctan\left(\frac{\mathrm{Im}\left(\tilde{E}(t)\right)}{\mathrm{Re}\left(\tilde{E}(t)\right)}\right) \qquad (\text{II-4})$$

La phase temporelle peut être écrite sous la forme de son développement en série de Taylor autour de l'instant t_0 :

$$\emptyset(t) = \emptyset_0+\emptyset_1(t-t_0)+\frac{1}{2!}\emptyset_2(t-t_0)^2+\frac{1}{3!}\emptyset_3(t-t_0)^3\ldots \qquad (\text{II-5})$$

où $\emptyset_0,\emptyset_1,\emptyset_2\ldots$ sont respectivement les coefficients de Taylor d'ordre 0, 1, 2 …

II.2.2. Profil spectral : intensité et phase

La représentation analytique du champ de l'impulsion dans le domaine fréquentiel peut être calculée en appliquant la transformée de Fourier dans le domaine temporel par :

$$\tilde{E}(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty}\tilde{E}(t)\exp(-i\omega t)\,dt \qquad (\text{II-6})$$

$\tilde{E}(\omega)$ est une grandeur complexe. On introduira son module, ou amplitude spectrale, $A(\omega) = |\tilde{E}(\omega)|$, et sa phase spectrale $\psi(\omega)$:

$$\tilde{E}(\omega) = |\tilde{E}(\omega)|\exp\left(i\psi(\omega)\right) = \sqrt{S(\omega)}\exp\left(i\psi(\omega)\right) \qquad (\text{II-7})$$

L'intensité spectrale $S(\omega)$ est le carré de l'amplitude spectrale $|\tilde{E}(\omega)|$ et la phase spectrale peut être calculée à partir de l'équation suivante :

$$\psi(\omega) = -\arctan\left(\frac{\mathrm{Im}\left(\tilde{E}(\omega)\right)}{\mathrm{Re}\left(\tilde{E}(\omega)\right)}\right) \qquad (\text{II-8})$$

La phase spectrale peut être écrite sous la forme de son développement de Taylor autour de la pulsation ω_0 :

$$\psi(\omega) = \psi_0+\psi_1(\omega-\omega_0)+\frac{1}{2!}\psi_2(\omega-\omega_0)^2+\frac{1}{3!}\psi_3(\omega-\omega_0)^3\ldots \qquad (\text{II-9})$$

où $\psi_0,\psi_1,\psi_2\ldots$ sont respectivement les coefficients de Taylor d'ordre 0, 1, 2 …

L'amplitude spectrale d'une impulsion courte est centrée sur une pulsation centrale ω_0 :

$$\omega_0 = <\omega> = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty}\omega|\tilde{E}(\omega)|^2 d\omega}{\int_{-\infty}^{+\infty}|\tilde{E}(\omega)|^2 d\omega} \qquad (\text{II-10})$$

De la même façon, la représentation analytique du champ de l'impulsion dans le domaine temporel peut être calculée en appliquant la transformée de Fourier inverse dans le domaine spectral par :

$$\tilde{E}(t) = TF^{-1}\left(\tilde{E}(\omega)\right) = \frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{+\infty}\tilde{E}(\omega)\exp(i\omega t)\,d\omega \qquad (\text{II-11})$$

Enfin, le profil spectral de l'impulsion peut s'écrire en fonction de la longueur d'onde λ plutôt qu'en fonction de la pulsation ω. Nous devons être capables de permuter entre les fréquences et les longueurs d'onde, car les travaux théoriques (impliquant des transformées de Fourier)

Licence CC BY-NC-ND 3.0

utilisent la fréquence, tandis que les expériences (impliquant des spectromètres) utilisent la longueur d'onde. La phase spectrale par rapport à la longueur d'onde est liée à la phase par rapport à la fréquence par :

$$\psi(\lambda) = \psi(\omega) \qquad \text{(II-12)}$$

Le spectre est un peu plus délicat. La façon la plus simple de voir comment ces deux quantités sont liées est de noter que l'énergie spectrale est toujours conservée, que nous la calculions en fonction de la fréquence ou de la longueur d'onde, ce que signifie que $\int_{-\infty}^{+\infty} S(\lambda)d\lambda = \int_{-\infty}^{+\infty} S(\omega)d\omega$. Ainsi :

$$S(\lambda) = \frac{2\pi c}{\lambda^2} S(\omega) \qquad \text{(II-13)}$$

II.2.3. Durée d'impulsion et largeur spectrale

Une impulsion optique est représentée toujours par sa forme temporelle/spectrale et sa phase temporelle/spectrale. L'impulsion peut prendre plusieurs formes, les plus courantes d'entre elles étant les formes d'impulsion gaussienne, sécante hyperbolique et lorentzienne. Le tableau II.1 ci-dessous résume les paramètres de formes d'impulsions ultracourtes les plus courantes dans les domaines temporel et fréquentiel.

La durée d'une impulsion dans le domaine temporel est représentée par τ avec un indice indiquant la forme de l'impulsion, comme τ_G pour une impulsion gaussienne et τ_S pour la sécante hyperbolique. τ est la largeur à 1/e de l'intensité déterminée à partir du centre de l'impulsion dans le domaine temporel.

La définition la plus fréquemment utilisée est basée sur la largeur totale à mi-hauteur (en anglais : *Full Width at Half Maximum* FWHM) de l'intensité en fonction du temps que je noterai ici Δt. Pour une impulsion gaussienne ou sécante hyperbolique, par exemple, cette durée est supérieure d'un facteur $2\ln(\sqrt{2})$ et de $2\ln\left(1+\sqrt{2}\right)$ aux valeurs de τ_G et τ_S respectivement.

Tableau II.1 : les différentes formes des impulsions ultracourtes

Forme	Amplitude temporelle A(t)	FWHM Δt	Amplitude spectrale A(ω)	FWHM $\Delta\omega$	Cst de Fourier TBP_{FWHM}
Gaussienne	$\exp\left(-\left(\frac{t}{\tau_G}\right)^2\right)$	$1{,}177.\tau_G$	$\exp\left(-\left(\frac{\omega\tau_G}{2}\right)^2\right)$	$\frac{2{,}355}{\tau_G}$	0,441
Sécante hyperbolique	$\mathrm{sech}(t/\tau_S)$	$1{,}763.\tau_S$	$\mathrm{sech}(\frac{\pi\omega\tau_S}{2})$	$\frac{1{,}122}{\tau_S}$	0,315
Lorentzienne	$\left(1+\left(\frac{t}{\tau_L}\right)^2\right)^{-1}$	$1{,}287.\tau_L$	$\exp(-2\lvert\omega\rvert\tau_L)$	$\frac{0{,}693}{\tau_L}$	0,142

Il existe une autre façon de définir la durée d'une impulsion. Il s'agit de la largeur rms (*root-mean-square) :*

$$\Delta\tau(\mathrm{rms}) = \sqrt{\frac{\int_{-\infty}^{+\infty} t^2\, I(t)dt}{\int_{-\infty}^{+\infty} I(t)\, dt}} \qquad \text{(II-14)}$$

Licence CC BY-NC-ND 3.0

$$\Delta\omega(\text{rms}) = \sqrt{\frac{\int_{-\infty}^{+\infty} t^2\, S(\omega) d\omega}{\int_{-\infty}^{+\infty} S(\omega)\, d\omega}}$$

D'un point de vue théorique, cette largeur est plus pertinente que la largeur à mi-hauteur puisqu'elle prend en compte les piédestaux de l'impulsion. Elle est particulièrement adaptée pour décrire des impulsions complexes. En revanche, expérimentalement, elle est difficile à évaluer.

Comme les caractéristiques temporelles et spectrales du champ sont liées les unes aux autres par des transformées de Fourier, la largeur spectrale $\Delta\omega$ et la durée d'impulsion Δt ne peuvent pas varier indépendamment. Il existe un produit « temps-fréquence » (*Time Bandwidth Product*, TBP) qui relie les largeurs à mi-hauteur spectrale et temporelle de l'intensité de l'impulsion selon :

$$\Delta\nu.\Delta t \geq \text{Cst de Fourier } TBP_{FWHM}$$

avec $\Delta\omega = 2\pi\Delta\nu$ (II-15)

TBP_{FWHM} est une constante numérique inférieure à 1 qui dépend de la forme réelle de l'impulsion. Une impulsion non chirpée (à dérive de fréquence nulle) est appelée « impulsion en limite de Fourier ». De telles impulsions présentent la durée la plus courte possible pour une largeur spectrale et une forme d'impulsion données.

II.3. Propagation d'une impulsion courte dans une fibre optique

En raison de la longue durée d'interaction avec la matière et du confinement étroit de la lumière à l'intérieur du cœur d'une fibre optique active ou passive, une impulsion ultracourte cumule un déphasage lors de sa propagation. Ce déphasage est lié aux propriétés de guidage et aux caractéristiques du matériau de la fibre. Il existe deux types de propagation : une propagation dite « linéaire » lorsque le champ électrique est de faible puissance et une propagation « non linéaire » quand on traite des impulsions brèves à haute énergie.

La polarisation totale induite $\vec{P}$ est donnée par la somme de la polarisation linéaire et la polarisation non linéaire du milieu.

$$\vec{P} = \vec{P}_{Lin} + \vec{P}_{NL}$$

avec
$$\vec{P}_{Lin} = \epsilon_0 \chi^{(1)} E$$
$$\vec{P}_{NL} = \epsilon_0 \chi^{(2)} E^2 + \epsilon_0 \chi^{(3)} E^3 + \ldots \quad \text{(II-16)}$$

ϵ_0: permittivité du vide

$\chi^{(j)}$: susceptibilité électronique d'ordre j

La susceptibilité du premier ordre $\chi^{(1)}$ est dite linéaire. Elle est à l'origine de la dispersion chromatique, de l'absorption et de la diffusion Rayleigh dans les fibres optiques. La susceptibilité de second ordre $\chi^{(2)}$ est responsable d'effets non linéaires tels que la génération de la seconde harmonique (*Second Harmonic Generation* SHG) et la génération de la somme de fréquences (*Sum Frequency Generation* SFG). Cette susceptibilité ne peut pas se produire dans les liquides, les gaz, les solides amorphes (comme le verre) et dans de nombreux cristaux présentant une symétrie moléculaire (le silicium Si par exemple). Ces matériaux sont dits

Licence CC BY-NC-ND 3.0

« centrosymétriques » et ne peuvent produire que des non-linéarités de susceptibilité impaire, dont $\chi^{(3)}$ est la plus intense [79]. Les effets non linéaires d'ordre 3 dus à la susceptibilité $\chi^{(3)}$ peuvent être exacerbés dans des fibres optiques. Ils sont regroupés en deux régimes. La réponse non linéaire dite « instantanée » par effet Kerr optique se manifeste au travers de divers phénomènes tels que l'automodulation de phase, la modulation de phase croisée, le mélange à quatre ondes, l'auto-raidissement de l'impulsion, tandis que la réponse non linéaire « retardée » se manifeste au travers de diverses diffusions stimulées inélastiques telles que la diffusion Raman stimulée et la diffusion Brillouin stimulée.

Étant donné que les processus de mélange à quatre ondes nécessitent un accord de phase difficile à obtenir dans les fibres optiques et que les impulsions qu'on traitera ici sont de durée temporelle inférieure à la picoseconde, on négligera par la suite le phénomène de diffusion Brillouin et les processus paramétriques. Durant cette thèse, on ne traitera que la réponse linéaire des fibres due à la dispersion chromatique et à l'atténuation et la réponse non linéaire due à l'effet Kerr et à la diffusion Raman stimulée.

La propagation d'une impulsion ultrabrève de haute puissance $\tilde{E}(z,t)$ à travers une fibre peut être étudiée en résolvant les équations de Maxwell. À travers l'équation de Schrödinger non linéaire généralisée donnée ci-dessous, une approximation du champ de l'impulsion par une enveloppe lentement variable permet de traiter la propagation des impulsions dans des fibres optiques.

$$\frac{\partial \tilde{A}(z,t)}{\partial z} = (\hat{D}+\hat{N})\tilde{A}(z,t) \qquad \text{(II-17)}$$

avec

$\hat{D}$ l'opérateur prenant en compte la dispersion et l'atténuation

$\hat{N}$ l'opérateur non linéaire prenant en compte les effets Kerr et Raman

II.3.1. Propagation linéaire : dispersion chromatique

Lorsqu'une impulsion optique se propage dans une fibre optique, elle interagit avec les matériaux constituant la fibre. La dispersion chromatique est reliée d'une part à la variation de l'indice de réfraction du milieu avec la fréquence n(ω) et, d'autre part, à l'effet de guidage qui dépend lui aussi de la fréquence. Les indices de réfraction des matériaux composant le cœur et la gaine d'une fibre optique sont calculables à l'aide d'un polynôme de Sellmeier. L'effet du guidage sur la constante de propagation doit aussi être pris en compte. Cet effet dépend des paramètres opto-géométriques de la fibre (diamètre de cœur et différence d'indice cœur/gaine). Cet effet se traduit par l'ajout d'une contribution du guide à la dispersion de matériau, pour constituer la dispersion chromatique (ou modale). L'effet du guidage peut être exploité pour modifier la courbe de dispersion à façon. Par exemple, il est possible de décaler la longueur d'onde de dispersion nulle ZDW ou λ_0 dans des fibres dites « à dispersion décalée » utilisées principalement dans les systèmes de télécommunication avec une λ_0 proche de 1550 nm.

La constante de propagation de l'impulsion dans une fibre optique est donnée par :

$$\beta(\omega) = \frac{\omega}{c} n_{eff}(\omega) \qquad \text{(II-18)}$$

À partir de la constante de propagation, on peut déduire plusieurs paramètres qui définissent l'impulsion optique. La vitesse de phase correspond à la vitesse de déplacement, dans l'espace

Licence CC BY-NC-ND 3.0

et dans le temps, d'un point quelconque constituant le champ de la porteuse de l'impulsion. La vitesse de phase dépend de la fréquence selon la relation suivante :

$$V_\phi(\omega) = \frac{\omega}{\beta(\omega)} = \frac{c}{n(\omega)} \qquad \text{(II-19)}$$

La vitesse de groupe correspond à la vitesse de propagation de l'enveloppe de l'impulsion. Elle peut être calculée comme suit :

$$V_G(\omega) = \left(\frac{\partial\beta}{\partial\omega}\right)^{-1} = \left(\frac{n(\omega)}{c} + \frac{\omega}{c}\frac{\partial n}{\partial\omega}\right)^{-1} \qquad \text{(II-20)}$$

La variation de la vitesse de groupe en fonction de la longueur d'onde est connue sous le nom de la dispersion de vitesse de groupe (*Group Velocity Dispersion* GVD) :

$$\begin{aligned} GVD(\omega) = \frac{\partial^2\beta}{\partial\omega^2} &= \frac{\partial}{\partial\omega}\left(\frac{n(\omega)}{c}\right) + \frac{\partial}{\partial\omega}\left(\frac{\omega}{c}\frac{\partial n}{\partial\omega}\right) \\ &= \frac{1}{c}\left(2\frac{\partial n}{\partial\omega} + \omega\frac{\partial^2 n}{\partial\omega^2}\right) \end{aligned} \qquad \text{(II-21)}$$

De manière générale, les effets de dispersion de la fibre sont pris en compte par le développement de la constante de propagation β en série de Taylor autour de la pulsation centrale du spectre de l'impulsion ω_0 :

$$\beta(\omega) = \beta_0 + \beta_1(\omega-\omega_0) + \frac{1}{2}\beta_2(\omega-\omega_0)^2 + \frac{1}{6}\beta_3(\omega-\omega_0)^3 + \ldots$$

avec

$\beta_j = \left(\frac{\partial^j\beta}{\partial\omega^j}\right)_{\omega=\omega_0}$ les dérivées d'ordre j de la constante de propagation autour de ω_0. (II-22)

On peut en déduire que :

$$\begin{aligned} \beta_0 &= \left.\frac{\omega}{V_\phi}\right|_{\omega=\omega_0} \\ \beta_1 &= \left.\frac{1}{V_G}\right|_{\omega=\omega_0} \\ \beta_2 &= GVD|_{\omega=\omega_0} \end{aligned} \qquad \text{(II-23)}$$

Pour $j > 3$, les termes β_j définissent «les dispersions d'ordre supérieur ». Dans cette partie théorique, je me limiterai aux dispersions d'ordre $j \leq 3$ pour illustrer les différentes phases spectrales et temporelles que peuvent acquérir les impulsions courtes au cours de leur propagation.

La dispersion chromatique peut être déduite de la dispersion de vitesse de groupe par :

$$D = -\frac{2\pi c}{\lambda^2}\beta_2 \qquad \text{(II-24)}$$

Dans un milieu non dispersif, l'onde porteuse et l'enveloppe se déplacent avec la même vitesse, ce qui implique que la forme de l'impulsion reste inchangée lors de sa propagation. Dans un milieu dispersif, chaque composante spectrale se déplace indépendamment et subit

Licence CC BY-NC-ND 3.0

son propre retard. Cela signifie que l'impulsion s'étale temporellement au fur et à mesure qu'elle se déplace le long de la fibre parce que les différentes ondes qui constituent l'impulsion ont des vitesses de phase différentes.

La propagation d'une impulsion optique dans une fibre optique dans un régime purement linéaire peut être traitée par l'équation de Schrödinger :

$$\frac{\partial \widetilde{A}(z,t)}{\partial z} = \widehat{D}.\widetilde{A}(z,t)$$

avec

$$\widehat{D} = -\frac{\alpha}{2} + \sum_{n=2}^{N} \frac{i^{n+1}}{n!} \beta_n \frac{\partial^n}{\partial T^n} \qquad \text{(II-25)}$$

α : les pertes de la fibre, N = l'ordre maximal du développement de Taylor de la constante de propagation et $T = t-\beta_1 z$: permet de faire coïncider à tout moment le référentiel temporel avec le centre de l'impulsion en prenant en compte l'impact de la vitesse de groupe $1/\beta_1$.

Les paramètres de l'impulsion lors des modélisations dans ce chapitre seront donnés sous la forme : forme d'impulsion, longueur d'onde, largeur spectrale, durée à mi-hauteur, durée à 1/e et énergie. Les paramètres de la fibre, dans cette partie, sont présentés ainsi : longueur de fibre, dispersion de vitesse de groupe.

La figure II.1 montre l'évolution temporelle et spectrale d'une impulsion gaussienne : $\lambda_0 = 1{,}56$ µm, $\Delta\lambda_p = 35{,}4$ nm, $\Delta t = 100$ fs, $\tau_G = 85$ fs et E = 0,6 nJ, se propageant dans une fibre SMF28 considérée sans pertes ($\alpha = 0$) dans un régime purement linéaire : L = 1 m, $\beta_2 = -2{,}37\times10^4$ fs²/m. La traversée d'un milieu dispersif de longueur L par une impulsion optique en limite de Fourier se traduit par un élargissement temporel de son profil d'intensité et l'accumulation d'une phase spectrale qui s'écrit :

$$\psi(\omega) = \beta(\omega).L \qquad \text{(II-26)}$$

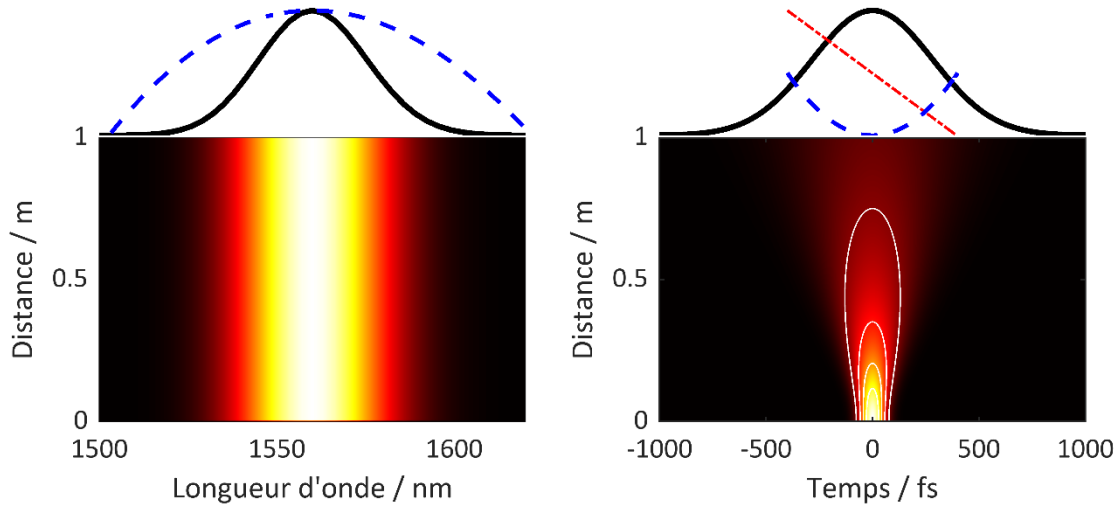


Figure II.1 : L'évolution temporelle et spectrale d'une impulsion gaussienne se propageant dans 1 m de fibre SMF28 dans un régime purement dispersif : en noir, les profils d'intensité, en bleu, les phases, en rouge, la fréquence instantanée de l'impulsion en sortie de fibre.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

II.3.1.1. Impact de la phase spectrale sur le profil temporel d'une impulsion gaussienne

J'ai étudié numériquement l'impact de la phase spectrale sur le profil temporel d'une impulsion optique de profil gaussien. Rappelons d'abord l'expression du champ complexe d'une impulsion d'enveloppe gaussienne dans le domaine spectral :

$$\tilde{E}(\omega) = \exp\left(-\left(\frac{\omega\tau_G}{2}\right)^2\right)\exp\left(i\psi(\omega)\right) \qquad (\text{II-27})$$

Différents termes de phase peuvent s'appliquer à cette impulsion à l'aide du développement de Taylor de l'équation (Eq. II.22). Commençons tout d'abord par étudier le cas où la phase spectrale est nulle $\psi(\omega) = 0$. Dans ce cas, le champ électrique complexe est dit « à phase nulle », ce qui signifie que $\tilde{E}(\omega)$ se réduit à son amplitude spectrale $\tilde{A}(\omega)$.

$$\tilde{E}(\omega) = \exp\left(-\left(\frac{\omega\tau_G}{2}\right)^2\right) \qquad (\text{II-28})$$

La figure II.2 montre une modélisation du profil temporel et spectral, intensité / phase, d'une impulsion gaussienne : $\lambda_0 = 1560$ nm, $\Delta\lambda_p = 35{,}4$ nm, $\Delta t = 100$ fs et $\tau_G = 85$ fs. Le produit temps-fréquence de l'impulsion est $TBP_{FWHM} = 0{,}441$. Il correspond, bel et bien, à une impulsion gaussienne en limite de Fourier.

La modélisation du champ électrique dans le domaine temporel est faite par la transformée de Fourier du champ électrique dans le domaine spectral :

$$\tilde{E}(t) = TF[\tilde{E}(\omega)] = \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{E}(\omega)\exp(-i\omega t)\frac{d\omega}{2\pi} \qquad (\text{II-29})$$

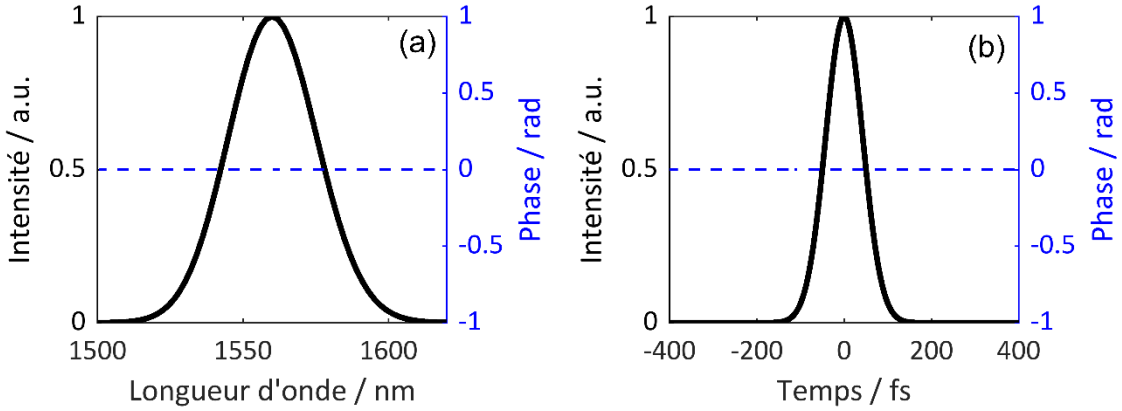


Figure II.2 : Impulsion gaussienne de largeur spectrale à mi-hauteur $\Delta\lambda_p = 35{,}4$ nm centrée à 1550 nm avec une phase spectrale nulle. **(a)** En noir, l'intensité spectrale normalisée S(ω), en bleu, la phase spectrale ψ(ω) (en rad). **(b)** En noir, l'intensité temporelle normalisée I(t), en bleu, la phase temporelle Ø(t) (en rad).

Ensuite j'ai appliqué à cette impulsion les autres types de phase séparément. Ici, je me suis limité à un ordre de phase ≤ 3. Les types de phase appliquées sont : la phase constante $\psi(\omega) = \psi_0$, la phase linéaire $\psi(\omega) = \psi_1(\omega-\omega_0)$, la phase quadratique $\psi(\omega) = \frac{1}{2}\psi_2(\omega-\omega_0)^2$ et la phase cubique $\psi(\omega) = \frac{1}{6}\psi_3(\omega-\omega_0)^3$.

La figure II.3(a-b) présente la même impulsion en limite de Fourier à laquelle j'ai appliqué une phase $\boldsymbol{\psi(\omega) = \psi_0 = \frac{\pi}{4}}$. On constate que cette phase spectrale constante se traduit par une

Licence CC BY-NC-ND 3.0

phase constante dans le domaine temporel. Ceci revient à dire que l'impulsion ne subit aucune dérive de fréquence, par conséquent, son profil d'intensité temporelle reste inchangé. L'impulsion maintient toujours sa largeur temporelle et spectrale d'origine, elle est toujours en limite de Fourier. Une phase constante ψ_0 correspond au glissement temporel du champ électrique sous l'enveloppe. Ce retard $\tau = \psi_0.T/2\pi$ vaut ici $\tau = T/8$. Cette phase correspond ainsi à la notion de CEP (*carrier-envelope phase*). Le contrôle de la CEP est fondamental dans les applications de physique des champs forts. Toutefois, les applications visées dans cette thèse (génération d'impulsions énergétiques dans le moyen-infrarouge puis génération de supercontinuum) ne nécessitent pas, dans un premier temps au moins, le contrôle de la CEP. Je n'étudierai donc pas ce concept dans la suite.

La figure II.3(c-d) montre l'influence de la phase linéaire d'une valeur de $\boldsymbol{\psi(\omega) = \psi_1(\omega-\omega_0)}$ avec $\boldsymbol{\psi_1 = 100\ fs}$. La phase linéaire dans le domaine spectral correspond à une phase nulle dans le domaine temporel. Tout comme la phase constante, ce type de phase ne modifie pas la forme temporelle l'impulsion qui reste en limite de Fourier. La phase spectrale linéaire se traduit par une translation linéaire de l'impulsion sur l'axe temporel de la valeur $\psi_1 = 100$ fs.

Les matériaux et guides d'onde présents dans les systèmes laser introduisent principalement des phases spectrales quadratiques et cubiques. Ces types de phases spectrales commencent à modifier la forme temporelle de l'impulsion. Ceci est montré sur la figure II.3(e-f) et II.3(g-h).

La figure II.3(e-f) montre l'impact d'une phase spectrale quadratique $\boldsymbol{\psi(\omega) = \frac{1}{2}\psi_2(\omega-\omega_0)^2}$ avec $\boldsymbol{\psi_2 = -2{,}37\times10^4\ fs^2}$. Cette phase quadratique conduit à un étalement temporel de l'impulsion. La largeur temporelle de l'impulsion est passée de 100 fs à 664 fs et le profil spectral reste toujours inchangé. Le coefficient temps-fréquence de l'impulsion passe de $TBP_{FWHM} \approx 0{,}441$ à $TBP_{FWHM} \approx 0{,}72$ ce qui veut dire que l'impulsion est à dérive de fréquence (*chirped pulse*). La phase temporelle, dans ce cas, est aussi quadratique.

La fréquence instantanée de l'impulsion est donnée par :

$$\omega(t) = \omega_0 - \frac{d\emptyset(t)}{dt} \qquad \text{(II-30)}$$

Elle varie linéairement avec le temps. Le signe de la dérive de fréquence est déduit à partir du signe de la pente de la fréquence instantanée. Ceci nous mène à déduire deux régimes de dispersion :

- Régime de dispersion anormale ($D > 0$ ou $\beta_2 < 0$) : les hautes fréquences (les basses longueurs d'onde) se propagent plus rapidement que les basses fréquences (les hautes longueurs d'onde). Il y a une génération d'une dérive de fréquence négative.
- Régime de dispersion normale ($D < 0$ ou $\beta_2 > 0$) : Les basses fréquences (les hautes longueurs d'onde) se propagent plus rapidement que les hautes fréquences (les basses longueurs d'onde). Il y a une génération d'une dérive de fréquence positive.

La phase quadratique peut être apportée la dispersion de la vitesse de groupe d'une fibre optique. Ce sera le phénomène linéaire prépondérant dans les systèmes propagatifs que j'étudierai dans ma thèse.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

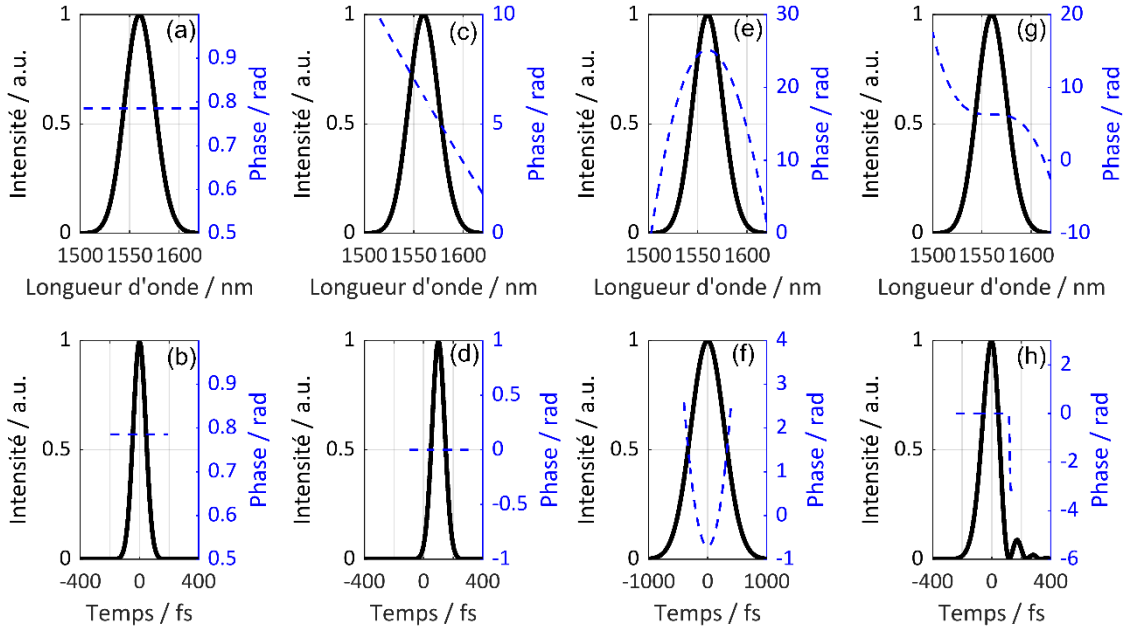


Figure II.3 : L'impact des différents types de phases spectrales sur une impulsion gaussienne en limite de Fourier avec $\Delta\lambda_p$ = 35,4 nm centrée à 1550 nm (la première colonne correspond au profil spectral S(ω)(en noir) et la phase spectrale (en bleu). La deuxième colonne présente le profil temporel I(t)(en noir) et la phase temporelle Ø(t) (en bleu). (a, b) : une phase spectrale constante $\psi_0 = \frac{\pi}{4}$. (c, d) : une phase spectrale linéaire ψ_1 = 100 fs. (e, f) : une phase spectrale quadratique $\psi_2 = -2{,}37\times10^4$ fs^2. (g, h) : une phase spectrale cubique $\psi_3 = 6\times10^5$ fs^3

Il existe des milieux, dans lesquels, l'impulsion peut accumuler une phase d'ordre supérieur, par exemple d'ordre 3, liée à la dispersion d'ordre 3 (*Third Order Dispersion*, TOD) correspondant, pour une fibre optique, à la pente de la courbe de dispersion chromatique. La phase spectrale cubique $\boldsymbol{\psi(\omega) = \frac{1}{6}\psi_3(\omega-\omega_0)^3}$ donne une variation quadratique du temps de groupe de l'impulsion $t_g(\omega) = d\psi(\omega)/d\omega$ avec la pulsation ω. Cela signifie que si la fréquence centrale de l'impulsion arrive en premier, les fréquences situées de part et d'autre de la fréquence centrale, $\omega_0 \pm \delta\omega$, arrivent plus tard. Les deux fréquences légèrement différentes provoquent des battements de l'intensité en fonction du temps, de sorte que les impulsions avec une distorsion de phase spectrale cubique présentent des oscillations après une impulsion principale (ou avant celle-ci si le signe de ψ_3 est négatif). La figure II.3(g-h) montre que l'impulsion est passée d'une durée de **100 fs à 132 fs** avec des rebonds (des piédestaux) en aval du lobe principal lorsqu'on lui implique une phase cubique $\boldsymbol{\psi_3 = 6\times10^5}$ **fs**^{3}.

II.3.2. Propagation non linéaire : l'automodulation de phase

Tout comme les termes de phase spectrale (GVD, TOD) peuvent modifier le profil temporel de l'impulsion, la phase temporelle peut avoir un impact sur le profil spectral de l'impulsion. La phase temporelle est modifiée par les termes non linéaires, qui influent ainsi sur les impulsions brèves lors de leur propagation. Ces effets sont d'autant plus importants que la densité surfacique de puissance est grande. Ce régime est assez facilement atteignable dans les fibres optiques en raison du fort confinement de la lumière dans le cœur.

Lors de la propagation d'une impulsion brève à haute énergie dans une fibre optique, la réponse non linéaire se traduit par une variation de l'indice de réfraction du matériau avec

Licence CC BY-NC-ND 3.0

l'intensité appliquée. En tronquant la réponse non linéaire au troisième ordre, l'indice de réfraction du matériau prend la forme suivante :

$$n = \left(1+\chi^{(1)}+\chi^{(3)}E^2\right)^{\frac{1}{2}} = n_0+\frac{1}{2}\chi^{(3)}E^2 = n_0+n_2.I \qquad (II\text{-}31)$$

L'automodulation de phase (*Self Phase modulation* SPM), comme son nom l'indique, vient du fait que l'impulsion influence sa propre vitesse lorsqu'elle se déplace dans la fibre. Ceci se traduit par un déphasage supplémentaire de l'impulsion, dû à la variation de l'indice de réfraction avec son intensité. La valeur du déphasage total, après une distance L, est donnée par :

$$\emptyset(t) = \frac{2\pi}{\lambda}.n.L = \frac{2\pi}{\lambda}\left(n_0+n_2.I(t)\right)L \qquad (II\text{-}32)$$

On peut identifier le déphasage non linéaire $\Delta\emptyset_{SPM}$:

$$\Delta\emptyset_{SPM}(t) = \frac{2\pi}{\lambda}n_2.I(t).L \qquad (II\text{-}33)$$

L'impact des effets non linéaires sur l'impulsion lors de sa propagation dépend fortement de l'aire effective occupée par le champ dans la fibre, c'est-à-dire la surface dans laquelle est contenue l'énergie du mode. L'aire effective d'une fibre quelconque est définie dans le repère cylindro-polaire par :

$$A_{eff}(\lambda) = \frac{\left(\iint_{-\infty}^{\infty}|\tilde{E}(r,\phi)|^2 r.dr.d\phi\right)^2}{\iint_{-\infty}^{\infty}|\tilde{E}(r,\phi|^4 r.dr.d\phi} \qquad (II\text{-}34)$$

Le coefficient non linéaire γ quantifie les effets non linéaires dans une fibre optique :

$$\gamma = \frac{2\pi.n_2}{\lambda.A_{eff}(\lambda)} \qquad (II\text{-}35)$$

On peut réécrire la phase non linéaire de l'impulsion en fonction du coefficient non linéaire comme étant :

$$\Delta\emptyset_{SPM}(t) = \gamma.L.P(t)$$

avec (II-36)

P(t) la puissance instantanée de l'impulsion

La fréquence instantanée de l'impulsion devient alors $\omega(t) = \omega_0 - d\emptyset(t)/dt = \omega_0 - \gamma.dI(t)/dt$, pour une impulsion se propageant dans une fibre optique suivant la direction z positive.

La propagation d'une impulsion optique dans une fibre optique dans un régime purement non linéaire, et en se limitant à la présence de l'effet Kerr, peut être traitée par l'équation non linéaire de Schrödinger :

$$\frac{\partial\tilde{A}(z,t)}{\partial z} = \hat{N}.\tilde{A}(z,t)$$

avec (II-37)

$$\hat{N} = i\gamma|\tilde{A}(z,t)|^2$$

Les paramètres de la fibre, durant les modélisations de la propagation non linéaire, sont présentés comme suit : longueur de fibre, aire effective et indice non linéaire.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

La figure ci-dessous montre l'évolution de la fréquence instantanée, du profil temporel et spectral d'une impulsion gaussienne: $\lambda_0 = 1{,}56$ µm, $\Delta\lambda_p = 35{,}4$ nm, $\Delta t = 100$ fs, $\tau_G = 85$ fs et $E = 0{,}6$ nJ, se propageant dans une fibre SMF28 considérée sans perte ($\alpha = 0$) dans un régime purement non linéaire : $L = 1$ m, $A_{eff} = 65$ µm², $n_2 = 2{,}24\times10^{-20}$ m²/W.

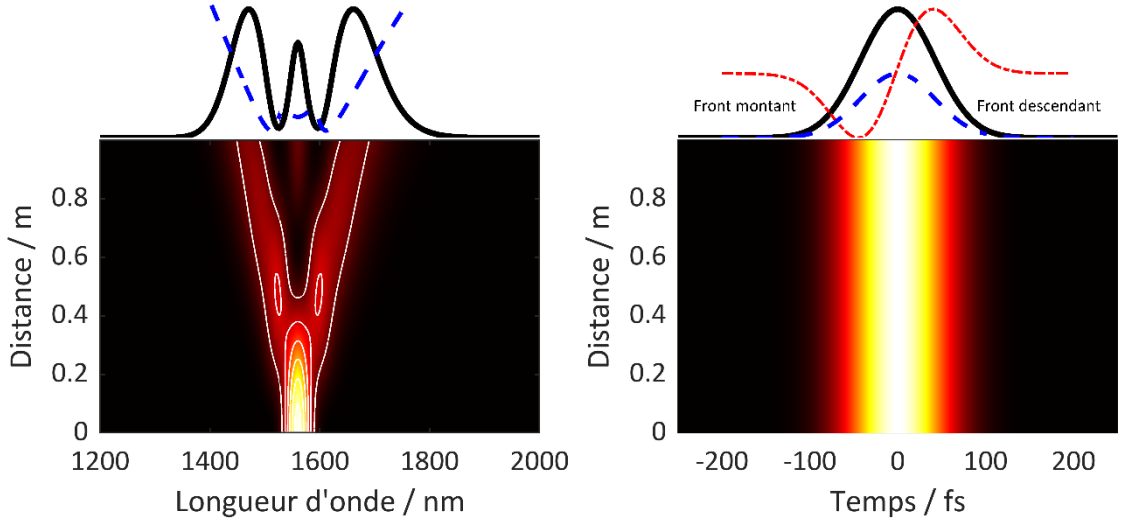


Figure II.4 : L'évolution temporelle et spectrale d'une impulsion gaussienne se propageant dans 1 m de fibre SMF28 dans un régime purement non linéaire : en noir, les profils d'intensité, en bleu, les phases, en rouge, la fréquence instantanée de l'impulsion en sortie de fibre.

Par définition on a :

$$\Delta\omega_{SPM}(t) = \omega(t) - \omega_0 \qquad (\text{II-38})$$

Au début de l'impulsion, au cours de son front montant, on a $dI(t)/dt > 0$ et $\Delta\omega_{SPM}(t) < 0$: la fréquence instantanée de l'impulsion est plus basse que la fréquence centrale ω_0. Ceci se traduit par un décalage fréquentiel vers le rouge.

À la fin de l'impulsion, au cours de son front descendant, on a $dI(t)/dt < 0$ et $\Delta\omega_{SPM}(t) > 0$: la fréquence instantanée de l'impulsion est plus haute que la fréquence centrale ω_0. Ceci se traduit par un décalage fréquentiel vers le bleu.

Ainsi on déduit que l'automodulation, comme on peut le voir sur la figure II.4, agit uniquement sur le profil spectral de l'impulsion. Ceci se traduit par une génération de nouvelles fréquences où les basses fréquences se propagent plus rapidement que les hautes fréquences. L'élargissement spectral dans la figure II.4 est symétrique de part et d'autre de la longueur d'onde centrale de l'impulsion, mais ceci n'est pas toujours vrai expérimentalement. Étant donné que l'intensité la plus élevée pour une impulsion se trouve à son pic, cela signifie que le pic se déplace légèrement plus lentement ($v = c/n$ où $n = n_0 + n_2\, P(t)/A_{eff}$) que le reste de l'impulsion, ce qui entraine un raidissement de son front arrière. Ce phénomène est appelé auto-raidissement (*self-steepening*) ou aussi choc optique [80]. Le choc optique affecte également l'élargissement spectral induit par SPM. La valeur du choc optique peut être calculée en fonction l'aire effective et l'indice de réfraction par la relation suivante [81]. Le choc optique est donc une manifestation de la dispersion de la non linéarité $\frac{\partial A_{eff}(\omega)}{\partial\omega}$.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

$$\tau_{shock} = \tau_0 - \left(\frac{1}{n_{eff}(\omega)} \frac{\partial n_{eff}(\omega)}{\partial \omega} - \frac{1}{A_{eff}(\omega)} \frac{\partial A_{eff}(\omega)}{\partial \omega} \right) \quad \text{(II-39)}$$

avec

$$\tau_0 = {}^{1}/_{\omega_0}$$

La figure II.5 montre l'auto-raidissement du front descendant de l'impulsion gaussienne précédente ainsi que l'asymétrie de son spectre. Les pics décalés vers le rouge sont plus intenses que les pics décalés vers le bleu et l'élargissement spectral est plus important du côté bleu que du côté rouge. Ceci est dû simplement au fait que la forme temporelle de l'impulsion est asymétrique [82].

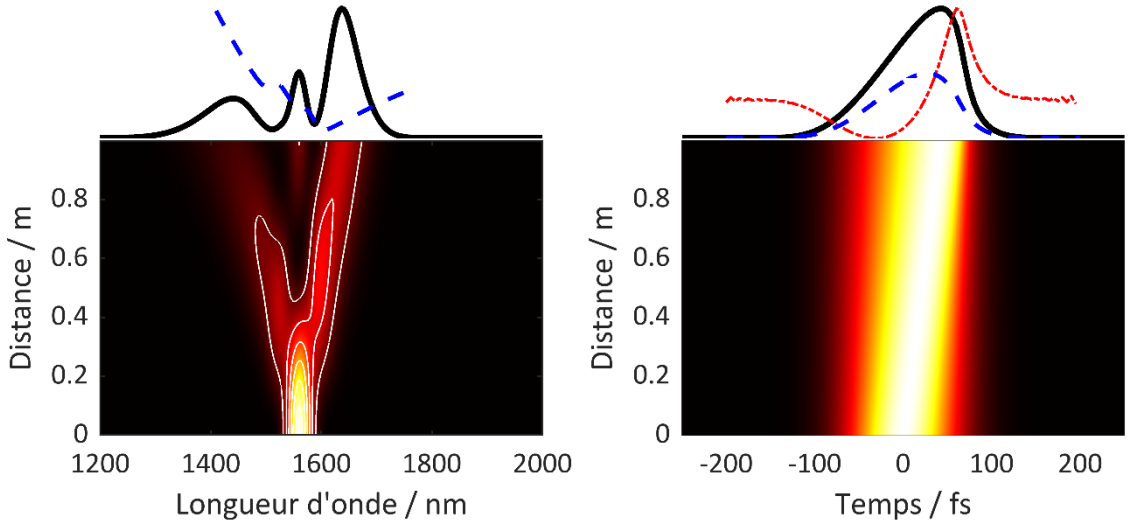


Figure II.5 : L'évolution temporelle et spectrale d'une impulsion gaussienne se propageant dans 1 m de fibre SMF28 dans un régime purement non linéaire avec un choc optique non nul : en noir, les profils d'intensité, en bleu, les phases, en rouge, la fréquence instantanée de l'impulsion en sortie de fibre.

Les deux phénomènes vus jusqu'à maintenant, GVD, TOD, d'une part, et effet Kerr d'autre part, se produisent dans les fibres optiques non linéaires et ces deux phénomènes déforment indépendamment la forme de l'impulsion optique lorsqu'elle traverse la fibre. À chaque phénomène est associée une longueur pour laquelle cet effet est dominant. aLa longueur associée à l'effet dispersif L_D représente la longueur de propagation où l'impulsion subit un élargissement temporel d'un facteur 1,414. La longueur non linéaire L_{NL} présente la longueur après laquelle la phase non linéaire accumulée vaut 1 rad.

$$L_D = \frac{\tau^2}{|\beta_2(\lambda)|} \quad \text{(II-40)}$$

$$L_{NL} = \frac{1}{\gamma \hat{P}_0}$$

On constate que dans des conditions appropriées ces deux phénomènes peuvent être mis en compétition de sorte que l'effet dû à l'un peut être annulé par l'effet dû à l'autre. Il en résultera une situation dans laquelle l'impulsion optique peut se propager dans une fibre optique sans aucune distorsion. L'impulsion optique est alors appelée soliton optique. Ce régime de propagation est exploité durant tous mes travaux de thèse et sera présenté en détail durant le prochain chapitre.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

II.4. Caractérisation temporelle des impulsions ultracourtes

Depuis les années 1990, la technologie des lasers à impulsions ultracourtes a beaucoup progressé. Il est aujourd'hui possible d'émettre des impulsions allant de l'infrarouge à l'ultraviolet, avec une durée temporelle qui peut aller jusqu'au cycle optique [83] et une puissance crête qui atteint le petawatt [84]. Les impulsions courtes sont de plus en plus exploitées dans diverses applications en physique, chimie, biologie, médecine, etc. En conséquence, la caractérisation temporelle de l'impulsion laser devient de plus en plus importante. Cependant, les impulsions laser ultracourtes sont si rapides qu'il est difficile de les mesurer puisqu'on a besoin d'un évènement plus court pour le faire. Ayant un spectre large, la mesure spectrale des impulsions courtes est plus simple en utilisant un spectromètre optique. Cette information est importante, mais hélas, n'est pas suffisante. Comme on l'a vu lors de la première partie, la phase spectrale a un impact important sur la forme temporelle de l'impulsion. La mesure du spectre optique d'une impulsion avec un spectromètre optique ne nous donne une information que sur l'intensité spectrale de l'impulsion $S(\omega) = |\tilde{E}(\omega)|^2$. Mathématiquement, ce problème est appelé Problème de récupération de phase 1D (*1D phase retrieval problem*) [85]. On se retrouve dans une situation où une infinité de phases possibles peuvent s'appliquer au champ de l'impulsion et ainsi il est impossible de connaitre le profil temporel exact de l'impulsion. Une mesure temporelle de l'impulsion est donc nécessaire. Les moyens de mesure électronique, tels que les photodiodes associées à des oscilloscopes, ont des temps de réponse trop lents devant la durée courte de ce genre d'impulsions optiques même pour les plus rapides d'entre eux. L'idée, alors, était de mesurer l'impulsion optique par une autre impulsion plus courte ou par elle-même. Le principe est simple (voir la figure II.6) : **(1)** nous divisons l'impulsion à caractériser en deux impulsions identiques, **(2)** nous retardons une impulsion dans le temps à travers un miroir mobile, **(3)** nous croisons les deux impulsions dans un milieu non linéaire et enfin nous mesurons l'intensité émise par la réponse du milieu non linéaire avec une photodiode **(4)**. La référence est généralement l'intensité de conversion de fréquence émise par le milieu linéaire. Plus le déphasage diminue, plus l'intensité du signal résultant augmente. Dans le domaine temporel, le paramètre le plus important est le temps de retard entre les deux impulsions. Ce temps est contrôlé par la distance que parcourt chaque impulsion par rapport à l'autre.

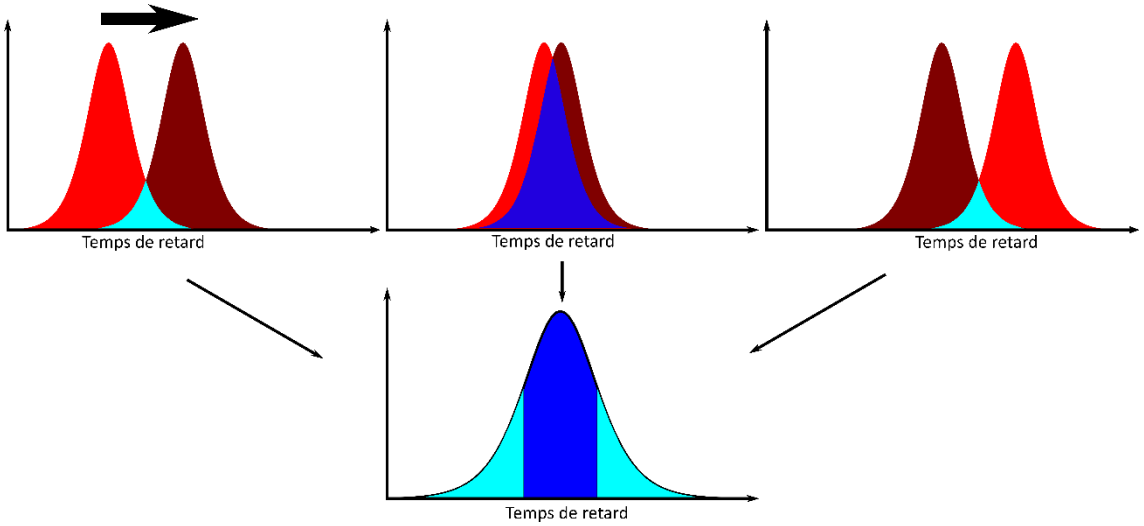


Figure II.6 : Principe de mesure temporelle par autocorrélation optique

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Dans cette partie, je vais introduire rapidement la technique la plus courante de caractérisation temporelle d'impulsions courtes basée sur l'autocorrélation d'intensité et ses limites avant de décrire plus en détail la technique de corrélation optique résolue en fréquence FROG (*Frequency Resolved Optical Gating*). Enfin, je présenterai le dispositif FROG que j'ai développé au sein de l'équipe lors de ma thèse.

II.4.1. L'autocorrélation d'intensité

L'autocorrélation est une technique de mesure de l'intensité d'impulsion I(t) dans le domaine temporel. C'est une méthode efficace qui permet de donner des informations temporelles sur les impulsions femtosecondes. Le montage typique d'un autocorrélateur d'intensité est présenté sur la figure II.7. Il est composé d'un interféromètre de Michelson pour gérer le retard entre les deux impulsions, d'un cristal doubleur de fréquence comme milieu non linéaire et d'une photodiode pour mesurer le signal résultant. Le signal mesuré est exprimé par :

$$A^{(2)}(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} I(t)I(t-\tau)dt \qquad (\text{II-41})$$

L'intensité mesurée est liée au chevauchement temporel des impulsions. Ceci permet de déduire la durée d'impulsion à travers sa trace d'autocorrélation. Il est facile de voir que $A^{(2)}(\tau)$ est une fonction symétrique selon $\tau = 0$. Cependant, l'autocorrélation ne donne pas directement la vraie durée d'impulsion. Afin de mesurer correctement une durée d'impulsion par autocorrélation d'intensité, une connaissance de la forme de son enveloppe est nécessaire. Étant donné que la mesure est faite selon l'axe du retard τ, des facteurs de correction appelés facteurs de déconvolution [86] sont nécessaires pour la permutation entre la durée d'impulsion Δt et la durée d'autocorrélation $\Delta\tau$. Par exemple dans le cas d'une impulsion sécante hyperbolique le facteur de déconvolution est $\Delta\tau/\Delta t = 1{,}543$ et pour une gaussienne $\Delta\tau/\Delta t = 1{,}414$.

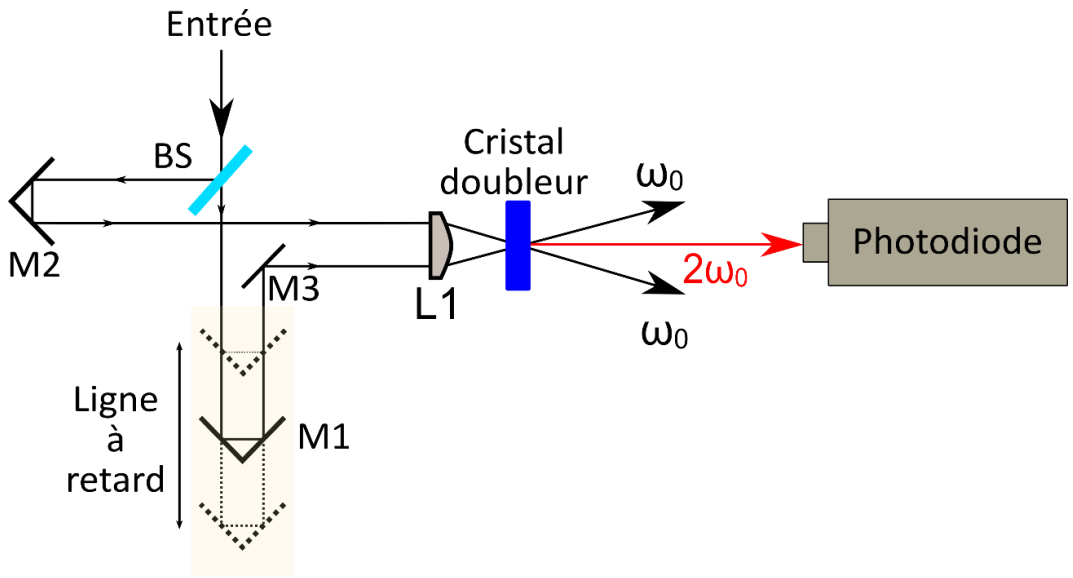


Figure II.7 : Un montage typique d'autocorrélateur en 'intensité

La figure II.8 montre les traces d'autocorrélation de l'impulsion gaussienne présentée dans la partie précédente (figure II.3). La figure II.8(a) correspond à la trace temporelle et à l'autocorrélation de l'impulsion en limite de Fourier : $\lambda_0 = 1{,}56$ µm,

Licence CC BY-NC-ND 3.0

$\Delta\lambda$ = 35,4 nm, Δt = 100 fs et τ_G = 85 fs tandis que la figure II.8(b) présente la même impulsion avec une phase spectrale cubique $\psi_3 = 6\times10^5$ fs^3. Son profil temporel est devenu asymétrique présentant des oscillations en aval du lobe central et sa durée temporelle est Δt = 132 fs.

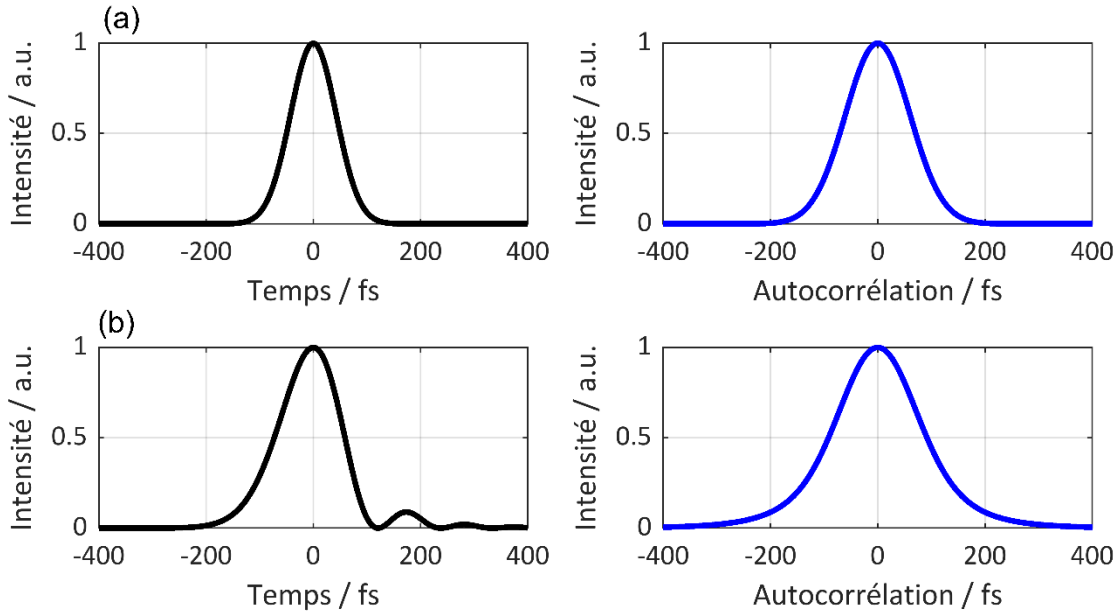


Figure II.8 : Profil temporel (en noir) et trace d'autocorrélation (en bleu) d'une impulsion gaussienne avec une phase nulle (a) et avec une phase cubique (b)

D'après la figure II.8, on remarque que dans les deux situations les traces d'autocorrélation sont symétriques. L'autocorrélation n'est pas en mesure de reconstruire les piédestaux de l'impulsion sur la figure II.8(b). Cela présente des ambigüités sur la vraie durée d'impulsion et ainsi des incertitudes à propos de la puissance contenue dans son lobe central.

Étant donné aussi que la mesure d'autocorrélation nécessite une connaissance de la forme d'enveloppe de l'impulsion (pour déduire le facteur de déconvolution correspondant), elle est donc fiable uniquement dans le cas d'une impulsion en limite de Fourier ou peu chirpée. Si le profil de l'impulsion devient asymétrique et complexe, la forme de l'impulsion devient compliquée à connaitre et il sera difficile de deviner le bon facteur de déconvolution à utiliser.

II.4.2. La technique de corrélation résolue en fréquence FROG

La caractérisation des impulsions ultracourtes dans les domaines temporel et spectral séparément ne permet pas de mesurer correctement la durée temporelle des impulsions complexes. La mesure d'autocorrélation et la mesure spectrale sont des mesures unidimensionnelles. Il n'est donc pas possible de déterminer les bonnes phases spectrale et temporelle de l'impulsion. Comme l'on a vu dans la partie précédente, connaitre la phase permet de déduire la forme de l'impulsion. La phase est un paramètre très important aussi pour les techniques de post-compression d'impulsion courtes. Une impulsion chirpée est une impulsion longue. Connaitre la valeur de sa dérive de fréquence permet de trouver le moyen de la compenser et ainsi de compresser l'impulsion de façon optimale. Les recherches de dispositifs permettant de résoudre les problèmes liés à l'indétermination de la phase, ont amené à l'élaboration des méthodes de caractérisation hybrides dans le domaine temps-fréquence. Parmi celles-ci, on trouve la corrélation résolue en fréquence, développée en 1993 par Daniel J. Kane et Rick Trebino [87]. J'utiliserai l'abréviation « FROG » pour faire référence

Licence CC BY-NC-ND 3.0

à cette méthode dans la suite du manuscrit. La technique FROG permet la caractérisation simultanée dans les deux dimensions, temps et fréquence, d'une impulsion courte. Son principe est simple et il est présenté sur la figure II.9.

Cette méthode utilise le même principe d'autocorrélation, mais résolu en fréquence, ce qui ajoute une seconde dimension à la mesure. Elle consiste à échantillonner l'impulsion temporellement à l'aide d'une fonction porte $\tilde{G}(t-\tau)$. Cette porte sélectionne une partie de l'impulsion située au temps τ pour donner un signal résultant $\tilde{E}_{sig}(t,\tau)$:

$$\tilde{E}_{sig}(t,\tau) = \tilde{E}(t)\tilde{G}(t-\tau) \qquad (\text{II-42})$$

Cette technique nécessite que la fonction porte soit synchronisée en déclenchement et en taux de répétition avec la source impulsionnelle à analyser. Une configuration habituellement choisie consiste alors à utiliser l'impulsion elle-même comme fonction porte, pour procéder à son autocorrélation résolue en fréquence.

Si $\tilde{G}(t) = \tilde{E}(t)$, $\tilde{E}_{sig}(t,\tau) = \tilde{E}(t)\tilde{E}(t-\tau)$ peut être obtenu dans un cristal quadratique et correspond au signal de second harmonique de $\tilde{E}(t)$. Si on mesure l'intensité du spectre de $\tilde{E}_{sig}(t,\tau)$, $\left|\int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{E}(t)\tilde{E}(t-\tau)\exp(-i\omega t)\,dt\right|^2$, à l'aide d'un détecteur quadratique, pour plusieurs retards τ, on obtient le spectrogramme :

$$I_{FROG}(\omega,\tau) = \left|\int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{E}(t)\tilde{E}(t-\tau)\exp(-i\omega t)\,dt\right|^2 \qquad (\text{II-43})$$

Cette représentation temps-fréquence des caractéristiques de l'impulsion est appelée trace FROG.

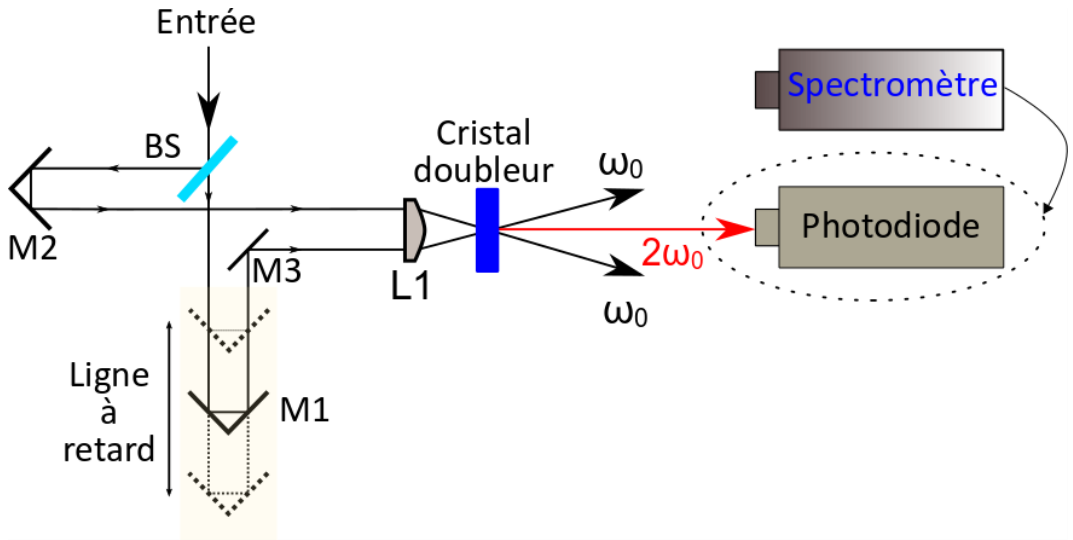


Figure II.9 : Un montage typique de la technique de caractérisation par corrélation résolue en fréquence par génération de seconde harmonique (SHG-FROG). Le détecteur mono-pixel de l'autocorrélateur est remplacé par un spectromètre.

Contrairement à l'autocorrélation, l'information contenue dans le spectrogramme FROG est redondante, ce qui permet, à l'aide d'une étape de traitement numérique, de retrouver l'amplitude et la phase de l'impulsion à caractériser. Le traitement numérique du spectrogramme se fait par un algorithme de reconstruction. L'algorithme sert à chercher, par un processus itératif, un champ $\tilde{E}_{alg}(t)$ générant un spectrogramme le plus proche possible de

Licence CC BY-NC-ND 3.0

celui ayant été obtenu expérimentalement. Bien qu'elle nécessite plusieurs minutes pour effectuer les acquisitions successives des différents spectres, cette technique offre l'avantage, par cette caractéristique d'accumulation des données, de pouvoir restituer la solution du champ d'impulsion dont l'unicité est quasi assurée.

Afin de réaliser la corrélation entre la fonction porte et l'impulsion, de nombreuses configurations utilisant divers processus non linéaires ont été proposées. Outre la corrélation résolue en fréquence par génération de seconde harmonique **« SHG-FROG »**, nous pouvons citer la corrélation résolue en fréquence par polarisation **« PG-FROG »,** la corrélation résolue en fréquence par auto-diffraction **« SD-FROG »** et la corrélation résolue en fréquence par génération de troisième harmonique **« THG-FROG ».** La construction de la trace FROG pour chaque topologie utilise une forme mathématique adéquate selon la forme du signal généré par le milieu non linéaire. La relation du signal $\tilde{E}_{sig}$ est différente d'une topologie à l'autre. Celle qui nous intéresse ici est la corrélation résolue en fréquence par génération de seconde harmonique **« SHG-FROG »**. La relation de son signal $\tilde{E}_{sig}$ est donnée par :

$$\tilde{E}_{sig}(t,\tau) = \tilde{E}(t)\tilde{E}(t-\tau) \qquad (\text{II-44})$$

Le tableau II.2 résume les paramètres principaux, les avantages et les inconvénients de chaque topologie FROG [88]:

Tableau II.2 Comparaison entre les différentes topologies de la porte optique résolue en fréquence « FROG »

Topologie	SHG	PG	SD	THG
La non-linéarité	$\chi^{(2)}$	$\chi^{(3)}$	$\chi^{(3)}$	$\chi^{(3)}$
La sensibilité	~0,001 nJ	~100 nJ	~1000 nJ	~3 nJ
Avantages	Très sensible	Traces intuitives Accord de phase automatique	Traces intuitives	Sensible bande passante très large
Désavantages	Traces non intuitives	Nécessite un polariseur	Nécessite un milieu fin Pas d'accord de phase	Traces non intuitives

Parmi les différents processus de corrélation, la technique de caractérisation par corrélation résolue en fréquence par génération de seconde harmonique « SHG-FROG » est la technique la plus simple, et celle qui offre la sensibilité la plus élevée et le meilleur rapport signal/bruit. C'est donc aussi la méthode la plus utilisée, et celle que j'ai installée au laboratoire.

II.4.2.1. Traitement des traces SHG-FROG numériques

Dans cette partie, j'ai voulu étudier la fiabilité de la technique FROG pour la mesure temporelle des impulsions présentées dans la partie précédente (figure II.3) et la comparer avec la technique d'autocorrélation en intensité dans le cas d'impulsions chirpées et asymétriques (le cas de la phase spectrale cubique). J'ai modélisé les impulsions avec les différentes phases sous le logiciel Matlab puis j'ai implémenté un algorithme de génération des traces FROG écrit et mis à disposition par Steven Byrnes [89]. Les traces SHG-FROG obtenues pour chaque type de phase sont présentées dans la figure II.10. Les spectrogrammes obtenus numériquement ou expérimentalement ne permettent pas de connaitre directement ni l'amplitude ni la phase de l'impulsion ayant servi à leur génération. L'efficacité de la technique FROG vient des outils de récupération de phase à base des algorithmes de transformée de Fourier itérative (voir Annexes). Parmi eux je cite : l'algorithme **Vanilla** [90], l'algorithme des **Projections**

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Généralisées [91] et l'algorithme des **Projections Généralisées en Composantes Principales (*Principal Component Generalized Projections* PCGP)** [92]**.**

L'objectif ensuite était de vérifier la capacité de ces algorithmes à reconstruire le profil temporel et spectral de ces impulsions à partir de leurs traces FROG générés. Cette étude a été faite pour des traces FROG sans bruit en utilisant l'algorithme des Projections Généralisées en Composantes Principales après 500 itérations. La figure II.10 présente les impulsions à analyser : leurs profils temporels, spectraux et leurs traces FROG construites avec l'algorithme de génération PGCP [89]. L'implémentation et la reconstruction sont faites ensuite par le même algorithme.

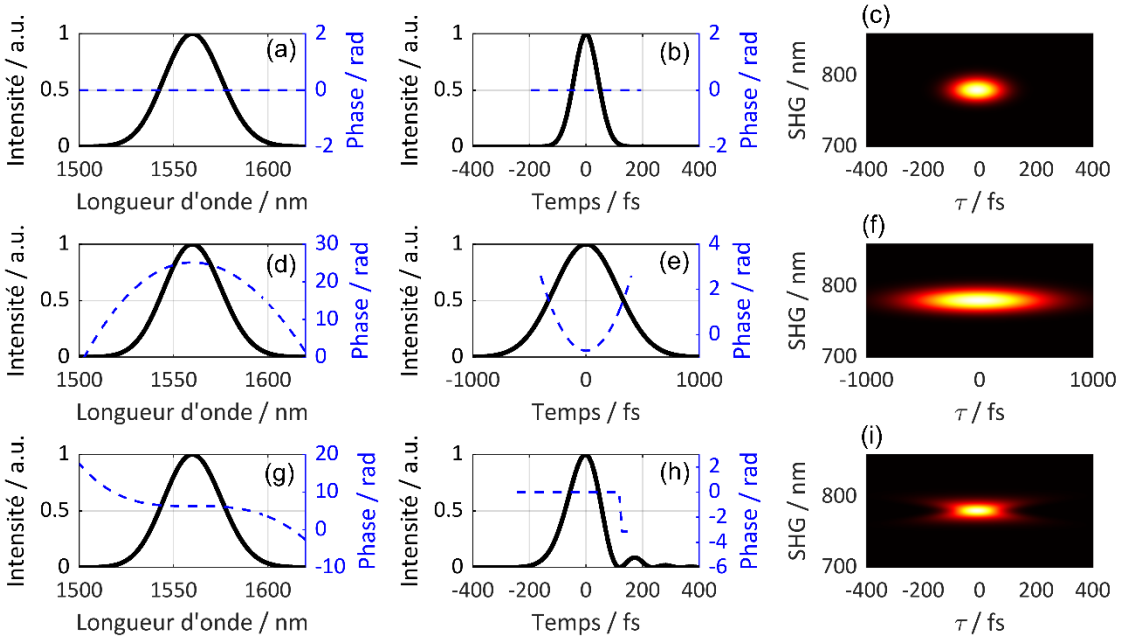


Figure II.10 : Génération théorique des traces SHG-FROG pour une impulsion gaussienne avec une phase nulle (a, b, c)., une phase quadratique (d, e, f) et une phase cubique (g, h, i).

Tout en étant assez simple, la convergence de l'algorithme vers des résultats très satisfaisants fût rapide (quelques secondes) avec une grille de 1024×1024. La figure II.11 montre la comparaison entre les impulsions initiales et celles reconstruites par l'algorithme. On constate une bonne reconstruction des profils temporel et spectral. Il y a tout de même une légère différence entre les phases initiales et celles reconstruites. Cependant, le résultat reste satisfaisant et les erreurs entre les spectrogrammes mesuré et reconstruit sont < 10^{-5} pour les trois impulsions. On déduit alors que la reconstruction des profils temporel et spectral de l'impulsion avec l'algorithme des Projections Généralisées en Composantes Principales se fait rapidement et converge vers sa vraie forme réelle. Contrairement à la technique d'autocorrélation en intensité, cette technique arrive à reconstruire les piédestaux de l'impulsion à phase cubique. Elle permet donc de mesurer correctement la durée temporelle de l'impulsion. L'erreur au niveau de la phase ne rend pas l'algorithme inutilisable pour nos applications. D'autres études plus approfondies comparant les différents algorithmes SHG-FROG ont déjà été faites. On a montré l'efficacité des algorithmes des Projections Généralisées pour des impulsions courtes et assez complexes [91, 93]. Selon Rick Trebino, dans le cas de l'algorithme des Projections Généralisées, la convergence pour des données expérimentales ne peut être parfaite à cause des difficultés de mesure. Lors d'une mesure SHG-FROG, on considère un coefficient d'erreur $\epsilon < 0.5$ % pour une matrice de 128×128

Licence CC BY-NC-ND 3.0

comme une valeur d'erreur optimale, mais il ne faut pas oublier que chaque valeur d'erreur optimale est donnée pour une taille de matrice donnée [88]. Plus la taille de la matrice augmente, plus la valeur de l'erreur optimale diminue (si la taille de la matrice augmente par un facteur 2, la valeur optimale de l'erreur diminue d'un facteur ~2). Une comparaison entre le profil spectral mesuré avec un analyseur de spectre optique et le profil reconstruit par l'algorithme est aussi recommandée pour déduire la qualité de la mesure [94]. Dans la théorie, en l'absence de bruit, des valeurs d'erreur de $\epsilon < 10^{-7}$ % pour une matrice de 64×64 sont facilement atteignables et la convergence de l'algorithme est limitée uniquement par les performances de l'appareil numérique utilisé.

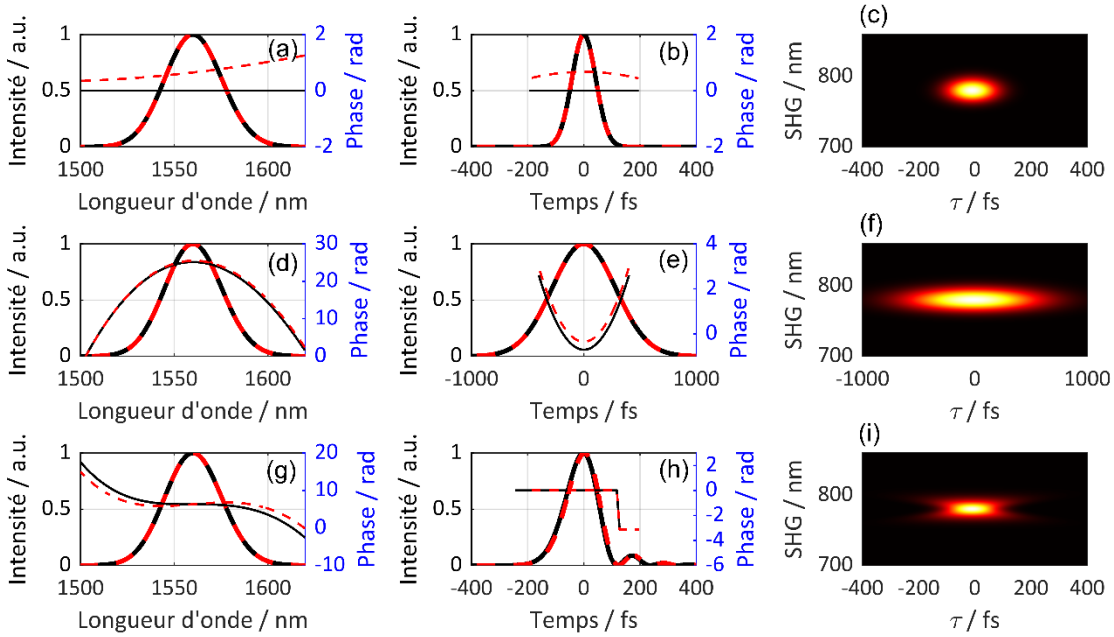


Figure II.11 : Reconstruction des impulsions avec un algorithme des Projections Généralisées en Composantes Principales. En rouge, le profil temporel et la phase des impulsions reconstruite, en noir, le profil temporel et la phase des impulsions implémentées. Les traces SHG-FROG sont les traces reconstruites.

La corrélation résolue en fréquence par génération de seconde harmonique « SHG-FROG » utilise des cristaux non linéaires d'ordre 2 ce qui signifie qu'elle offre la meilleure sensibilité et le meilleur rapport signal/bruit, mais, en contrepartie, elle présente des ambigüités au niveau de ces traces qui restent non intuitives. Les traces SHG-FROG sont symétriques par rapport à l'axe du retard τ et, par conséquent, ils présentent une imprécision sur le sens du temps. Ainsi le champ complexe de l'impulsion, $\tilde{E}(t)$, et sa réplique conjuguée complexe inversée dans le temps, $\tilde{E}^{*}(-t)$, produisent tous deux la même trace SHG FROG. Lorsqu'une trace SHG-FROG est mesurée et que l'algorithme de récupération de phase est exécuté dessus, il est possible que l'impulsion réelle soit la version inversée dans le temps de l'impulsion récupérée.

Afin d'atteindre des taux d'erreur minimaux et assurer des reconstructions FROG optimales, il est conseillé de combiner ces algorithmes. Ceci rend la reconstruction, à la fois, plus rapide et plus puissante. Lors de mes mesures expérimentales, j'ai utilisé un programme commercial Femtosoft FROG de « Femtosoft Technologies, LLC » et développé par Dr. Kenneth DeLong [95]. Ce programme est utilisé par plusieurs laboratoires de recherche. Il combine les différents algorithmes et il est robuste pour les différents types de topologies FROG.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

II.4.3. Autres méthodes

Ces dernières années, les lasers à impulsions courtes sont de plus en plus utilisés. La précision de caractérisation a connu un gros regain d'intérêt, ce qui a ouvert la voie au développement d'autres méthodes de mesure. L'une d'entre elles est appelée « GRENOUILLE », c'est une variante du SHG-FROG, mais beaucoup plus simple à mettre en place, peu couteuse et compacte. Son mécanisme est semblable au SHG-FROG standard, tout en remplaçant la séparatrice de faisceau, la ligne à retard et l'instrument de focalisation de faisceaux par un seul élément, un biprisme de Fresnel. Cette méthode offre plus de sensibilité en fournissant la capacité de remplacer le cristal fin du FROG par un plus épais et ainsi améliorer le rendement de conversion du système [96, 97]. On trouve aussi la technique d'interférométrie de phase spectrale pour la reconstruction directe du champ électrique (*Spectral Phase Interferometry for Direct Electric-field Reconstruction* SPIDER). C'est une méthode répandue, basée sur des techniques interférométriques permettant la caractérisation complète des impulsions courtes sans avoir recours à des algorithmes de reconstruction itérative. Ses seuls inconvénients sont sa complexité d'alignement, son prix (la nécessité d'un nombre plus élevé d'instruments), et son incapacité de mesurer les impulsions longues [98, 99].

II.5. Dispositif expérimental SHG-FROG

Mes premiers travaux durant ma thèse consistaient à concevoir et mettre au point un SHG-FROG capable de caractériser des impulsions ultracourtes dans le proche et le moyen infrarouge et à remplacer l'instrument utilisé auparavant, un autocorrélateur commercial FR-103MN vendu par l'entreprise « FEMTOCHROME ». Pour cela j'ai collaboré avec le groupe d'Hamed Merdji (Ecole Polytechnique) et Dominic Franz, doctorant au CEA LyDIL, qui a mis à notre disposition un banc FROG afin que nous en implémentions une copie au laboratoire.

Le montage du dispositif SHG-FROG est présenté sur la figure II.12. Ce dispositif est mis en place sur un nid d'abeille de taille 300 × 600 mm × 12.7 mm. Le faisceau de l'impulsion à caractériser de fréquence ω_0 émis par le laser est collimaté vers le SHG-FROG par une lentille de collimation ou un collimateur à parabole hors axe. L'alignement du faisceau se fait grâce aux deux premiers iris I1 et I2. Les deux miroirs demi-lune (*D-Shaped Pickoff Mirrors*) M1 et M2, légèrement décalés, jouent le rôle de séparatrice (*beam splitter* « BS »). Par réflexion totale sur les bords de chaque miroir demi-lune, le faisceau se devise en deux faisceaux jumeaux. Ces derniers sont par la suite réfléchis par un miroir M3 et acheminés vers la parabole hors axe P1 montée sur une platine de microdéplacement 3-axes XYZ. Les deux faisceaux sont focalisés dans le cristal doubleur de fréquence CD pour générer un signal de second harmonique à $2\omega_0$. En aval du cristal, les deux faisceaux jumeaux de fréquence ω_0 sont bloqués par l'iris I3 qui joue le rôle de filtre spatial. En sortie, avec l'ensemble d'une lentille L, d'une fibre multimode et d'un spectromètre, on collecte uniquement le signal de seconde harmonique à $2\omega_0$.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

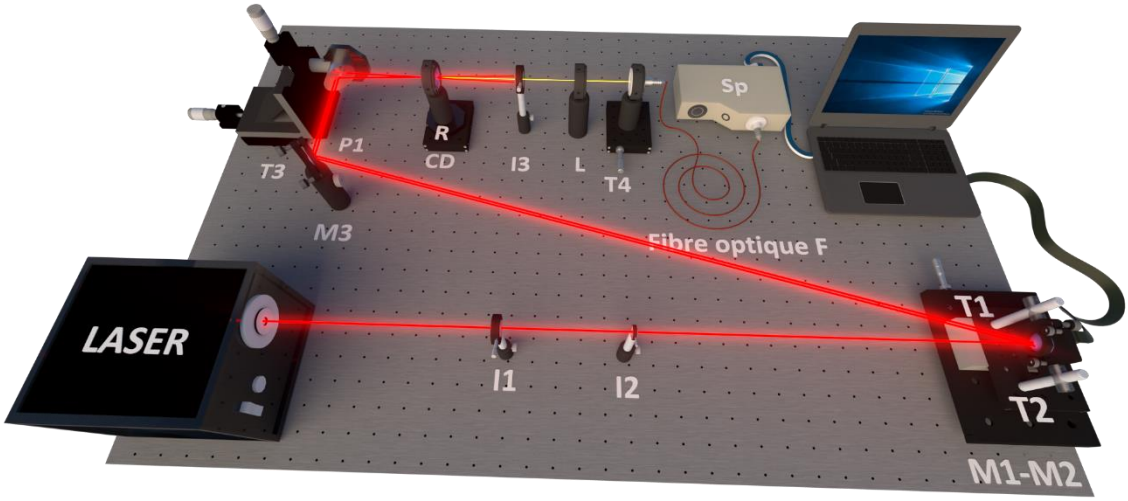


Figure II.12 : Dispositif expérimental du SHG-FROG. Composants : deux iris d'alignement I1 et I2, deux miroirs demi-lune (séparatrice) M1 et M2, moteur pas à pas T2, deux platines de translation T1 et T4, une platine de translation 3 axes T3, une parabole hors-axe 90° P1, une platine de rotation R, un cristal non linéaire CD, un iris pour le filtrage spatial I3, une lentille L, une fibre optique en silice F et un spectromètre Sp

Le miroir demi-lune M1 et la platine de translation liée à un moteur pas à pas définissent la ligne à retard (dit aussi « bras mobile ») du SHG-FROG. Le miroir demi-lune M2 représente le bras fixe. L'ensemble du bras mobile et du bras fixe est installé sur une grande platine de translation T1 pour ajuster l'alignement du dispositif et la division du faisceau collimaté. Le moteur pas à pas est connecté à une carte microcontrôleur. Celle-ci est commandée par un code écrit en langage Python mis en point par Yann Leventoux, chercheur post-doctoral au sein de l'équipe. Le code sert, à la fois, à commander le moteur et à stocker les données mesurées au spectromètre. Pour chaque retard (pas du moteur), le programme récupère la densité spectrale collectée au spectromètre dans un fichier ASCII. La platine de translation 3 axes T3 sert à ajuster la distance focale entre la parabole hors axe et le cristal non linéaire placé à son tour sur une platine de rotation R. Celle-ci permet de régler l'angle du cristal afin d'assurer l'accord de phase des signaux et de maximiser le rapport signal à bruit au niveau du spectromètre.

Afin de pouvoir caractériser des impulsions ultrarapides, le choix des composants doit être rigoureux. Les paramètres majeurs à prendre en compte sont la résolution temporelle, la bande spectrale et la sensibilité du système. Par conséquent, le choix du moteur pas-à-pas, du spectromètre et du cristal non linéaire devrait répondre aux critères demandés.

- **Le moteur pas à pas** est un composant très important dans le dispositif expérimental SHG-FROG. C'est le composant qui définit la résolution temporelle du système étant donné que le retard temporel τ est en relation directe avec la différence de marche spatiale δ par la relation suivante :

$$\tau = 2\times\frac{\delta}{c} \qquad (\text{II-45})$$

avec

c la vitesse de la lumière en $m.s^{-1}$, τ est le retard temporel en seconde et δ est la résolution spatiale du moteur pas à pas en mètre

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Le facteur 2 correspond à la différence de marche pour un aller-retour de l'impulsion retardée. Pour avoir une résolution fine assurant la mesure des impulsions de quelques femtosecondes, nous utilisons un moteur avec une résolution spatiale de 100 nm ce qui signifie une résolution temporelle de $\tau = 0.667$ fs. Cette résolution devrait permettre de caractériser correctement des impulsions sub-10 fs.

- **Le cristal non linéaire doubleur de fréquence** joue un rôle important dans la configuration FROG et doit donc être choisi avec précaution. Il y a un compromis à respecter afin d'assurer un bon rendement de conversion (proportionnel à la longueur), un bon accord de phase et une faible dispersion du cristal (tous deux inversement proportionnels à la longueur). Pour réduire la dispersion du cristal et assurer un bon accord de phase, le cristal devrait être mince. La faible épaisseur du cristal réduira aussi la distorsion spectrale de l'impulsion par la non-linéarité [100]. Il faut ainsi réduire l'épaisseur tout en ayant un bon rendement de conversion du cristal sachant que la division de l'épaisseur par deux divisera l'efficacité par quatre, ce qui diminue le rapport signal à bruit [101, 102]. Le choix du cristal non linéaire à utiliser dépend alors de l'application visée et de la longueur d'onde du laser. Dans notre cas, on cherche à caractériser des impulsions courtes dans le proche et moyen infrarouge. Le cristal devrait être mince et avec un bon coefficient de conversion dans cette gamme de fréquences. Sur le marché, les cristaux non linéaires disponibles pour ce genre d'application sont limités. Leur limite vient, comme tout matériau, de leurs fenêtres de transparences. Ils ne sont pas transparents sur toute la bande spectrale souhaitée. Par exemple les cristaux en beta-borate de baryum BBO, en triborate de lithium LBO ou en phosphate de monopotassium KDP sont utilisés pour les applications dans le proche infrarouge alors que d'autres matériaux non linéaires sont transparents de 2 µm jusqu'à 13 µm. Parmi eux on trouve des cristaux en thiogallate d'argent ($AgGaS_2$, $AgGaSe_2$) ou en phosphure de zinc-germanium $ZnGeP_2$ [103, 104]**.** Afin de choisir le bon cristal pour nos dispositifs expérimentaux, j'ai décidé d'utiliser des cristaux en beta-borate de baryum BBO et en thiogallate d'argent $AgGaS_2$ avec des épaisseurs de 100 µm. Ce choix de cristal provient de leur bonne efficacité de conversion [105], de leur disponibilité, et de leurs épaisseurs très fines. Certes, il a été démontré que le cristal BBO peut transmettre dans le moyen infrarouge avec une épaisseur de 20 µm [106], mais le rendement de conversion est trop faible devant les cristaux en $AgGaS_2$ et $AgGaSe_2$ qui sont les plus utilisés dans ces gammes de fréquences.
- **Le spectromètre** devrait avoir une réponse spectrale étendue et un temps de réponse et d'intégration rapides. Le temps de réponse et la bande spectrale du spectromètre dépendent du type de photodétecteur [107]. Il n'existe pas beaucoup de spectromètres qui répondent à ces spécifications sur le marché. Ici, nous avons décidé d'utiliser deux spectromètres couvant la bande spectrale de 175 nm à 2050 nm : un spectromètre Maya2000 et un NIRQuest512-2.2 de marque Ocean Optics. Le Maya2000 comprend un détecteur Hamamatsu S9840 à base de silicium fonctionnant entre 175 nm et 1100 nm. Il présente une forte sensibilité et un temps d'intégration rapide qui descend jusqu'à 5 ms. Le NIRQuest512-2.2 utilise une photodiode InGaAs qui fonctionne entre 900 nm et 2050 nm. Son temps d'intégration est rapide et descend à 1 ms. Il est toutefois moins sensible que le Maya2000.

Quant aux autres composants, il s'agit d'une lentille de 75 mm de distance focale ; un cordon de 2 m de fibre optique multimode en silice à saut d'indice avec une ouverture numérique de 0.22 de chez Thorlabs ; une parabole hors axe de 1 pouce, revêtue en argent et

Licence CC BY-NC-ND 3.0

de focale 50 mm. Les miroirs sont aussi revêtus d'argent pour améliorer la réflexion du faisceau.

II.5.1. Mesures et traitement des données

Le contrôle du moteur pas-à-pas et du spectromètre se fait à travers un programme en langage Python. L'interface du programme est présentée sur la figure II.13. Cette fenêtre sert à définir la fenêtre temporelle, la fenêtre spectrale et la résolution spatiale du moteur. Les deux premières cases sur la figure servent à définir la résolution et la fenêtre temporelle de la mesure. Ces deux paramètres sont choisis en nombre de pas de la platine liée au moteur. Chaque pas du moteur correspond à 0.667 fs comme résolution temporelle. Par exemple ici, la résolution temporelle correspond à 10 pas, ce qui est équivaut à 10 × 0.667 = 6.67 fs et la fenêtre temporelle est de 1000 × 0.667 = 667 fs. Les deux autres cases définissent la fenêtre spectrale de la seconde harmonique. Les longueurs d'onde sont en nanomètre. Dans notre cas ici, la longueur d'onde minimale est de 1200 nm et la longueur d'onde maximale est de 1700 nm. Cette bande spectrale en seconde harmonique permet de caractériser des impulsions laser émises entre 2400 et 3400 nm.

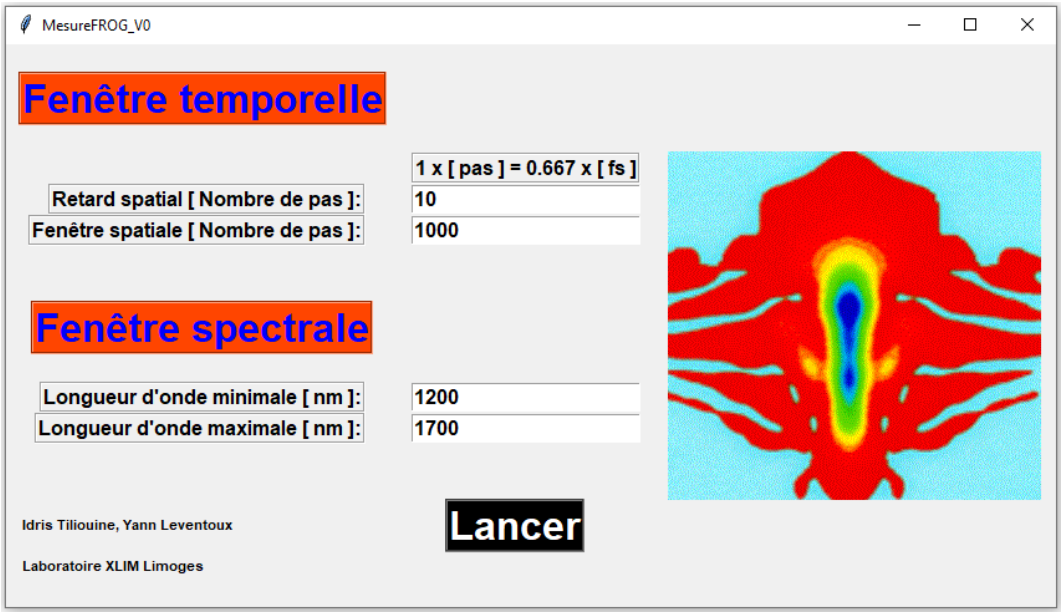


Figure II.13 : Fenêtre du programme Python du SHG-FROG du laboratoire

Le lancement du programme démarre l'acquisition des données et leur stockage dans un fichier ASCII. Ce fichier est par la suite implémenté dans le programme de reconstruction FROG de « FEMTOSOFT TECHNOLOGIES », très simple à utiliser, basé sur les algorithmes de base et l'algorithme des projections généralisées. L'interface principale du programme permet de choisir la topologie du FROG utilisé (PG, SHG, etc.), la source des données à traiter (impulsion théorique, mesure expérimentale, etc.) et la taille N×N de la matrice. Ici, nous nous intéressons surtout au cas du traitement des données expérimentales pour la topologie SHG-FROG. La taille de la grille est donnée sous la forme $N = 2^k$ où $k \in [4 : 13]$. Habituellement, une valeur de 64 (k = 6) ou 128 (k = 7) est suffisante, mais pour des impulsions complexes, il est toujours judicieux d'augmenter la taille. Cependant la vitesse de l'algorithme diminue en fonction de N. Si l'on double N, on réduit la vitesse de l'algorithme d'un facteur 4. Après validation des paramètres choisis, la trace FROG mesurée s'affiche à l'écran. Étant donné que le bruit est indésirable pour des caractérisations d'impulsions complexes, ce programme offre

Licence CC BY-NC-ND 3.0

un outil de filtrage afin de raffiner les données mesurées et de réduire l'intensité du bruit. Certes, il est conseillé d'améliorer le rapport signal à bruit lors des mesures expérimentales, mais si ce rapport n'est pas suffisamment satisfaisant, il est important de réduire le bruit numériquement pour faciliter la convergence de l'algorithme.

Une fois l'implémentation des données est faite, on lance l'algorithme de reconstruction. Plusieurs sous-fenêtres s'affichent comme on peut le voir sur la figure II.14: deux petites fenêtres pour les traces FROG mesurée et récupérée, deux autres fenêtres qui affichent l'enveloppe du champ électrique de l'impulsion dans les domaines spectral et temporel, une fenêtre de convergence d'erreur et enfin une fenêtre affichant les différents résultats. Étant donné que l'algorithme ne se n'arrête pas automatiquement, il y a une autre fenêtre de contrôle qui permet d'arrêter ou de mettre en pause l'algorithme manuellement. Les données reconstruites seront stockées par la suite dans plusieurs fichiers sous un répertoire défini à l'avance. Ces données sont ensuite traitées sous Matlab.

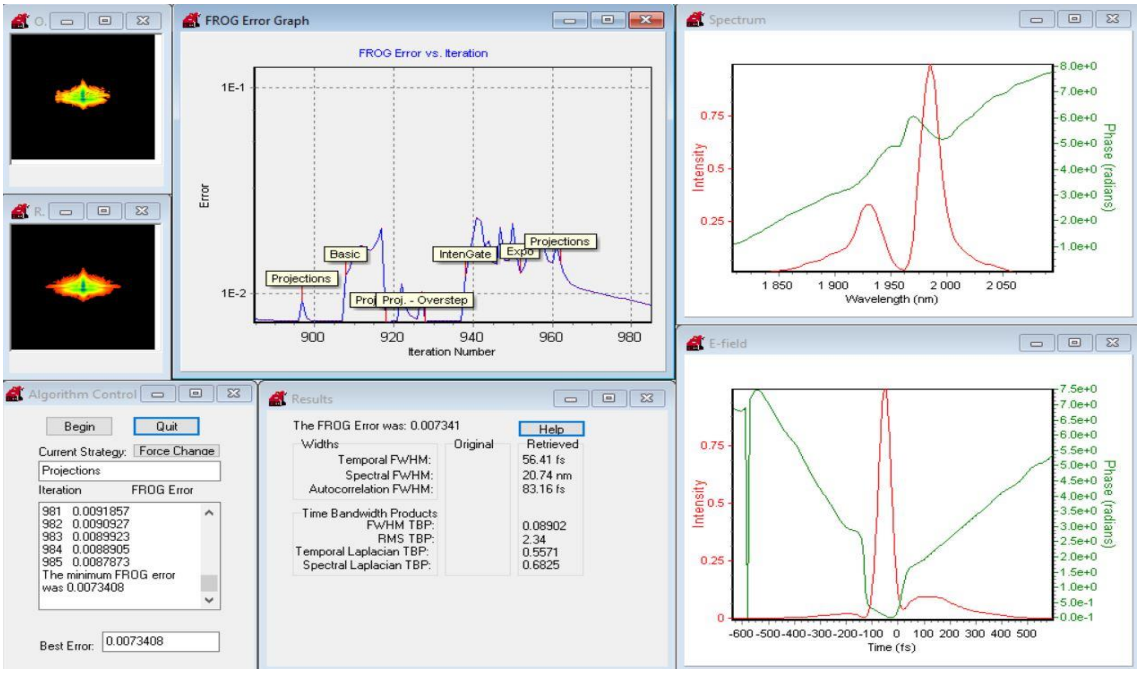


Figure II.14 : Interface du programme de traitement FROG

II.5.2. Applications du dispositif SHG-FROG

II.5.2.1. Caractérisation d'une source solitonique à 1,7 µm

Une fois notre dispositif mis en place, des mesures ont été faites pour vérifier sa fiabilité. La caractérisation d'une source laser développée au laboratoire par notre équipe a été faite. Cette source délivre des impulsions de l'ordre de 70-80 fs par fission et décalage solitonique sur une bande spectrale allant de 1650 à 1700 nm avec une énergie de 8 nJ. Cette source a été exploitée pour la microscopie à 3 photons [108]. Le spectre et la trace d'autocorrélation du laser sont présentés sur la figure II.15. L'impulsion est centrée à 1700 nm avec une durée temporelle de 80 fs mesurée avec un autocorrélateur en intensité commercial.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

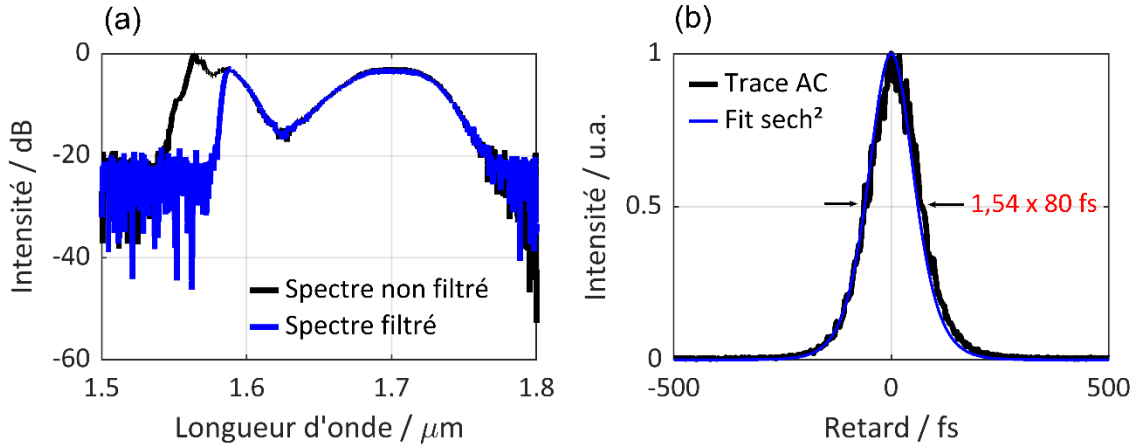


Figure II.15 : Mesure spectrale et trace d'autocorrélation du laser à 1,7 µm du laboratoire

J'ai caractérisé le laser avec notre dispositif expérimental FROG. La figure ci-dessous montre les traces SHG-FROG mesurée et reconstruite par l'algorithme de reconstruction. L'erreur FROG après ~1000 itérations était de l'ordre de 0,1 % sur une grille de 512 ×512. La mesure était en bon accord avec celle faite à l'autocorrélateur commercial et indique que la durée d'impulsion est 80,8 fs.

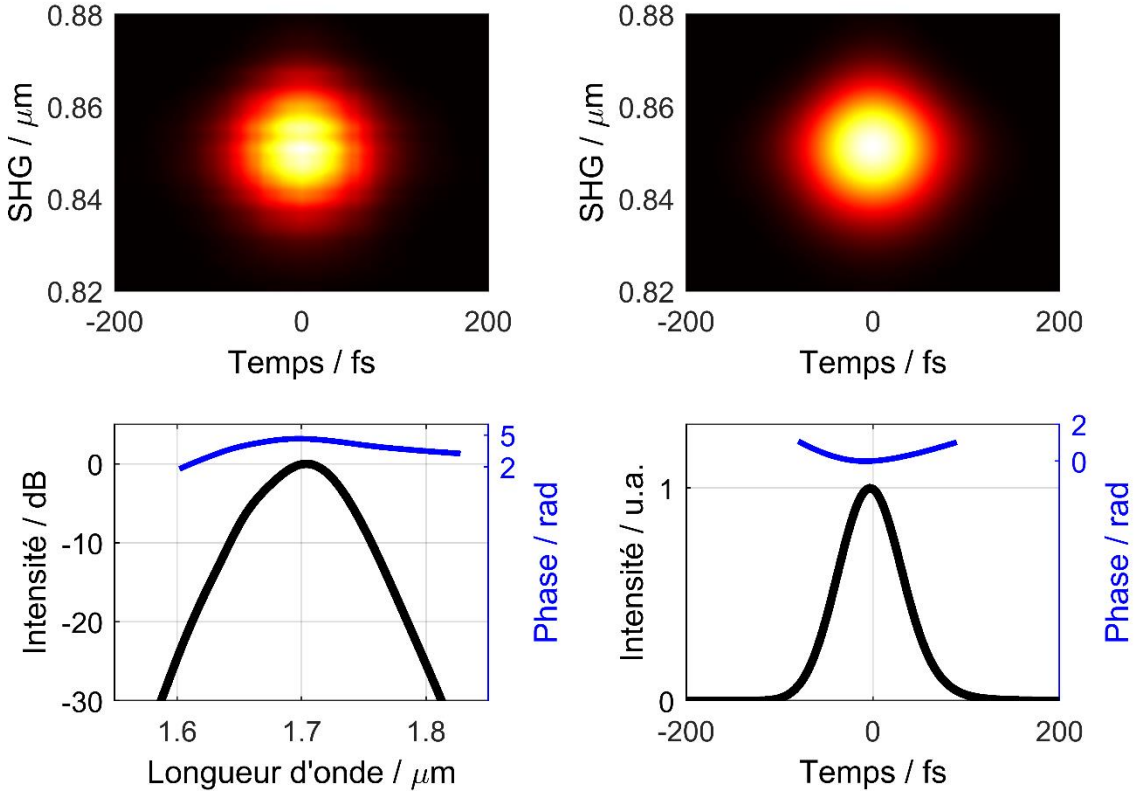


Figure II.16 : Mesure SHG-FROG du laser du laboratoire

Selon la mesure de SHG-FROG, l'impulsion a accumulé une légère phase quadratique lors de sa propagation. La phase quadratique issue de la mesure FROG me semble justifiée étant donné que sa largeur spectrale à mi-hauteur, mesurée à l'OSA et reconstruite par l'algorithme, est de 60 nm. Cela correspond à une durée temporelle en limite de Fourier de 50 fs à 1,7 µm. Il est évident alors que le soliton s'est dispersé dans la fibre de décalage et lors de son passage par la lentille de collimation. Il accumule une phase quadratique et une dérive de fréquence

Licence CC BY-NC-ND 3.0

négative par le régime de dispersion de la fibre. Cela s'est traduit par un étalement temporel, c'est pourquoi on a mesuré 80 fs au lieu de 50 fs. Une interpolation de la phase spectrale autour de la longueur d'onde centrale, λ_0, indique qu'elle présente une phase quadratique de valeur $\psi_2 L = -1.28\times10^4$ fs². Sachant que la dispersion de vitesse de groupe β_2 de la fibre en silice utilisée pour le décalage solitonique est de $\beta_2 = -3{,}95\times10^4$ fs²/m à 1,7 µm, on peut déduire que la phase accumulée par l'impulsion est due à la propagation le long de cette fibre de longueur 3 m.

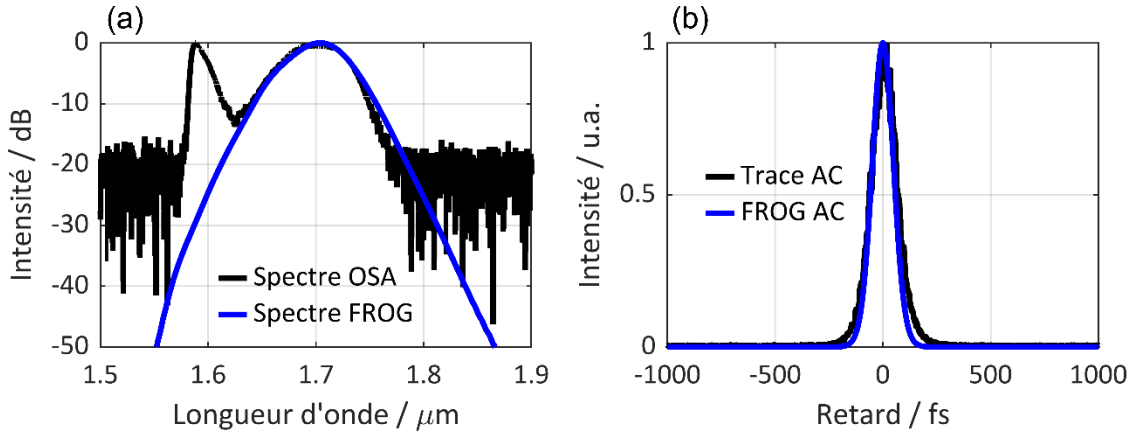


Figure II.17 : (a) profil spectral issu de l'analyseur de spectre optique (en noir) et celui obtenu avec le SHG-FROG (en bleu). (b) profil temporel issu de l'autocorrélateur d'intensité (en noir) et celui obtenu avec le SHG-FROG (en bleu)

Afin de vérifier davantage la fiabilité de mesure, j'ai comparé la mesure obtenue à l'autocorrélateur d'intensité commercial avec celle obtenue par l'algorithme du FROG ainsi que le spectre mesuré à l'analyseur de spectre optique avec celui reconstruit. La figure II.17 montre le bon accord entre les traces obtenues expérimentalement par l'autocorrélateur et l'analyseur de spectre avec celles issues de l'algorithme de reconstruction. Le spectre issu de l'algorithme FROG n'inclut pas le résidu autour de 1580 nm en raison de sa faible puissance crête qui ne déclenche pas le processus non linéaire dans le cristal doubleur de fréquence. Ainsi que pour assurer un traitement numérique propre, j'ai effectué un filtrage spectral numérique à la trace FROG mesurée afin de ne garder que le soliton centré à 1700 nm. Selon la mesure et le bon accord entre les deux spectres et les traces d'autocorrélation, on peut déduire que le résultat était satisfaisant.

II.5.2.2. Compression temporelle à 1,7 µm

Une partie de mes travaux de thèse consistait à compresser temporellement la source à 1,7 µm présenté précédemment et utiliser notre dispositif SHG-FROG pour la caractériser. Deux approches de compression temporelle sont couramment utilisées. La compression multi-solitonique et la compression à deux étages non-linéaire/linéaire. La première approche sera présentée et utilisée dans le chapitre suivant. La deuxième approche que j'ai utilisée ici est présentée sur la figure III.18. Elle consiste à élargir spectralement l'impulsion issue de la source dans une fibre fortement non linéaire puis à la compresser temporellement dans une deuxième fibre imposant une dérive de fréquence opposée [109]. En sortie de la première fibre, l'impulsion initiale devrait avoir un spectre beaucoup plus large qu'au départ et par conséquent elle sera plus courte temporellement en sortie de l'étage de compression.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

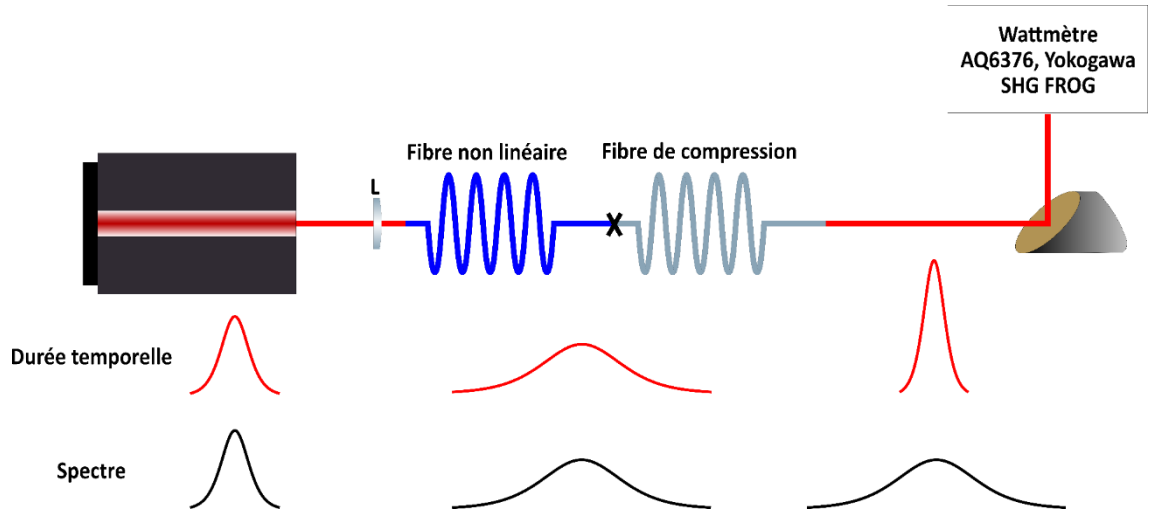


Figure II.18 : Principe de la compression temporelle non-linéaire/linéaire d'une impulsion

L'impulsion émise par le laser présente une durée temporelle de 80 fs à 1,7 µm. Elle a une puissance moyenne de 400 mW à un taux de répétition de 50 MHz ce qui correspond à une énergie de 8 nJ et une puissance crête d'environ 90 kW. La fibre optique non linéaire utilisée ici appartient à la famille des fibres optiques « *Ultra-High NA Silica Fiber* UHNA4 » fabriquées par l'entreprise Nufern et commercialisées par Thorlabs [110]. Elle présente une dispersion normale entre 1 à 2 µm. Ces fibres UHNA sont des fibres en silice avec un cœur étroit fortement dopée en dioxyde de germanium GeO_2 (de 20 % - 30 %) [111]. La fibre que j'ai utilisée est la fibre UHNA4. Selon le fabricant, cette fibre présente un diamètre de cœur de 2,2 µm avec une ouverture numérique de 0,35. La courbe de dispersion issue des modélisations est présentée sur la figure II.19(a). La dispersion de la fibre UHNA4 varie peu entre 1,2 et 2 µm et elle est d'environ -55 $ps.nm^{-1}.km^{-1}$ à 1,7 µm [112].

On a vu dans la partie précédente que dans un régime de dispersion normal (D < 0), tout comme pour l'effet de l'automodulation de phase, les basses fréquences se propagent plus rapidement que les hautes fréquences. Cela signifie que ces deux effets vont s'additionner et agir ensemble sur l'impulsion. Cela se traduit par un élargissement temporel et spectral de l'impulsion en sortie de la fibre UHNA4.

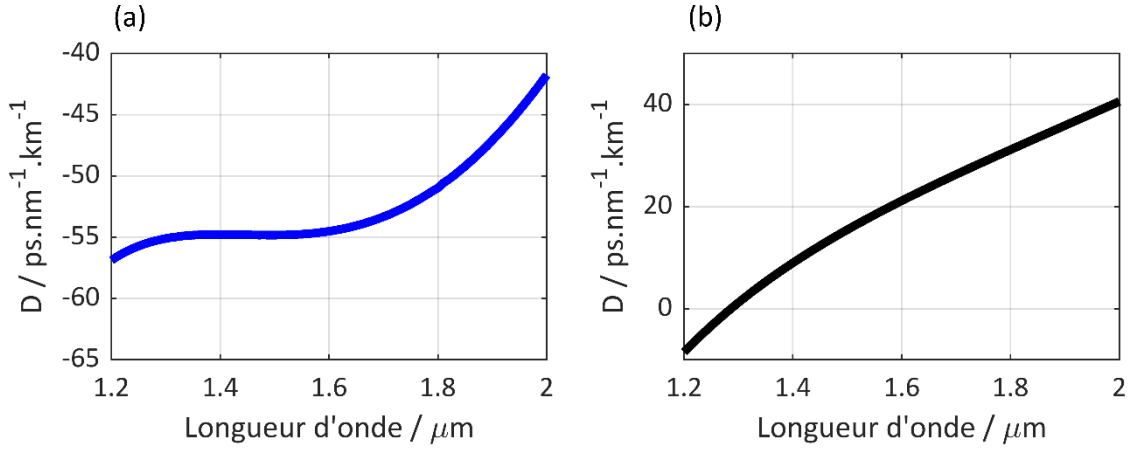


Figure II.19 : Courbes de dispersion de **(a)** la fibre UHNA4 et **(b)** la fibre SMF28 standard

Le montage expérimental est semblable à celui de la figure II.18. Le faisceau de la source est injecté dans 4,5 cm de fibre UHNA4 à l'aide d'une paire de lentilles de focales respectives

Licence CC BY-NC-ND 3.0

(L1 = 15 mm et L2 = 3 mm). Le rendement d'injection est de l'ordre de 70 %. Une puissance moyenne de 280 mW est mesurée en sortie de la fibre non linéaire. Les mesures, temporelle et spectrale, issues du SHG-FROG et de l'analyseur de spectre optique sont présentées sur la figure II.20 et sont en bon accord avec les modélisations numériques réalisées.

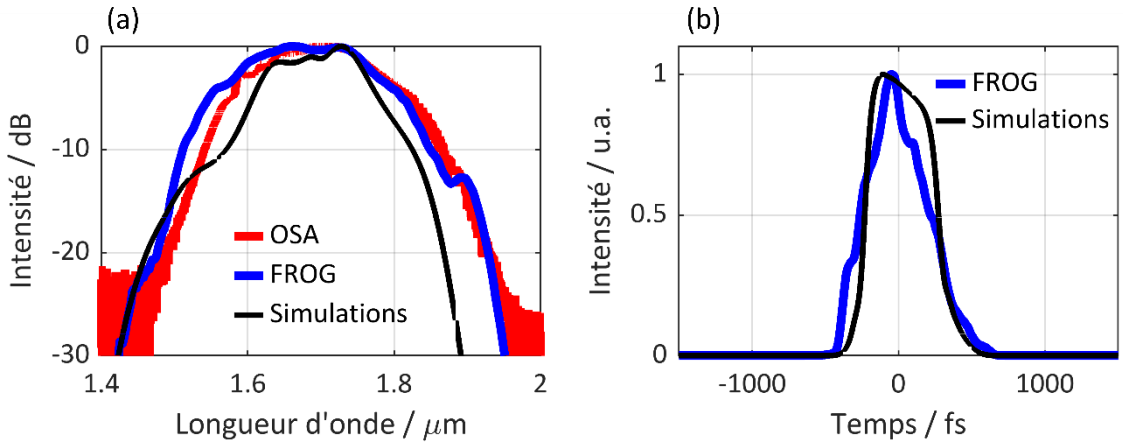


Figure II.20 : Profils spectral et temporel de l'impulsion en sortie de la fibre UHNA issus des mesures expérimentales et des modélisations numériques

La durée temporelle de l'impulsion en sortie est de 480 fs. La mesure SHG-FROG indique que la phase spectrale de l'impulsion est quadratique avec une valeur, après une interpolation polynomiale, de $\psi_2 L = 3{,}17\times10^4$ fs². Cela se traduit par une dérive de fréquence positive qui doit pouvoir être compensée par la phase induite par une fibre à dispersion anormale. La largeur spectrale à mi-hauteur de l'impulsion est de 185 nm. Cela veut dire que la durée temporelle en limite de Fourier qu'elle peut atteindre après compression est de 16,5 fs à 1,7 µm. Il s'agit d'une durée 4 fois plus courte que celle de l'impulsion initiale. Étant donné que la fibre UHNA4 présente une dispersion normale, j'ai alors décidé d'utiliser une fibre SMF28 standard pour compenser la dérive de fréquence accumulée par l'impulsion. La dispersion de la fibre standard est présentée sur la figure II.19(b). Cette fibre a une dispersion de 26 $ps.nm^{-1}km^{-1}$ à la longueur de pompe. Cela veut dire que la dérive de fréquence due à la fibre UHNA4 est, à longueur identique, deux fois supérieure à celle de la SMF28 en signe opposé. Cette approximation ne prend pas en compte la dérive de fréquence due à l'automodulation de phase qui va augmenter davantage la dérive de fréquence globale. On peut déduire alors qu'il faut au moins une longueur deux fois plus longue de fibre standard pour compenser cette dérive de fréquence. J'ai commencé par souder un tronçon de 16 cm de SMF28 à la fibre UHNA4, soit environ 4 fois la longueur de cette dernière. Ensuite je l'ai découpée par petits morceaux tout en mesurant la durée temporelle de l'impulsion en sortie. L'évolution temporelle de l'impulsion, mesurée au SHG-FROG, en fonction de la longueur de fibre de compression est présentée sur la figure II.21. Elle montre un bon accord entre les mesures faites avec le SHG-FROG et celles retrouvées avec les modélisations numériques.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

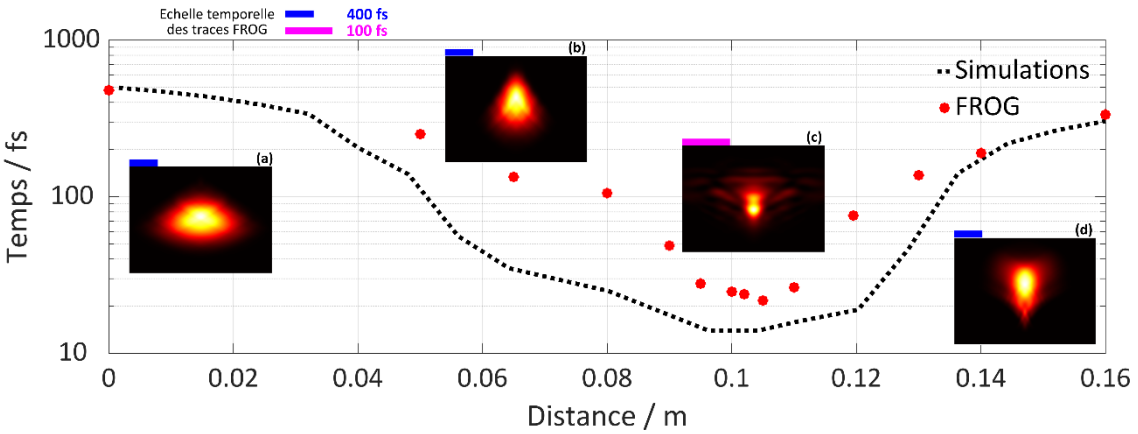


Figure II.21 : Évolution temporelle de l'impulsion en fonction de la longueur de fibre de compression issue des résultats expérimentaux, en rouge, et des modélisations numériques, en noir.

La durée minimale trouvée en simulation était de 15 fs après une longueur de propagation de 10 cm. La durée temporelle minimale, à la même longueur, mesurée au SHG-FROG est présentée sur la figure II.22.

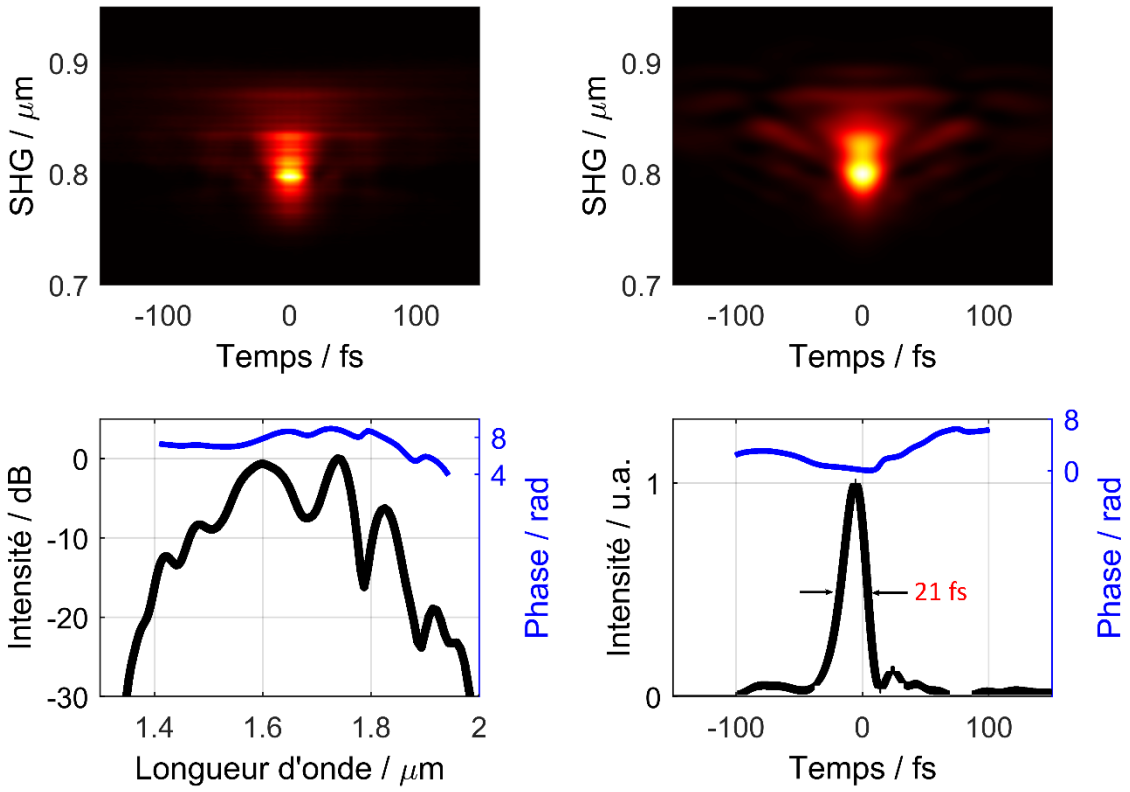


Figure II.22 : Mesure SHG-FROG de l'impulsion comprimée à 1,7 µm

Les traces SHG-FROG de la figure II.21 montrent l'évolution temporelle des composantes spectrales dans l'impulsion. Pour de courtes longueurs de fibre, la trace FROG sur la figure II.21(a) s'étend sur une large fenêtre temporelle, environ 1,2 ps. L'impulsion est dispersée avec une durée de 450 fs. La phase spectrale mesurée au SHG-FROG après 5 cm de propagation est quadratique et sa valeur, après une interpolation polynomiale, est passée de $3{,}17\times10^4$ fs² à $1{,}473\times10^4$ fs². Plus la longueur de la fibre SMF28 augmente, plus cette dérive de fréquence se compense. Après 8 cm, la phase quadratique accumulée est passée à $9{,}81\times10^3$ fs². Les composantes spectrales commencent à se mettre en phase et se

Licence CC BY-NC-ND 3.0

concentrent au centre de la trace FROG (figure II.21(b)). Pour une longueur de 10 cm, les composantes spectrales de l'impulsion s'alignent verticalement comme le montre la figure II.21(c). On a une compensation maximale de la dérive de fréquence. À cette longueur, la fenêtre temporelle totale de la trace FROG est de 300 fs et la mesure indique que la durée temporelle à mi-hauteur de l'impulsion est de l'ordre de 21 fs avec une erreur de 0,4 %. L'impulsion présente un piédestal et une phase temporelle cubique dus à la dispersion d'ordre 3 de la fibre SMF28 comme le montre la figure II.22. Il serait possible de mieux compresser cette impulsion en utilisant par exemple une paire de miroirs chirpés optimisés pour la compensation de la phase cubique induite dans le montage [113]. Au-delà de 10 cm, la dispersion anormale de la fibre SMF28 domine. Le signe de la dérive de fréquence est inversé. La phase spectrale interpolée indique des valeurs de $\psi_2 L = -8{,}23\times10^3$ fs² et $\psi_2 L = -1{,}09\times10^4$ fs² après 14 et 16 cm de propagation respectivement. L'impulsion acquiert donc une dérive de fréquence négative et commence de nouveau à s'étaler temporellement.

Le rendement d'injection entre la fibre UHNA4 et la fibre SMF28 était de 46 %. La puissance mesurée en sortie du montage est de 128 mW. Cela donne une énergie par impulsion de l'ordre de 2,6 nJ. À 10 cm de fibre, la durée d'impulsion est de 21 fs ce qui donne une puissance instantanée d'environ 100 kW. On constate alors qu'on est passé d'une impulsion à plus de 14 cycles optiques (un cycle optique égale à λ/c) à une impulsion de moins de 4 cycles optiques tout en gardant la même puissance crête par impulsion.

II.5.2.3. Caractérisation d'une source commerciale

Une autre mesure expérimentale a été faite au sein de l'entreprise NOVAE sur un laser qui délivre des impulsions de 60 fs à 1970 nm avec 170 nJ d'énergie. Les mesures d'autocorrélation d'intensité et de spectre du laser fournies par le fabricant sont présentées ci-dessous :

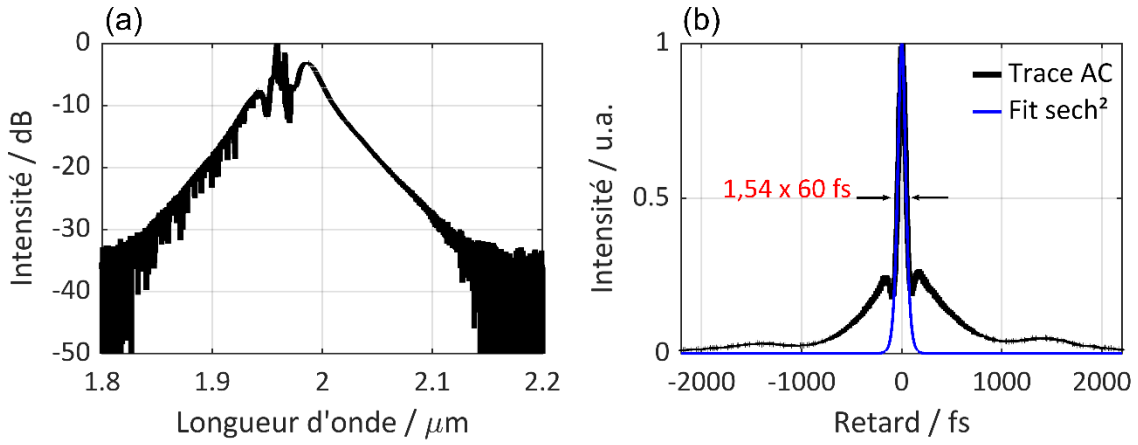


Figure II.23 : Spectre et trace d'autocorrélation du laser NOVAE

À première vue, selon le piédestal dans la trace d'autocorrélation, il est clair que la forme temporelle de l'impulsion est asymétrique et comprend des oscillations. Ceci remet en question l'énergie concentrée dans le lobe principal de l'impulsion. Une approximation du pic temporel principal de l'impulsion par une fonction sech² suggère que ce pic contient 25 % de l'énergie. La mesure SHG-FROG a été effectuée sur ce laser pour vérifier ce résultat. Les résultats sont présentés sur la figure II.24. La durée d'impulsion a été mesurée à 56 fs dont environ 60 % de l'énergie totale est contenue dans le lobe principal. La mesure FROG indique que la fraction d'énergie contenue dans le lobe principal est supérieure à ce que laissait penser

Licence CC BY-NC-ND 3.0

la mesure d'autocorrélation. La mesure FROG est donc plus pertinente que la mesure d'autocorrélation pour la détermination de la puissance crête de cette d'impulsion.

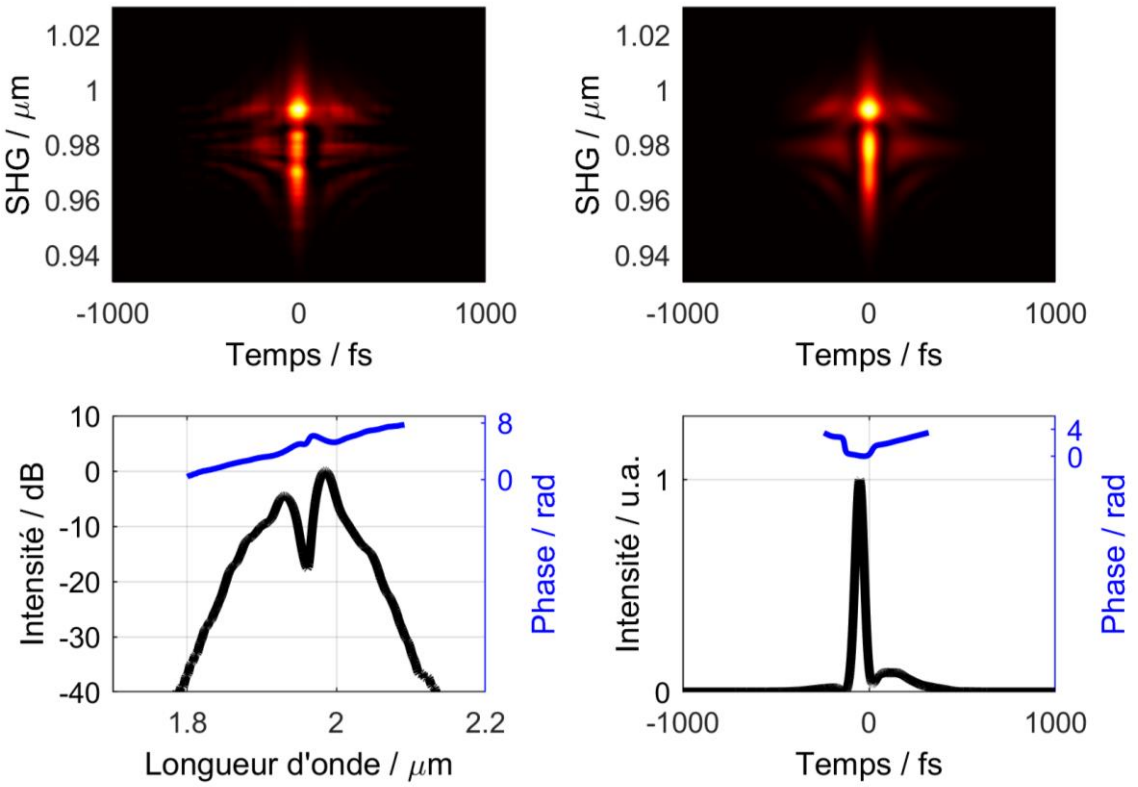


Figure II.24 : Mesure SHG-FROG du laser NOVAE

Tout comme je l'ai fait précédemment, j'ai comparé les mesures issues de l'analyseur de spectre et de l'autocorrélateur d'intensité avec celles obtenues avec l'algorithme de reconstruction FROG. La figure II.25 ci-dessous montre une comparaison entre la mesure directe avec l'autocorrélateur commercial et celle obtenue par l'algorithme du FROG.

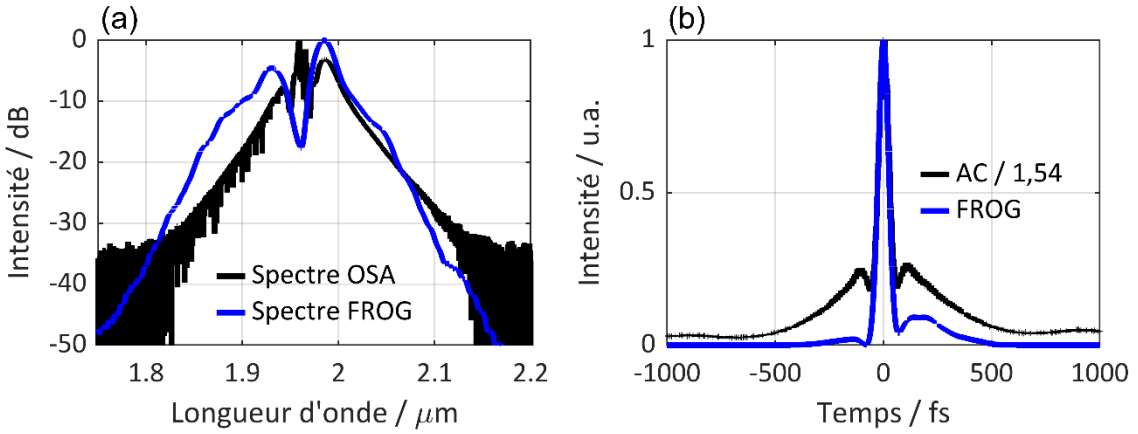


Figure II.25 : (a) profil spectral issu de l'analyseur de spectre optique (en noir) et celui obtenu avec le SHG-FROG (en bleu). (b) profil temporel issu de l'autocorrélateur d'intensité (en noir) et celui obtenu avec le SHG-FROG (en bleu) du laser NOVAE

Le profil spectral reconstruit est un peu différent de celui mesuré à l'OSA. Ceci est peut-être dû à la complexité du profil spectral de l'impulsion ou bien à un effet non linéaire au niveau du cristal doubleur vu la puissance élevée des impulsions. D'un point de vue général, la

Licence CC BY-NC-ND 3.0

caractérisation du laser avec notre dispositif expérimental est satisfaisante et nous a permis de déduire la puissance concentrée dans le lobe central des impulsions qui est de l'ordre de 100 nJ.

Durant ma thèse je me suis servi de ce dispositif expérimental, que j'ai dupliqué en deux instruments identiques, pour la caractérisation temporelle d'impulsions. Un premier dispositif SHG-FROG à base de cristal doubleur en beta-borate de baryum BBO pour les applications dans l'infrarouge proche et un deuxième dispositif avec un cristal en thiogallate d'argent $AgGaS_2$ pour les applications dans le moyen infrarouge.

II.6. Conclusion

Dans ce chapitre, j'ai introduit les impulsions courtes et leurs notions mathématiques. J'ai étudié leur propagation dans des fibres optiques passive par des modélisations en utilisant l'équation non linéaire de Schrödinger. On a vu l'impact de la dispersion chromatique et l'effet de l'automodulation de phase sur les profils, temporel et spectral, de l'impulsion lors de sa propagation. La fréquence instantanée au sein de l'impulsion définit le régime de sa propagation. Il existe deux régimes de propagation dans les fibres optiques. Chaque régime est déduit de la valeur de la dispersion chromatique de la fibre. Un régime de dispersion normale quand la dérive de fréquence de l'impulsion est positive dans lequel les basses fréquences se propagent plus rapidement que les hautes fréquences. Un deuxième régime de dispersion anormale quand la dérive de fréquence de l'impulsion est négative dans lequel les hautes fréquences se propagent plus rapidement que les basses fréquences. Dans ce régime, la dérive de fréquence due à la dispersion chromatique est en opposition avec la dérive de fréquence par automodulation, ce qui peut donner naissance à un régime de propagation particulier. Ce régime de propagation sera étudié en détail dans le chapitre suivant.

Ensuite, j'ai introduit les méthodes de caractérisation d'impulsions courtes. On a vu que la récupération de la phase de l'enveloppe est impossible lorsque l'on ne dispose de données que selon une seule dimension temporelle ou fréquentielle acquises respectivement par un autocorrélateur ou un spectromètre. C'est-à-dire qu'une caractérisation complète de l'impulsion en amplitude et phase nécessite la mise en œuvre des systèmes de caractérisation bidimensionnelle tels que la corrélation résolue en fréquence par génération de seconde harmonique (SHG-FROG), une méthode qui a démontré son efficacité, sa sensibilité et sa fiabilité pour mesurer de telles impulsions courtes. Des algorithmes de reconstruction de phase ont aussi été développés et distribués. On a vu que la vitesse d'inversion des spectrogrammes FROG a été grandement améliorée par le développement de l'algorithme de projections généralisées en composantes principales (PCGP) permettant de concevoir des dispositifs FROG en temps réel faisant de cette technique FROG l'une des techniques de mesure d'impulsions les plus populaires.

J'ai présenté, à la fin du chapitre, le dispositif expérimental que j'ai installé au laboratoire et quelques applications dans lesquelles il a été utilisé. Ce dispositif a été inspiré des travaux de Dominic Franz, doctorant au CEA LyDIL, laboratoire partenaire du projet européen PETACom dans le cadre duquel j'effectue ma thèse de doctorat. Les applications de ce dispositif expérimental ont montré sa capacité à caractériser des impulsions compressées à sub-4 cycles optiques avec des erreurs allant jusqu'à 0,4 %, en bon accord avec les modélisations numériques. On était en mesure de l'utiliser pour la caractérisation d'une source laser commerciale et d'avoir une mesure plus pertinente pour la détermination de la puissance

Licence CC BY-NC-ND 3.0

crête des impulsions asymétriques délivrées par cette source. Ce dispositif sera utilisé pour caractériser les sources solitoniques que je développerai dans le MIR.

Jusqu'ici nous avons abordé les effets linéaire et non linéaire séparément. Or, une impulsion se propageant dans une fibre optique subit les effets linaire et non linéaires simultanément, qui se compensent ou s'additionnent selon le régime de dispersion utilisé. Cela peut mener à la déformation temporelle et spectrale de l'impulsion, à sa fission, ou au maintien de ses profils lors de la propagation. Tout dépend de la géométrie de la fibre et des paramètres de la source utilisée. En ajustant ces paramètres, on peut donner naissance à un régime bien particulier qu'on nomme le « régime solitonique ». Ce régime sera discuté durant le prochain chapitre et utilisé dans l'ensemble de mes travaux portant sur les sources SSFS dans le MIR.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Chapitre III. Le régime solitonique et les sources à décalage solitonique dans l'IR moyen

III.1. Le régime solitonique

Nous avons, lors du chapitre précédent, les effets linéaires/non linéaires majeurs (la dispersion chromatique et l'automodulation de phase) que subit une impulsion courte durant sa propagation dans une fibre optique. Jusqu'ici, ces deux effets étaient étudiés séparément, mais cette approximation n'est pas valide dans le cas d'impulsions ultracourtes véhiculant une énergie élevée. Une impulsion courte avec assez d'énergie subit, durant sa propagation, l'ensemble des effets linéaires et non linéaires simultanément. Leur combinaison, sous certaines conditions, peut donner naissance à un régime de propagation unique qu'on appelle le « régime solitonique ».

La propagation des impulsions courtes dans des fibres optiques peut être dérivée des équations de Maxwell. Lorsque de telles impulsions se propagent à travers la fibre, les effets dispersifs et non linéaires ramènent des modifications sur leurs profils temporel et spectral. Si nous considérons $\widetilde{A}(z,t)$ l'amplitude lentement variable de l'enveloppe de l'impulsion, alors on peut écrire l'équation différentielle de propagation (équation de Schrödinger non linéaire) de la façon suivante :

$$i\frac{\partial \widetilde{A}}{\partial z} - \frac{1}{2}\beta_2 \frac{\partial^2 \widetilde{A}}{\partial T^2} + \gamma|\widetilde{A}|^2\widetilde{A} = 0 \qquad \text{(III-1)}$$

Dans cette équation on traite la propagation d'une impulsion dans une fibre optique présentant les effets de dispersion d'ordre 2, au travers de β_2, et l'effet Kerr, au travers de γ. Les pertes de propagation sont négligées. Sous certaines conditions de puissance crête et de durée, il existe une solution unique d'une impulsion de forme sécante hyperbolique qui, à une longueur d'onde donnée, pourra se propager le long de la fibre sans distorsion ni changement de forme. Cette impulsion est un soliton optique fondamental. Le choix de la durée de l'impulsion et de la puissance crête devra satisfaire la condition $L_D = L_{NL}$. En d'autres termes, pour qu'un soliton fondamental existe dans une fibre optique, il faut que $\hat{P}_0 = |\beta_2(\lambda)|/\tau^2\gamma$. L'ordre du soliton peut être calculé selon la relation suivante :

$$N^2 = \frac{L_D}{L_{NL}} = \frac{\gamma \hat{P}_0 \tau^2}{|\beta_2(\lambda)|} \qquad \text{(III-2)}$$

Dans le cas du soliton fondamental, N = 1.

Sachant que la puissance crête d'une impulsion sécante hyperbolique est $\hat{P}_0 = 0{,}88\, E_{pulse}/\Delta t$ et que $\Delta t = 1{,}763.\tau$, l'énergie du soliton fondamental peut être déduite de la relation suivante :

$$E_{Soliton} = \frac{1.763.\tau}{0.88}\frac{|\beta_2(\lambda)|}{\tau^2\gamma} \approx 2\frac{\lambda.|\beta_2(\lambda)|.A_{eff}(\lambda)}{2\pi.n_2.\tau} \qquad \text{(III-3)}$$

Les paramètres de l'impulsion lors des modélisations dans ce chapitre, tenant compte les effets linéaires et non linéaires, seront donnés sous la forme : forme d'impulsion, longueur d'onde, largeur spectrale, durée à mi-hauteur, durée à 1/e et énergie. Les paramètres de la fibre seront présentés ainsi : longueur de fibre, aire effective, dispersion de vitesse de groupe et indice non linéaire.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

La figure III.1 présente la propagation d'une impulsion de forme sécante hyperbolique (λ_0 = 1,56 µm, $\Delta\lambda_p$ = 25,5 nm, Δt = 100 fs, τ_G = 56,7 fs) dans une fibre optique SMF28 (L = 1 m, A_{eff} = 65 µm², β_2 = -2,37×10^4 fs²/m, n_2 = 2,24×10^{-20} m²/W).

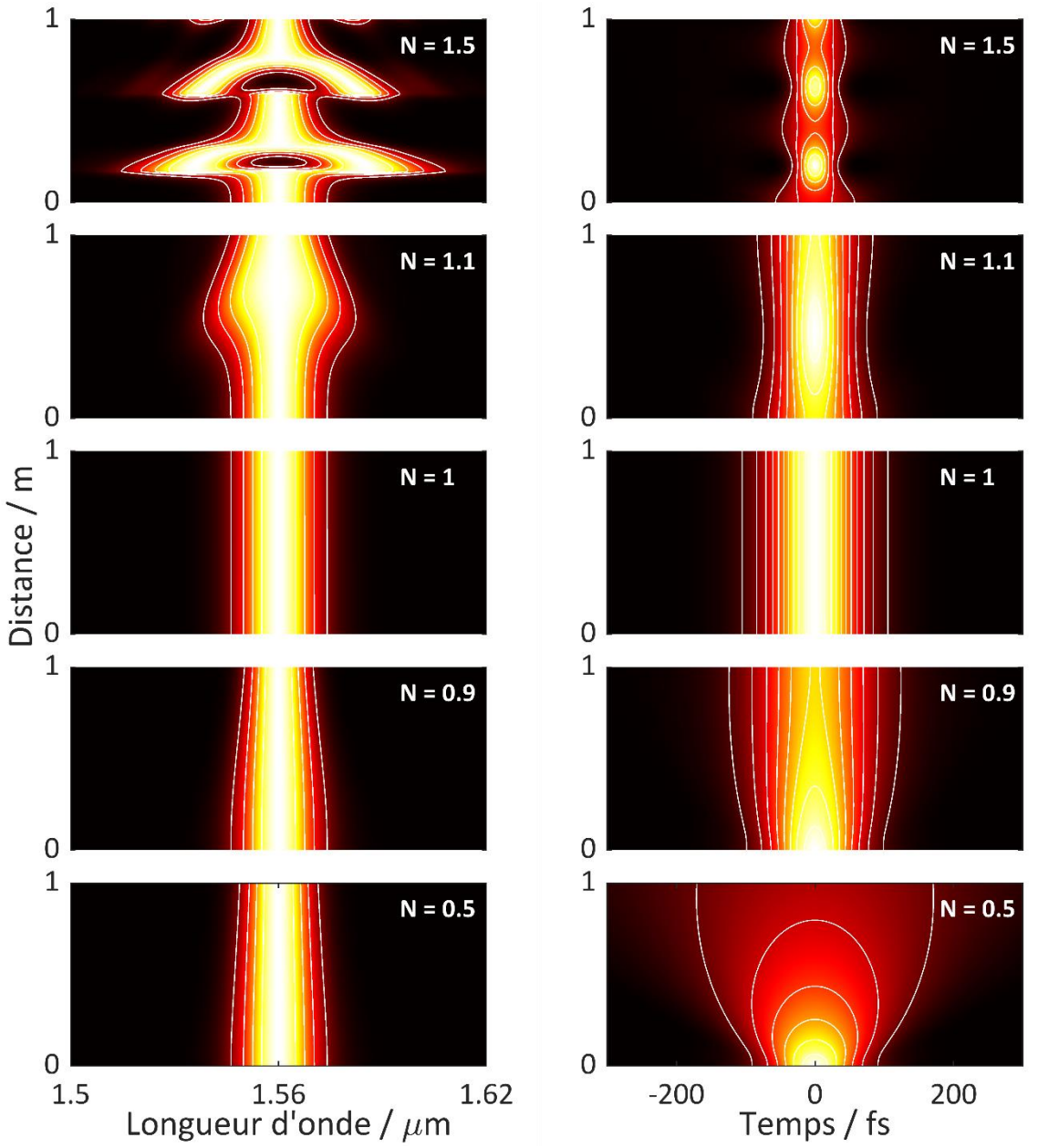


Figure III.1 : Évolution temporelle et spectrale d'une impulsion avec des ordres N = 0,5 ; N = 0,9 ; N = 1 ; N = 1,1 et N = 1,5 dans 1 m de fibre SMF28.

L'énergie d'un soliton fondamental (N = 1) satisfaisant l'équation III.2 est 0,6 nJ. En variant l'énergie injectée de 0,15 nJ à 1,35 nJ, on varie l'ordre de soliton dans la fibre de N = 0,5 à N = 1,5. Selon la figure, lorsque l'ordre du soliton est inférieur à 1, l'impulsion subit la dispersion chromatique, l'impulsion s'étale temporellement durant sa propagation. Plus l'énergie augmente, plus l'impulsion tend à maintenir ses profils, temporel et spectral, inchangés. Cela est en relation avec la longueur de dispersion et la longueur non linéaire dans la fibre. Pour **N = 0,5 (E = 0,15 nJ)**, la longueur de dispersion L_D = 0,135 m et la longueur non

Licence CC BY-NC-ND 3.0

linéaire L_{NL} = 0,54 m. L_D est très inférieur à L_{NL} ($L_{NL} = 4 \times L_D$). Cela veut dire qu'au bout de 0,135 m les effets dispersifs dominent et l'impulsion s'étale temporellement de 1,414. La durée temporelle mesurée à cette longueur est de 140 fs. La puissance crête de l'impulsion diminue donc de 30 %. La longueur non linéaire étant encore plus grande, la dispersion continue à dominer et la puissance crête continue à baisser. Cela réduira considérablement la non-linéarité dans la fibre et ainsi l'impulsion ne fera que s'étaler temporellement durant sa propagation. La durée temporelle en sortie de fibre est de 400 fs. Lorsque **N = 0,9 (E = 0,49 nJ)**, L_D = 0,135 m et L_{NL} = 0,167 m. La longueur non linéaire est légèrement supérieure à la longueur de dispersion. L'impulsion commence à s'étaler temporellement, mais sa dispersion est freinée rapidement par l'effet non linéaire dans la fibre. La puissance crête ne baisse que peu ce qui permettra à la SPM de coexister. Cela permet de compenser partiellement la dérive de fréquence due à la dispersion et ainsi ralentir son étalement temporel. La durée temporelle a tout de même augmenté en sortie de la fibre. Elle est passée de 100 à 140 fs. Quand **N = 1 (E = 0,6 nJ)**, $L_D = L_{NL}$ = 0,135. L'effet de la dispersion et de la non-linéarité coexistent à parts égales et se compensent tout au long de la fibre. La dérive de fréquence de l'impulsion est nulle et elle maintient sa durée et son spectre initial. En sortie de la fibre, l'impulsion est restée en limite de Fourier avec une durée temporelle de 100 fs avec une phase temporelle/spectrale nulle.

En augmentant davantage l'énergie de l'impulsion injectée dans la fibre, N augmente et la longueur non linéaire devient inférieure à la longueur de dispersion. Dans ce cas les effets non linéaires dominent dans la fibre. L'impulsion voit son profil spectral s'élargir, ce qui se traduit par une compression temporelle dans le temps. Avec une durée plus courte qu'au départ, la dispersion prendra le dessus sur la non-linéarité. L'impulsion s'étale alors dans le temps jusqu'à retrouver sa durée temporelle initiale. Par conséquent la non-linéarité augmente et domine de nouveau et ainsi de suite. En l'absence des pertes d'absorption et des effets non linéaires retardés, ce phénomène se répète tout le long de la fibre. Il s'agit de la propagation d'un soliton d'ordre supérieur. Ce principe est illustré plus en détail sur la figure III.2.

La figure III.2 présente la propagation d'une impulsion de forme sécante hyperbolique : λ_0 = 1,56 µm, $\Delta\lambda_p$ = 25,5 nm, Δt = 100 fs, τ_G = 56,7 fs et E = 2,41 nJ, se propageant dans une fibre SMF28 : L = 0,4 m, A_{eff} = 65 µm², $\beta_2 = -2{,}37 \times 10^4$ fs²/m, $n_2 = 2{,}24 \times 10^{-20}$ m²/W. La longueur de dispersion dans ce cas est $L_D \approx 13{,}6$ cm et la longueur non linéaire est $L_{NL} \approx 3{,}4$ cm. L'ordre du soliton est $N \approx 2$. La périodicité d'évolution des deux profils est calculable avec $L_{sol} = \pi . L_D / 2$. Ici, la périodicité du soliton est $L_{sol} \approx 21$ cm. Pendant les premiers centimètres de propagation, la non-linéarité dans la fibre domine en raison de la forte puissance crête du soliton. Il déclenche rapidement l'automodulation de phase et acquiert une dérive de fréquence positive comme on peut le voir sur la figure III.2(a). Le régime dispersif anormal dans la fibre SMF28 tente de compenser cette dérive de fréquence et de mettre toutes les composantes spectrales en phase. Le spectre étant plus large que le spectre initial, l'impulsion commence à s'auto-comprimer temporellement. Sa durée temporelle à cette longueur est de 34 fs.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

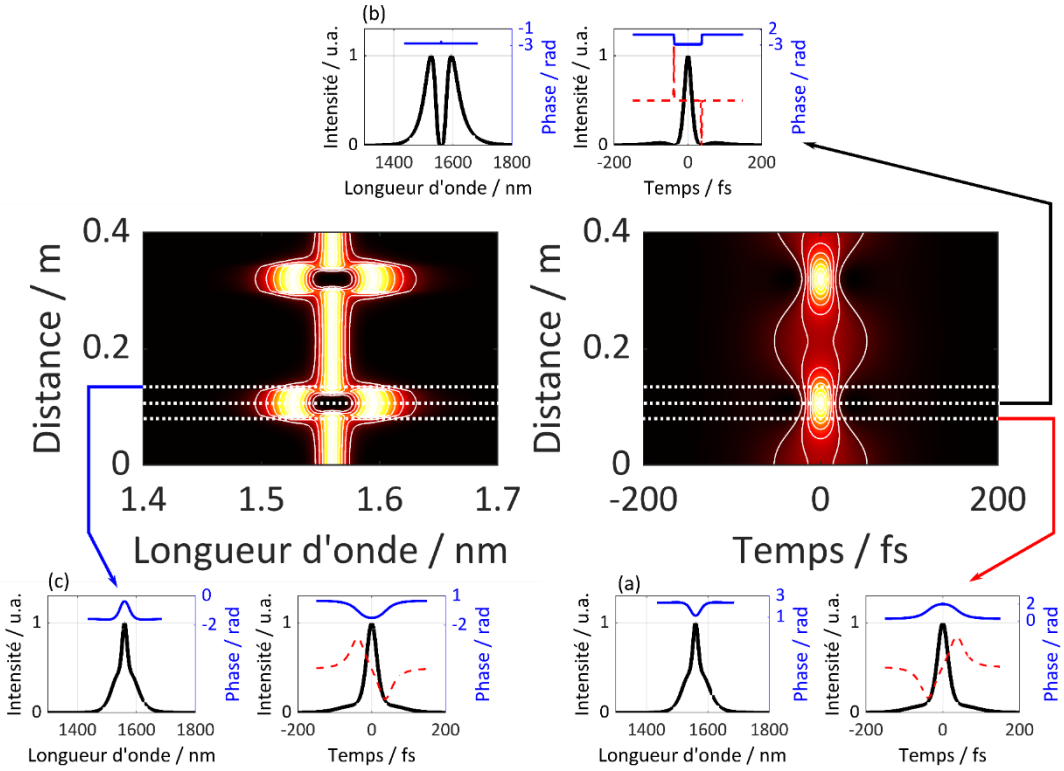


Figure III.2 : En bas de figure, l'évolution temporelle et spectrale d'un soliton d'ordre 2 se propageant dans 0,4 m de fibre SMF28.

Au point de compression, $L_{comp} = \pi.L_D/4$, le spectre de l'impulsion s'élargit à son maximum comme le montre la figure III.2(b). La dispersion arrive à compenser toute la dérive de fréquence et à mettre toutes les composantes spectrales en phase. À cette position, l'impulsion est en limite de Fourier avec une durée temporelle de 21 fs et une largeur spectrale à mi-hauteur de 127 nm. Au-delà de cette distance de propagation, la dispersion prend le dessus grâce à la courte durée d'impulsion qui a tendance à se disperser rapidement. La figure III.2(c) montre que la phase temporelle est inversée et l'impulsion commence à accumuler une dérive de fréquence négative. L'impulsion s'étale alors dans le temps et se comprime spectralement jusqu'à récupérer ses paramètres initiaux.

Cette évolution des solitons d'ordre supérieur est couramment exploitée dans les applications de post-compression non linéaire d'impulsions. Ce type de compression, en régime de dispersion anormale, est alors qualifié de « multi-solitonique ». Alors que les solitons fondamentaux sont généralement assez stables, les solitons d'ordre supérieur peuvent se décomposer en solitons fondamentaux sous l'influence de divers effets, tels que la dispersion d'ordre supérieur et la diffusion Raman. Une telle rupture de solitons joue un rôle essentiel dans le processus d'auto-décalage Raman des solitons et de la génération de supercontinuum dans les fibres optiques.

III.2. La diffusion Raman stimulée et l'auto-décalage Raman des solitons

III.2.1. La diffusion Raman stimulée

Jusqu'ici, nous avons traité la réponse linéaire et la réponse non linéaire **instantanée** des fibres optiques. Contrairement à l'effet Kerr optique qui est lié au mouvement des électrons, la diffusion Raman stimulée est due à la polarisabilité des molécules en présence d'un champ

Licence CC BY-NC-ND 3.0

électrique. Le temps de réponse dans le cas des molécules de silice est de l'ordre de 50 à 100 fs [114]. C'est un effet **retardé**.

Découvert par C.V Raman en 1928 [115], cet effet est une diffusion inélastique de la lumière sur les molécules constitutives du matériau au cours de laquelle il y a un échange d'énergie entre le photon incident et la molécule. L'échange d'énergie se traduit par une vibration moléculaire qui entraine la diffusion d'un photon « Stokes » à une fréquence plus basse que la fréquence du photon incident. Le photon incident peut également combiner son énergie avec un phonon préexistant permettant la génération d'un photon de fréquence supérieure appelée « photon anti-Stokes ». Ce second phénomène est moins probable que le premier.

La figure III.3 montre les diagrammes énergétiques représentant la diffusion Raman. Dans le cas d'une diffusion Raman Stokes spontanée (figure III.3(a)), le photon incident de fréquence ω_P fait passer la molécule d'un état fondamental à un état vibrationnel tout en passant par un état virtuel. Cette transition s'accompagne d'une émission d'un phonon de fréquence Ω_R d'énergie $\hbar\Omega_R$ et d'un photon de fréquence $\omega_S = \omega_P - \Omega_R$. Dans le contexte d'une excitation intense du milieu, la croissance de l'onde Stokes peut se faire de manière exponentielle, c'est la diffusion Raman stimulée (figure III.3(b)). Dans le cas où la molécule est déjà dans un état vibrationnel, un photon incident peut la faire repasser à son état neutre en émettant un photon de fréquence $\omega_{AS} = \omega_P + \Omega_R$. Cette diffusion est appelée diffusion anti-Stokes (figure III.3(c)), mais elle est peu probable vu la durée de vie très réduite du phonon optique.

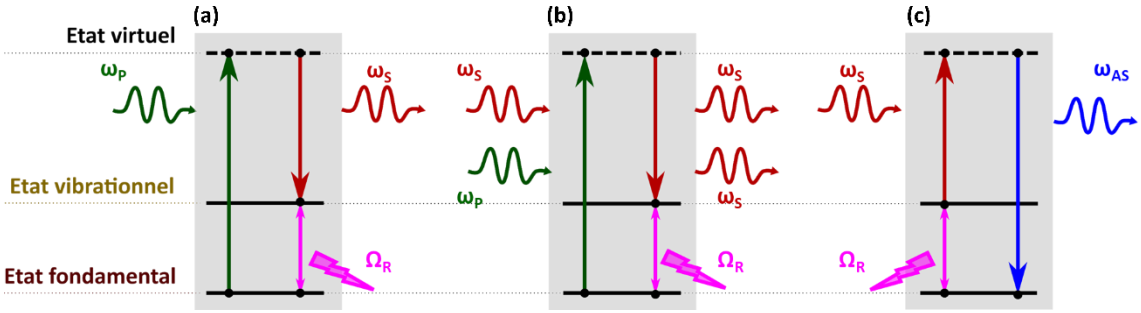


Figure III.3 : Diagramme d'excitation de la diffusion : a. Raman Stokes spontanée, b. Raman Stokes stimulée, c. Raman anti-Stokes

Le décalage en fréquence Ω_R dépend des molécules du matériau dans lequel a lieu la diffusion Raman. L'efficacité de conversion de l'énergie de la pompe vers le signal Stokes, par conséquent l'efficacité du décalage en fréquence, est quantifiée par le gain Raman $g_R(\Omega)$.

III.2.1.1. Réponse Raman des fibres en silice

La figure III.4(c) présente le spectre du gain Raman de la silice obtenu expérimentalement avec une pompe à $\lambda_0 = 1$ µm [114]. Le gain Raman de la silice s'étend sur une large bande de fréquence avec un gain maximum autour de 13,2 THz. Le gain Raman est proportionnel à la contribution Raman f_R et à la partie imaginaire de la réponse fréquentielle Raman $\tilde{h}_R(\Omega)$ présentée sur la figure III.4(b) [116].

$$g_R(\Omega) = \frac{2n_2 f_R \omega_0}{c} \Im\left(\tilde{h}_R(\Omega)\right) \qquad \text{(III-4)}$$

La contribution Raman f_R représente la portion d'énergie cédée par le champ électromagnétique au milieu afin de déclencher ce processus non linéaire (pour la silice

Licence CC BY-NC-ND 3.0

f_R = 0,18). Les parties, réelle et imaginaire, de la réponse fréquentielle, $\tilde{h}_R(\Omega_R)$, sont calculées à partir des relations de Kramers-Krönig avec $\Re(\tilde{h}_R(\Omega=0)) = 1$ et $\Im(\tilde{h}_R(\Omega=0)) = 0$. La réponse Raman temporelle de la silice $h_R(t)$, représentée sur la figure III.4(a), est une oscillation sinusoïdale décroissante. La période d'oscillation correspond à la fréquence du pic du spectre de gain Raman et le taux de décroissance correspond à la largeur du spectre de gain [114].

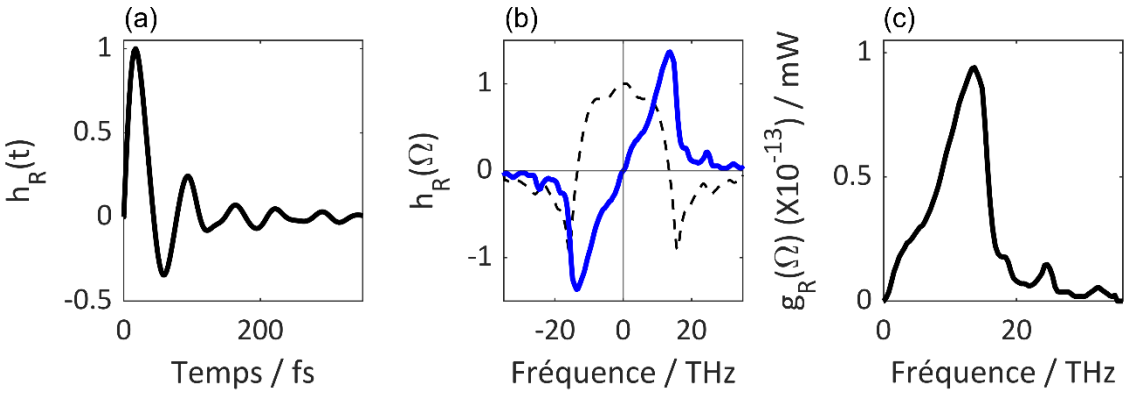


Figure III.4 : La réponse Raman temporelle normalisée (a), la réponse Raman fréquentielle normalisée avec la partie réelle, en noir, et imaginaire, en bleu (b) et le spectre du gain Raman (c) pour une fibre optique en silice pure

III.2.1.2. Réponse Raman des fibres fluorées

La réponse du gain Raman $g_R(\Omega)$ et la valeur de la fraction Raman f_R varient d'une fibre à l'autre suivant la composition du matériau constituant ses cœur et gaine. Dans le cas des fibres fluorées, ZBLAN et InF_3, des mesures de gain Raman relatif ont été faites au sein de notre laboratoire par un système de spectroscopie Raman (Horiba LabRAM HR Evolution) à une longueur d'onde de pompe λ = 633 nm. La fréquence de coupure du filtre implémenté dans le microscope est de l'ordre de 200 cm^{-1} (6 THz). La réponse Raman spontanée de chacun des verres est présentée ci-dessous.

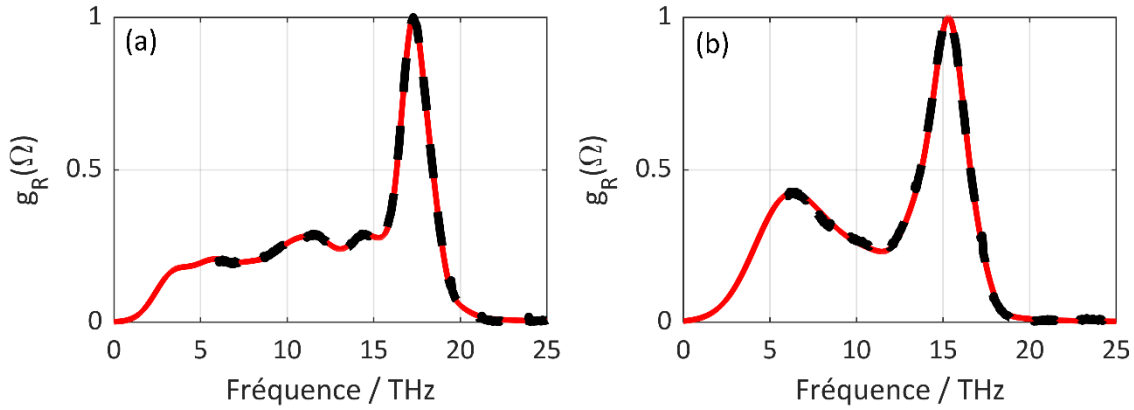


Figure III.5 : (a) Mesure de la courbe de gain Raman spontané de la fibre ZBLAN. **(b)** Mesure de la courbe de gain Raman spontané de la fibre InF_3

Étant donné que la largeur spectrale des impulsions optiques étudiées durant nos travaux est toujours < 5 THz et en l'absence d'un filtre optique avec une fréquence de coupure plus proche de la pompe, une estimation des faibles décalages a été faite avec des fonctions d'extrapolation. Des études semblables ont été faites sur des fibres optiques en verre fluoré avec une spectroscopie Raman à 785 nm [117-120]. L'extrapolation de la courbe du gain se fait par un ensemble de pseudo-fonctions de Voigt (la somme d'une gaussienne et d'une

Licence CC BY-NC-ND 3.0

lorentzienne ayant la même position et la même largeur) et s'écrit sous la forme suivante [121] :

$$g_R(\Omega) = \sum_{i=1}^{N} A_i \left(\eta_i G_i(\Omega) + (1+\eta_i) L_i(\Omega)\right)$$

avec

$$G_i(\Omega) = \exp\left(-4\ln(2)\left(\frac{\Omega-\Omega_{0_i}}{\Delta\Omega_i}\right)^2\right) \qquad \text{(III-5)}$$

$$L_i(\Omega) = \frac{1}{1+4\left(\frac{\Omega-\Omega_{0_i}}{\Delta\Omega_i}\right)^2}$$

A_i est l'amplitude, Ω_{0_i} est la fréquence centrale et $\Delta\Omega_i$ est la largeur totale à mi-hauteur de chaque pseudo-fonction.

Les différents paramètres pour chaque réponse Raman mesurée des fibres optiques utilisées durant ma thèse sont résumés dans le tableau suivant :

Tableau III.1 Paramètres des pseudo-fonctions de Voigt pour l'approximation des courbes de gain Raman de deux fibres en verre fluoré

Fonction	Fibre ZBLAN				Fibre InF_3			
	A	η	Ω_0 (THz)	$\Delta\Omega$ (THz)	A	η	Ω_0 (THz)	$\Delta\Omega$ (THz)
1	0.139	1	3.32	2.4	0,39	1	6	4.5
2	0.186	1	5.72	2.89	0.04	1	8,5	3
3	0.131	0.974	7.97	2.43	0.2	1	10.8	5
4	0.173	1	9.94	2.56	0.17	1	13.39	2
5	0.233	1	12	2.94	0.95	0.8	15.35	2.3
6	0.233	1	14.55	2.2	0.08	1	17.14	1.5
7	0.035	1	15.52	1				
8	1	0.716	17.28	1.8				
9	0.148	1	18.5	1.2				
10	0.029	1	19.5	2				

Les courbes de gain Raman ici sont des courbes relatives. Des mesures de maximum de gain Raman ont déjà été faites sur différentes fibres ZBLAN. Le tableau ci-dessous présente les valeurs de gain Raman maximum que j'ai pu trouver dans la littérature. La dernière mesure a été faite sur une fibre semblable à nos fibres. Ces valeurs sont faites à des longueurs d'onde de pompe différentes.

Tableau III.2 Valeurs de gain Raman maximum dans les fibres ZBLAN

Gain Raman maximum gR_{max} (cm/W)	Fréquence du pic du gain ν (THz)	Longueur d'onde de pompe (nm)	Référence
$1\text{-}3\times10^{-11}$	17,7	1000	[122]
6×10^{-11}	17,4	514,5	[123]
2×10^{-11}	17,9	580	[124]
$0,54\times10^{-11}$	17,4	1000	[125]
$3,52\times10^{-12}$	**17,37**	**1940**	**[118]**

Sachant que la valeur gR_{max} est proportionnelle à λ^{-1}, d'autres valeurs ont été estimées à différentes longueurs d'onde : $gR_{max} = 2,36\times10^{-14}$ m/W à 2,8 µm [119] et $gR_{max} = 2,2\times10^{-14}$ m/W à 3 µm [126]. Les mesures du maximum de gain Raman sur les fibres InF_3 ne sont pas encore faites.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

La réponse Raman dans le domaine temporel peut être calculée selon la relation suivante :

$$h_R(T) = \frac{c}{\pi n_2 f_R \omega_P}\theta(T)\int_0^{\infty} g_R(\Omega)\sin(\Omega T)\,d\Omega \qquad \text{(III-6)}$$

où

$\theta(T)$ est la fonction de Heaviside, n_2 est l'indice non linéaire de la fibre, ω_P est la fréquence de pompe et f_R est la contribution Raman.

Pour un spectre de gain Raman $g_R(\Omega_R)$ normalisé à une valeur de gR_{max} connu, la valeur de f_R peut être déduite par [117] :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} h_R(T)dT = 1 \qquad \text{(III-7)}$$

Dans la littérature, plusieurs valeurs d'indice non linéaire et de contribution Raman sont utilisées. Face à la complexité des compositions chimiques et aux techniques d'étirage, la réponse non linéaire de la fibre peut aussi varier d'une fibre à l'autre [117]. Plusieurs valeurs d'indice non linéaire de fibre ZBLAN ont été publiées dans la littérature. On trouve des indices non linéaires proches de ceux de la silice : $2{,}37\times10^{-20}$ m^2/W [127], $2{,}7\times10^{-20}$ m^2/W [128] ou même des valeurs un peu plus élevées : $3{,}3\times10^{-20}$ m^2/W [129] et $5{,}4\times10^{-20}$ m^2/W [57]. Devant cette variété de valeurs d'indice non linéaire, la valeur la plus utilisée généralement est de $2{,}1\times10^{-20}$ m^2/W [117, 119]. L'indice non linéaire du verre InF_3 est approximativement 1,5 fois plus élevé que celui du verre ZBLAN. L'indice non linéaire utilisé dans les modélisations numériques varie de 3×10^{-20} m^2/W à 4×10^{-20} m^2/W [58, 120]. La valeur de la contribution Raman des fibres ZBLAN reportée dans la littérature varie considérablement entre 0,006 et 0,3 [57, 117, 119] alors que celle des fibres InF_3 est de 0,2. Les fibres que j'ai utilisées durant mes expériences ont été fournies par la société le Verre Fluoré. Elles sont très proches en composition de celles utilisées par l'équipe de l'Université Laval au Canada. Les paramètres non linéaires utilisés dans mes simulations sont donc très proches de ceux que cette équipe a utilisés [120, 130]. Dans nos simulations, nous avons fait varier les paramètres et sélectionné les valeurs conduisant au meilleur accord possible avec les résultats expérimentaux.

III.2.2. L'auto-décalage Raman des solitons

Lorsqu'une impulsion courte de forte énergie avec un spectre suffisamment large pour recouvrir la zone du gain Raman du milieu de propagation, un transfert d'énergie de ces longueurs d'onde basses vers les longueurs d'onde hautes devient possible. On parle alors d'un auto-décalage fréquentiel (*Self-Frequency Shift* SFS). Dans ce paragraphe, j'étudie théoriquement ce phénomène.

La réponse non linéaire totale d'une fibre optique prenant en compte les effets linéaires **instantané et retardé** s'écrit de la façon suivante :

avec

$$\widehat{N} = i\gamma\left(1+i\tau_{shock}\frac{\partial}{\partial t}\right)\left(\int_{-\infty}^{+\infty} R(T')|A(z,t-T')|^2 dT'\right)^2 \qquad \text{(III-8)}$$

$$R(t) = (1-f_R)\delta(t)+f_R h_R(t)$$

À partir des relations II.17, II.25 et II.37 vues dans le chapitre précédent, l'équation non linéaire de Schrödinger généralisée peut s'écrire comme suit :

Licence CC BY-NC-ND 3.0

avec $$\frac{\partial A}{\partial z}+\frac{\alpha}{2}A-\sum_{n=2}^{N}\frac{i^{n+1}}{n!}\beta_n\frac{\partial^n}{\partial T^n}A = i\gamma\left(1+i\tau_{shock}\frac{\partial}{\partial T}\right)\left(\int_{-\infty}^{+\infty}R(T')|A(z,T-T')|^2dT'\right)^2 A \quad \text{(III-9)}$$

$T = t-\beta_1 z$

$A = A(z,T)$

La figure III.6 nous montre le recouvrement spectral d'un soliton fondamental (en rouge) avec la réponse Raman fréquentielle (en bleu) dans une fibre SMF28. Le soliton a un spectre assez large ($\Delta\lambda$ = 25,5 nm soit $\Delta\nu$ = 3,15 THz).

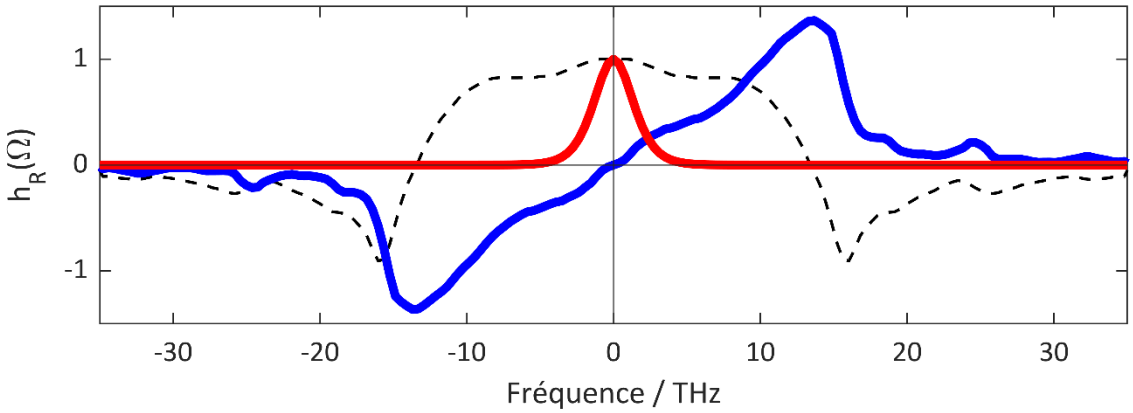


Figure III.6 : Recouvrement d'une impulsion à large spectre, en rouge, avec la partie réelle, en noir, et imaginaire, en bleu, de la réponse Raman fréquentielle normalisée pour une fibre optique en silice pure

Au cours de sa propagation dans la fibre, les composantes hautes fréquences, $\Im\left(\tilde{h}_R(\Omega>0)\right)>0$, sont absorbées par le matériau qui transfère une partie de cette énergie vers les basses fréquences de l'impulsion, $\mathrm{Im}\left(\tilde{h}_R(\Omega<0)\right)<0$. Ceci se traduit par un glissement en fréquence des solitons. Ce phénomène a été découvert pour la première fois en 1985-1986 [131, 132]**.** La figure III.7 présente l'évolution spectrale et temporelle d'un soliton fondamental: λ_0 = 1,56 µm, $\Delta\lambda_p$ = 25,5 nm, Δt = 100 fs, τ_G = 56,7 fs avec une énergie $E_{Soliton}$ = 0,6 nJ, se propageant dans une fibre SMF28 en prenant compte la diffusion Raman : L = 20 m, A_{eff} = 65 µm², β_2 = -2,37×10^4 fs²/m, n_2 = 2,24×10^{-20} m^2/W.

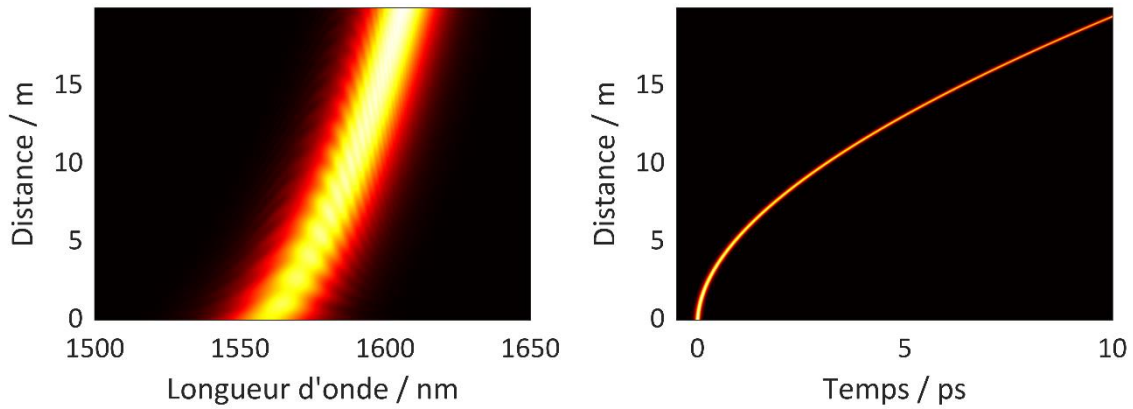


Figure III.7 : L'évolution temporelle et spectrale d'un soliton fondamental se propageant dans 20 m de fibre SMF28 en présence de diffusion Raman. On observe le retard induit par la réponse Raman ainsi que le décalage fréquentiel.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Sachant que les profils temporel et spectral d'une impulsion sont liés par transformée de Fourier, un retard temporel se déduit alors par un décalage spectral. Un décalage en fréquence implique que le champ complexe de l'impulsion dans le domaine fréquentiel devient $\tilde{E}(\omega-\omega_0)$. L'expression complexe du champ correspondant dans le domaine temporel se calcule facilement en utilisant le théorème de décalage de la transformée de Fourier (en anglais, *Fourier Transform Shift Theorem*). La transformée de Fourier de $\tilde{E}(\omega-\omega_0)$ nous donne $\tilde{E}(t)\exp(i\omega_0 t)$. Il y a donc un terme de phase linéaire qui s'applique au champ $\tilde{E}(t)$. Étant donné que la phase linéaire se traduit par une translation dans l'axe du temps de l'impulsion, chaque décalage fréquentiel induit par la diffusion Raman du matériau se transforme à un retard de l'impulsion dans le temps. Pour les applications menées durant cette thèse, nous ne nous soucions que de la forme temporelle de l'impulsion et de son décalage en fréquence, mais pas de son temps d'arrivée.

Au cours de son décalage vers les hautes longueurs d'onde, le soliton ne verra plus les mêmes conditions de dispersion et d'aire effective. Les valeurs de dispersion et de l'aire effective vont augmenter et les longueurs de dispersion et de non-linéarité vont changer. Ceci aura de l'influence sur la condition d'existence du soliton. Le soliton acquerra un chirp et tendra à s'étaler temporellement. Sa puissance crête tendra à baisser au cours de sa propagation. Les pertes de la fibre vont accélérer la baisse de son énergie et de sa puissance crête. Ces effets vont freiner l'auto-décalage du soliton qui va se saturer au bout d'une certaine longueur de fibre.

III.2.2.1. La fission multi-solitonique et l'auto-décalage des solitons d'ordre supérieur

On a vu précédemment que, sans perturbations extérieures, l'évolution spectrale et temporelle d'un soliton d'ordre supérieur est périodique au cours de sa propagation. Cependant les effets d'ordre supérieur, comme la diffusion Raman et la dispersion d'ordre supérieur, interviennent pour perturber cette évolution périodique et mener à sa rupture et sa fission temporelle et spectrale. Dans le cas d'une impulsion d'une durée supérieure à 200 fs la fission est provoquée par la diffusion Raman tandis que pour des impulsions de sub-20 fs la fission est due aux termes de dispersion d'ordre élevé $\beta_{j\geq 3}$. La fission multi-solitonique des impulsions comprises entre 20 et 200 fs résulte de la combinaison des deux effets [133].

La figure III.8 ci-dessous montre le décalage solitonique de trois impulsions de même largeur temporelle et spectrale : $\lambda_0 = 1{,}56$ µm, $\Delta\lambda_p = 25{,}5$ nm, $\Delta t = 100$ fs, $\tau_G = 56{,}7$ fs. Chacune d'entre elles présente une quantité d'énergie et un ordre de soliton différent. Sur la figure III.8(a) il s'agit d'un soliton d'ordre 2 avec E = 2,41 nJ, la figure III.8(b) présente un soliton d'ordre 3 avec E = 5,42 nJ et l'ordre du soliton dans la figure III.8(c) est N = 4 avec E = 9,64 nJ. La fibre utilisée présente toujours les mêmes paramètres : L = 1 m, $A_{eff} = 65$ µm², $\beta_2 = -2.37\times10^4$ fs²/m, $n_2 = 2{,}24\times10^{-20}$ m²/W.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

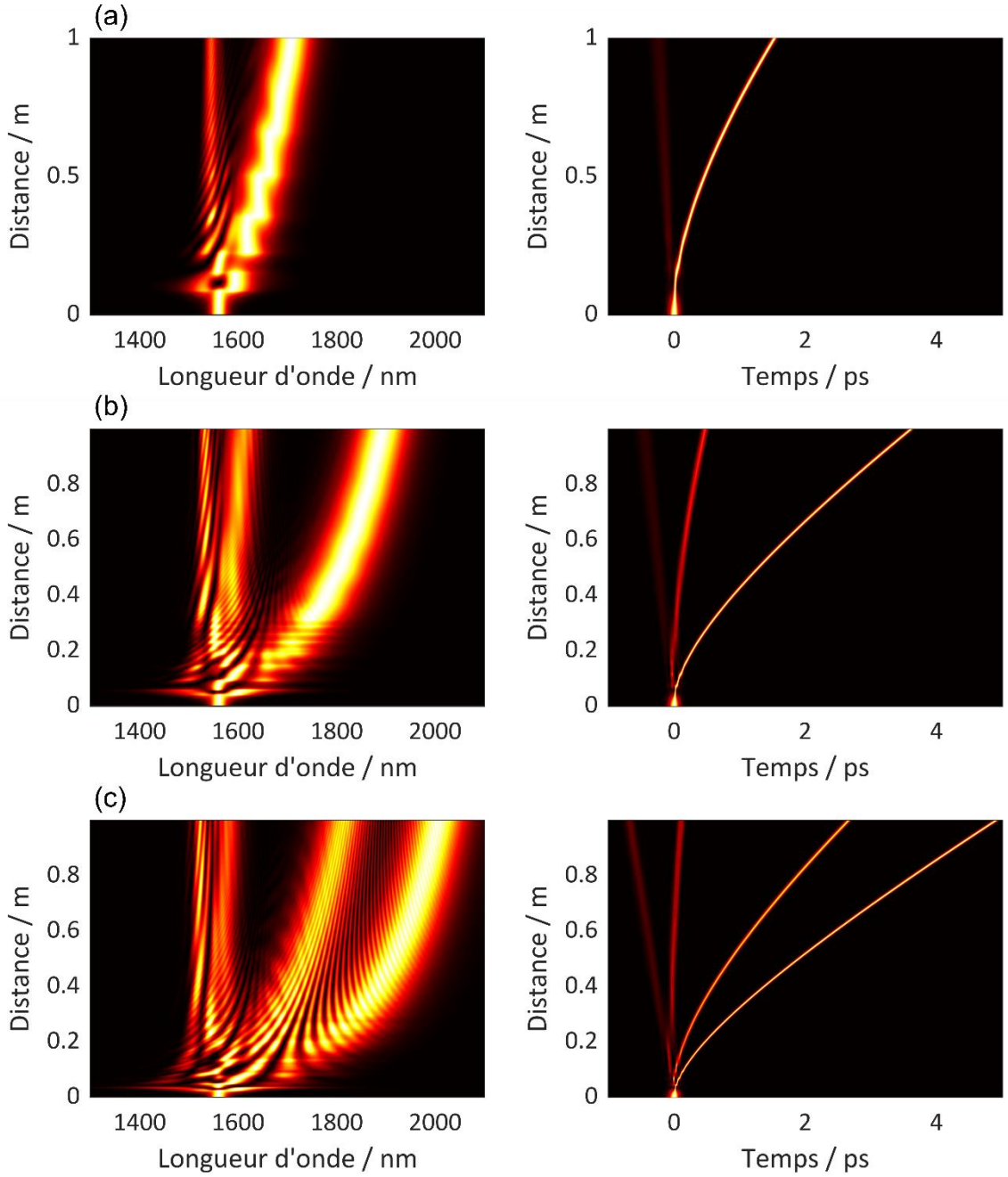


Figure III.8 : L'évolution temporelle et spectrale d'un soliton (a) d'ordre 2, (b) d'ordre 3, (c) d'ordre 4, se propageant dans 1 m de fibre SMF28.

On voit qu'après une certaine longueur de fibre, l'impulsion se divise en plusieurs sous-impulsions appelées solitons fondamentaux. Le nombre final de sous-impulsions est égal à l'ordre du soliton. La longueur de fission de l'impulsion est donnée par :

$$L \approx \frac{L_D}{N} \qquad \text{(III-10)}$$

On constate que plus l'ordre du soliton augmente, plus le décalage du premier soliton fondamental éjecté augmente. Le taux de décalage en fréquence d'une impulsion donnée peut être estimé en fonction de sa largeur temporelle à 1/e, sa longueur d'onde et sa distance de propagation selon la relation suivante [119] :

Licence CC BY-NC-ND 3.0

$$\Delta\lambda(z) = \frac{4\lambda_0^2 T_R |\beta_2| z}{15\pi\tau_j^4 c}$$

avec
- $\Delta\lambda(z)$ [m]
- β_2 la dispersion de vitesse de groupe en [$s^2.m^{-1}$]
- z la longueur parcourue dans la fibre en [m]
- c la vitesse de la lumière en [$m.s^{-1}$]
- λ_0 la longueur d'onde centrale en [m]
- τ_0 la largeur temporelle à 1/e de l'impulsion en [s]

(III-11)

T_R est un paramètre correspond à la pente du gain Raman $g_R(f)$ à une fréquence relative nulle et se calcule de la manière suivante :

$$T_R = \frac{\lambda_0}{8\pi^2 n_2} \frac{dg_R(f)}{d(f)}\bigg|_{f=0} \qquad \text{(III-12)}$$

Pour les fibres en silice T_R = 3 fs et pour les fibres ZBLAN T_R = 6 fs.

Il est clair que le taux de décalage est inversement proportionnel à la durée de l'impulsion injectée dans la fibre. Plus l'impulsion est courte et plus son décalage vers les hautes longueurs d'onde est important. Le corolaire est que, lors de la fission d'une impulsion dans une fibre optique, les solitons issus de celle-ci n'ont pas la même durée ni la même puissance crête. Les paramètres des solitons d'ordre supérieur dépendent de l'ordre total du soliton N ainsi que de l'ordre de chaque soliton j avec j = 1, 2, …, N (le soliton le plus décalé vers le rouge est celui avec l'ordre j = 1, celui d'après est j = 2, ainsi de suite). Les relations qui relient la durée temporelle et la puissance crête de chaque soliton avec l'ordre N et les paramètres de l'impulsion initiale sont [133]:

$$\hat{P}_j = \frac{(2N-2j+1)^2}{N^2}\hat{P}_0$$

$$\tau_j = \frac{1}{(2N-2j+1)}\tau_0 \qquad \text{(III-13)}$$

Imaginons une impulsion de durée fixe τ_0 injectée dans une fibre optique. Plus on injecte de puissance moyenne P_0 et plus on augmente sa puissance crête $\hat{P}_0$. L'ordre du soliton N va aussi augmenter, par conséquent la puissance crête du premier soliton fondamental éjecté $\hat{P}_1$ augmente et sa durée temporelle diminue. Par exemple, pour N = 2, on a $\hat{P}_0$ = 21,2 kW et τ_0 = 56,7 fs ainsi $\hat{P}_1^{N=2}$ = 47,7 kW et $\tau_1^{N=2}$ = 33,3 fs alors que pour N = 3, $\hat{P}_0$ = 47,8 kW et τ_0 = 56,7 fs ce qui donne $\hat{P}_1^{N=3}$ = 132,8 kW et $\tau_1^{N=3}$ = 20 fs. Cette diminution de la durée temporelle va alors engendrer un décalage fréquentiel plus important ($\Delta\nu^{N=3} > \Delta\nu^{N=2}$). Ceci conduira à la possibilité de mettre au point une source laser accordable en longueur d'onde. À partir d'un laser délivrant des impulsions courtes avec une durée temporelle fixe τ_0, la variation de la puissance moyenne injectée mènera à un contrôle de la longueur d'onde du premier soliton fondamental en sortie de la fibre optique. L'auto-décalage solitonique se présente alors comme une solution efficace pour la génération d'impulsions à haute énergie dans la bande spectrale non couverte pas l'émission directe des terres rares [134].

Licence CC BY-NC-ND 3.0

III.3. État de l'art des sources SSFS dans le MIR

Comme dans les fibres en silice, les sources à décalage solitonique dans les fibres infrarouges ont connu d'énormes progrès ces dernières années. L'auto-décalage en fréquence a déjà été exploité, depuis 2015, dans des fibres fortement non linéaires en chalcogénure et en tellurite permettant la génération d'impulsion femtosecondes de quelques picojoules allant jusqu'à 3,4 µm [43, 56]. L'énergie des solitons décalés a été augmentée avec l'apparition de nouvelles fibres en verre d'oxyde de germanium [135, 136] et surtout avec les fibres en verre fluorées. En 2019, Hugo Delahaye, doctorant au sein de notre équipe de recherche, a publié un laser compact à décalage solitonique allant de 1560 nm à 3000 nm dans une cascade de fibres en silice et en verre d'oxyde de germanium. Ce laser émettait des solitons de 80 fs avec une puissance crête de 35 kW à 2,9 µm [36]. L'utilisation de fibres en verre fluoré semble être plus prometteuse pour atteindre efficacement la bande 3–5 µm à travers l'auto-décalage des solitons. Ces fibres qui possèdent un indice de réfraction non linéaire relativement faible et une grande dispersion anormale permettent des décalages solitoniques jusqu'à 4,3 µm [137]. Duval *et al*. ont publié un laser à décalage des solitons dans deux étages composés d'une fibre ZBLAN dopée à l'erbium et d'une fibre en verre fluoré passive. Ce laser émettait des solitons de moins de 200 fs avec une puissance de crête qui dépasse les 200 kW jusqu'à 3,4 µm à partir d'un laser de pompe à 2,8 µm suivi d'un étage d'amplification [138]. Ces dernières années, des résultats remarquables ont été obtenus concernant la génération d'impulsions ultrabrèves et à haute énergie dans l'infrarouge moyen. En 2020, Robichaud *et al*. ont publié un laser qui émet des solitons décalés à 3,6 µm avec une puissance moyenne de 1,15 W en sortie d'un amplificateur à fibre ZBLAN dopée à l'erbium à 2,8 µm [139]. Très récemment, de nouveaux résultats ont été publiés à la fin de ma thèse. Jean-Christophe Gauthier *et al*. de l'université Laval ont publié une source laser femtoseconde allant jusqu'à 4,8 µm délivrant des impulsions de 485 fs avec une énergie de 4 nJ. Le montage expérimental est présenté sur la figure III.9(a). Il s'agit de la continuité des travaux décrits dans la Réf. [138]. Le montage se compose d'une cavité à verrouillage de modes par NPR dans une fibre ZBLAN dopée à l'erbium délivrant un train d'impulsions de 440 fs avec une énergie de 4 nJ à 2,8 µm à une cadence de 57,9 MHz. L'oscillateur est suivi d'un étage d'amplification composé de 4 m de fibre ZBLAN double gaine dopée à l'erbium. L'étage d'amplification permet à la fois d'augmenter la puissance du signal et d'initier le processus de décalage solitonique. En sortie de fibre, le soliton se décale jusqu'à 3,2 µm en fonction de la puissance de pompe. Le dernier étage correspond à 20 m de fibre en verre fluoroindate de petit cœur 7,5/125 qui permet de décaler davantage le soliton vers l'infrarouge moyen. La figure III.9(b) montre le spectre total en sortie du montage où, pour un pompage de 70 W, un soliton avec une durée estimée de 485 fs est décalé autour de 4,8 µm avec une énergie de 4 nJ. Ces résultats, publiés en septembre 2022, constituent l'état de l'art en termes de décalage en longueur d'onde dans des fibres optiques [120].

Licence CC BY-NC-ND 3.0

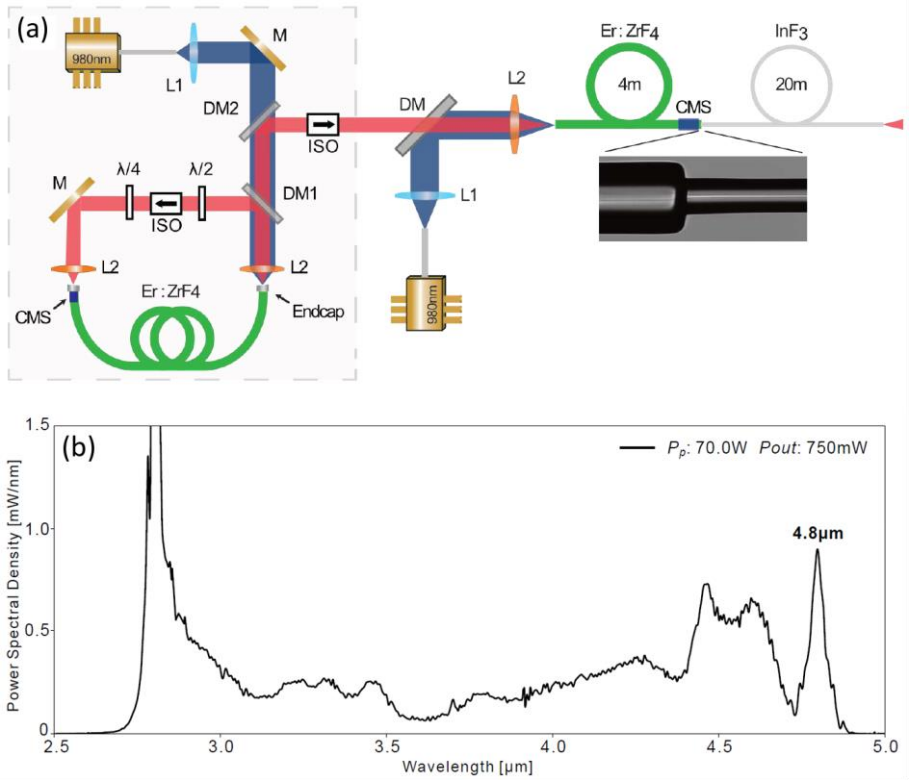
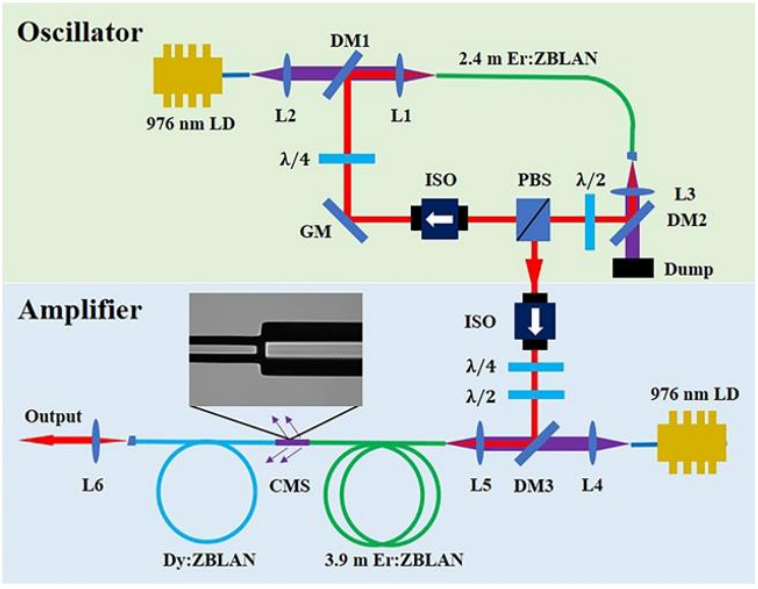


Figure III.9 : (a) Configuration expérimentale de la source SSFS à 4,8 µm présentée dans les travaux de J.-C. Gauthier *et al.* [120]. **(b)** Spectre mesuré en bout de chaine

Dans la même période, en aout 2022, Yu *et al*. ont publié un montage semblable, mais en utilisant une fibre active comme dernier étage. Il s'agit d'une fibre optique ZBLAN dopée au dysprosium. En profitant de la bande d'absorption du dysprosium à 2,8 µm, ils ont démontré la génération de solitons propres allant jusqu'à 3,8 µm sans résidu de pompe. La mesure SHG-FROG de l'impulsion est présentée sur la figure III.10(b). Ce montage permet de générer un soliton unique à 3,8 µm avec une durée de 252 fs, une énergie de 23 nJ et une puissance crête qui dépasse 90 kW [140].

(a)



Licence CC BY-NC-ND 3.0

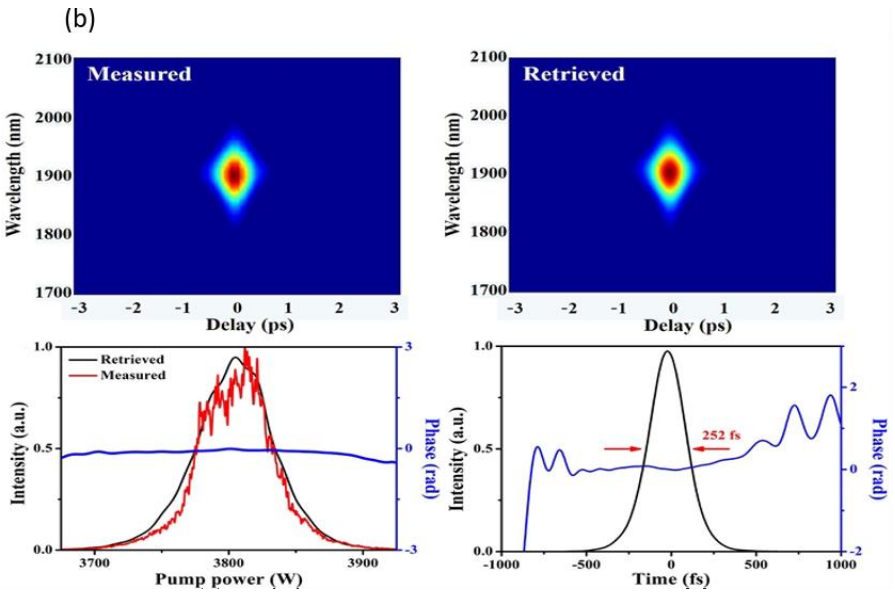


Figure III.10 : (a) Configuration expérimentale de la source SSFS à 3,8 µm présentée dans les travaux de Linpeng Yu *et al*. [140]. **(b)** Mesure SHG-FROG de l'impulsion en sortie

Le développement de sources à décalage solitonique dans le MIR a connu beaucoup d'améliorations depuis les premières publications en 2015. Aujourd'hui on arrive à avoir des sources à impulsions courtes et à haute énergie à des longueurs d'onde exotiques grâce aux développements de nouvelles fibres en verre fluoré. Le schéma ci-dessous présente un tour d'horizon des différentes sources SSFS dans l'IR moyen publiées jusqu'à aujourd'hui :

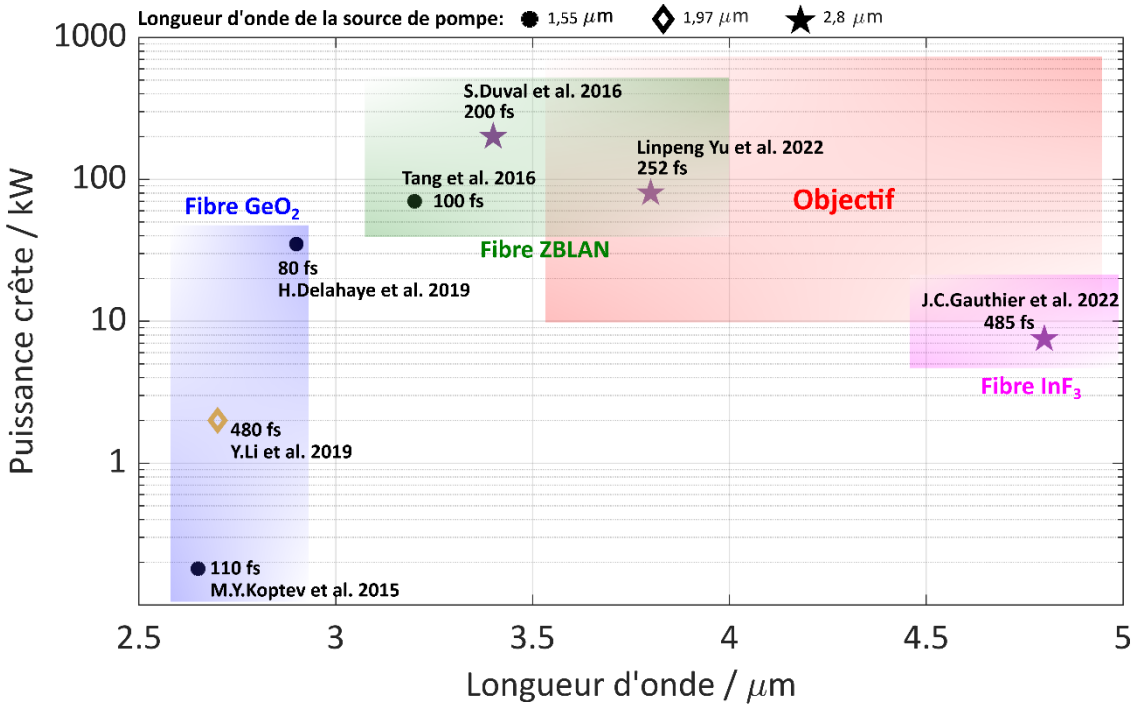


Figure III.11 : État de l'art des sources à décalage solitonique dans le moyen-infrarouge

Avant le début de ma thèse, peu de résultats avaient été publiés sur les sources femtosecondes à décalage solitonique dans des fibres optiques dans le moyen-infrarouge. Le décalage solitonique dans des fibres GeO_2 à partir d'une source Erbium s'est présenté prometteur pour le développement de sources monolithiques. Cependant, l'augmentation

Licence CC BY-NC-ND 3.0

des pertes de ces fibres limite le décalage des solitons au-delà de 3 µm. Le décalage solitonique à partir de l'infrarouge proche dans des fibres ZBLAN a montré ses limites à la production de solitons propres et à haute énergie. Il n'y avait qu'une seule source excédant 100 kW au-dessus de 3 µm et elle provenait d'une cavité à verrouillage de modes à 2,8 µm. Cet état de l'art a focalisé notre attention sur le développement d'une source à décalage solitonique au-delà de 3,5 µm dans des fibres fluorées. Notre objectif était de mettre au point une source sub-100 fs avec une puissance crête de l'ordre de 100 kW à la limite de transparence des fibres fluorées, soit 4,5 µm. Ce type de source pourrait servir par exemple à la génération d'harmoniques ou à la génération de supercontinuum.

III.4. Sources laser SSFS à impulsions courtes dans l'IR moyen

L'état de l'art et la partie théorique ont montré que le choix de la source et des fibres optiques est critique pour réussir un auto-décalage en fréquence optimal. Mon travail consistait à développer une source à décalage solitonique à partir d'une source sub-picoseconde microjoule à 1,97 µm conçue par l'entreprise Novae. Pour y parvenir, le choix judicieux des fibres optiques était nécessaire. Dans la suite, je présenterai la source laser commerciale, les fibres optiques utilisées ainsi que les résultats expérimentaux obtenus tout au long de ma thèse.

III.4.1. Laser CPA BREVITY HP Novae

Le laser Brevity HP fourni par la société Novae est un laser CPA à base de fibre de silice dopée au thulium. Il délivre des impulsions avec une énergie de 1 µJ à 1965 nm à une fréquence de répétition de 1 MHz. Son architecture est similaire à celle décrite dans la Réf. [141]. Les impulsions de départ ont été générées à la longueur d'onde de fonctionnement de 1965 nm dans un oscillateur fonctionnant dans le régime de soliton dissipatif (dispersion normale). Ceci offre plusieurs avantages tels qu'une puissance moyenne de départ élevée, un large spectre réglable et adaptable à la bande de transmission des composants dispersifs, et enfin, une impulsion initialement pré-étirée. Le système comprend un modulateur acousto-optique à fibre optique pour contrôler le taux de répétition du laser. Après réduction de la cadence, les impulsions sont étirées à 550 ps dans un réseau de Bragg chirpé fibré (C*hirped Fiber Bragg Gratings* CFBG) avant d'être injectées dans l'amplificateur. Ceci donne plus de marge d'amplification pour atteindre le niveau d'énergie microjoule. Afin de préserver un système tout fibré, l'étage d'amplification est constitué de deux fibres à grande surface modale (*Large Mode Area* LMA) fortement dopées au thulium. Enfin, l'impulsion de sortie est compressée à l'aide d'un réseau de Bragg volumique (C*hirped Volume Bragg Gratings* CVBG). La figure III.12 montre le spectre et la trace d'autocorrélation mesurés en sortie du système laser utilisé. Le laser délivre des impulsions avec une durée temporelle de 765 fs à 1965 nm. La puissance moyenne en sortie du laser est égale à 1 W et son taux de répétition est de 1 MHz.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

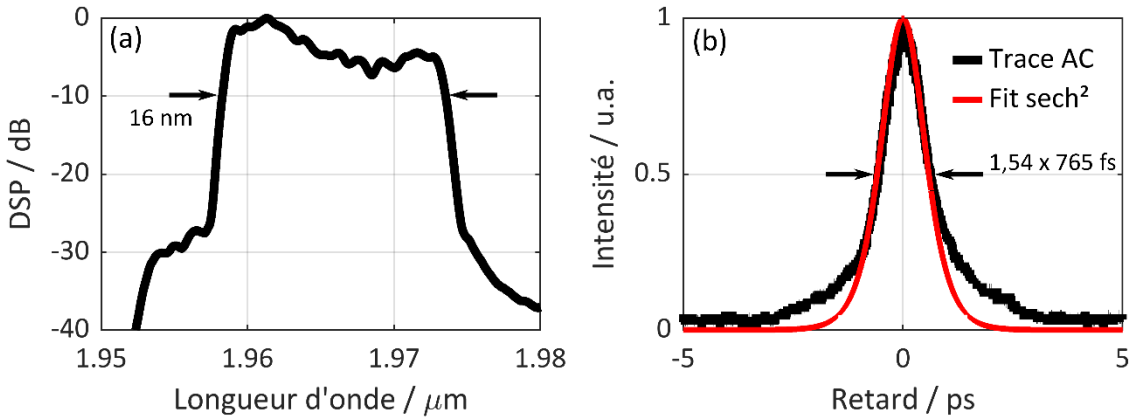


Figure III.12 : (a) Mesure spectrale du laser Novae Brevity HP2 **(b)** en noir, trace d'autocorrélation de l'impulsion émise, en rouge, approximation par une impulsion de forme sécante hyperbolique.

III.4.2. Source SSFS à 3 µm

La manière la plus évidente pour augmenter l'énergie guidée dans une fibre optique consiste à augmenter sa surface modale afin de réduire sa non-linéarité. Cela permettra aussi de générer des solitons fondamentaux avec des niveaux d'énergie beaucoup plus élevés. Le compromis était alors de pouvoir augmenter la surface modale des fibres optiques tout en préservant une émission faiblement multimode des faisceaux guidés ($V = {}^{2\pi}/_{\lambda}$ .a.ON < 2,405). Les fibres LMA à saut d'indice nécessitent donc une différence d'indice Δn entre l'indice de cœur et l'indice de gaine très faible, c'est-à-dire une ouverture numérique faible. Bien que ceci semble être maitrisé dans les fibres en silice, des progrès restent à effectuer pour les fibres LMA en verre fluoré. Aujourd'hui il n'existe toujours pas de fibres optiques en verre fluoré à large surface modale disponibles sur le marché.

III.4.2.1. Fibre fluorée à large surface modale (*Large Mode Area* LMA *fibers*)

L'objectif de mes premiers travaux de thèse consistait à mettre au point une source à décalage solitonique à haute énergie à partir de notre source laser de pompe. Une fibre optique ZBLAN à large surface modale conçue et fournie par la société *Le Verre Fluoré* a été utilisée durant mes travaux. Cette fibre non commercialisée encore, présente un diamètre de cœur de 26 µm, un diamètre de gaine de 250 µm et une ouverture numérique ON = 0,075 à 2,4 µm. Dans la suite de ce manuscrit, cette fibre sera dénommée ZBLAN26.

La composition des verres ZBLAN étant plus complexe que celle des verres de silice, le calcul de la variation de l'indice de réfraction des fibres optiques en verre fluoré est aussi plus complexe. Fuxi Gan a publié une méthode de calcul de cette variation en utilisant l'équation de Sellmeier à deux termes de la façon suivante [142]:

$$n^2(\lambda)-1 = \frac{f_{UV}\lambda^2}{\lambda^2-\lambda_{UV}{}^2} + \frac{f_{IR}\lambda^2}{\lambda^2-\lambda_{IR}{}^2} \quad \text{(III-14)}$$

avec

λ_{UV} : Longueur d'onde d'absorption du verre dans l'UV

f_{UV} : Constante liée à la force de l'oscillateur dans l'UV

λ_{IR} : Longueur d'onde d'absorption du verre dans l'IR

Licence CC BY-NC-ND 3.0

f_{IR} : Constante liée à la force de l'oscillateur dans l'IR

Les paramètres présentés dans cet article correspondaient à différentes compositions de verres fluorés utilisés à l'époque. Les paramètres proposés pour le verre ZBLAN avec la composition la plus courante (53ZrF4 - 20BaF2 - 4LaF3 - 3AlF3 - 20NaF). Ces paramètres sont couramment utilisés jusqu'à présent pour calculer la variation de l'indice de réfraction de la plupart des fibres optiques à base de verre ZBLAN. Tandis que les indices de réfraction du cœur/gaine d'une fibre optique dépendent de sa composition et des conditions d'étirage, les paramètres proposés par Fuxi Gan ne correspondaient pas aux fibres utilisées lors de ma thèse [143]. Récemment, Tommy Boilard *et al.* ont publié de nouveaux coefficients pour des fibres commerciales ZBLAN et InF3 (des fibres fournies par l'entreprise Le Verre Fluoré). Certaines de ces fibres sont utilisées dans notre laboratoire [144]. La variation de l'indice de réfraction du cœur des fibres commerciales est déduite à travers l'ouverture numérique souvent considérée comme invariante en longueur d'onde [117]. Bien que ces derniers paramètres semblent être bons pour certaines des fibres que j'ai exploitées durant ma thèse, on a tout de même préféré utiliser les données fournies par le fabricant pour la modélisation des fibres. La figure III.13 présente la courbe de dispersion et la surface effective de la fibre ZBLAN26 calculées avec COMSOL Multiphysics.

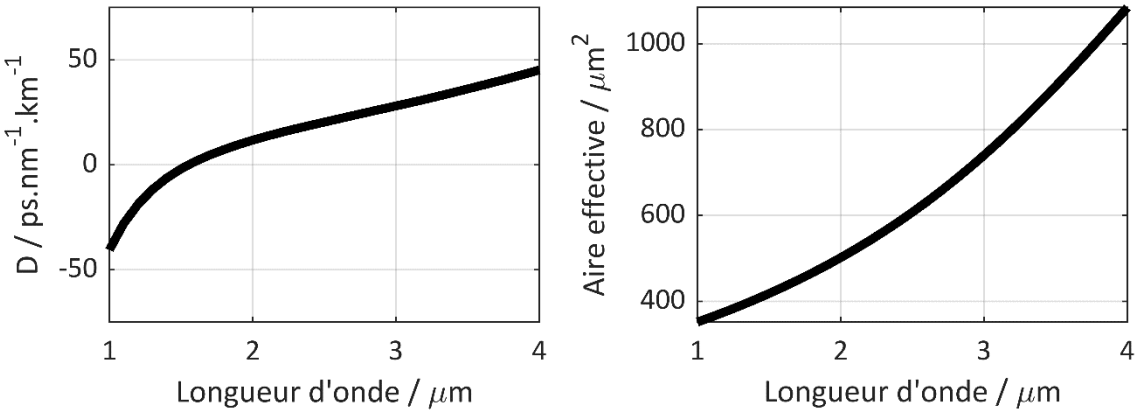


Figure III.13 : Courbe de dispersion et d'aire effective de la fibre ZBLAN26

La longueur d'onde de dispersion nulle ZDW de la fibre ZBLAN26 se situe autour de 1,6 µm. Au-delà de cette longueur d'onde, en régime de dispersion anormale, la fibre présente une aire effective assez grande > 400 µm². À la longueur d'onde de pompe, autour de 2 µm, l'aire effective dépasse 500 µm². La longueur d'onde de coupure de fibre est $\lambda_c \approx 2{,}55$ µm et elle est faiblement multimode autour de 2 µm avec une fréquence normalisée égale à $V_{ZBLAN26} = 3$.

III.4.2.2. Résultats expérimentaux dans la fibre ZBLAN26

Le premier montage expérimental, présenté sur la figure III.14, consiste à injecter directement le signal de pompe dans la fibre LMA ZBLAN26. Le faisceau collimaté laser est injecté dans la fibre ZBLAN par une lentille plan-convexe revêtue en anti-réflexion C avec une focale de 50 mm (*Thorlabs N-BK7 Plano-Convex Lens* LA1213-C). L'injection est faite grâce à une platine de translation à 3 axes tandis que la collection du signal en sortie est faite par une fibre optique InF_3 9/125 (*Thorlabs InF_3 Patch Cables* P1-32F-FC-2) raboutée à la fibre ZBLAN26.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

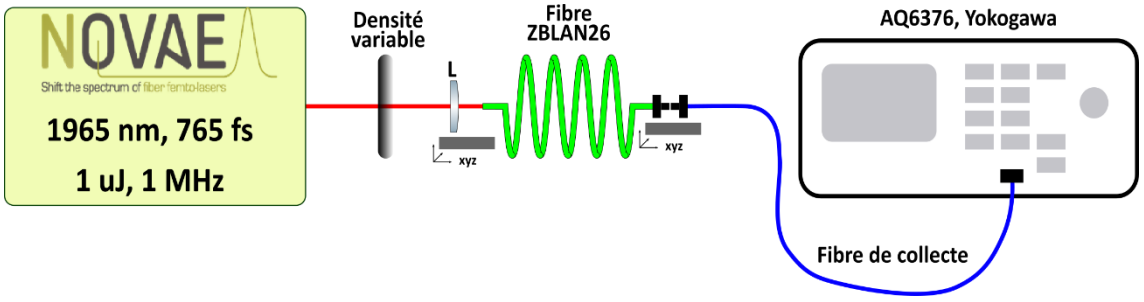


Figure III.14 : 1er Montage expérimental pour la mesure de SSFS dans la fibre ZBLAN26

La dispersion de vitesse de groupe de la fibre ZBLAN26 à 1965 nm est de $\beta_2 \approx -2\times10^{-26}$ s²/m . Le coefficient non linéaire est $\gamma = 1.35\times10^{-4}$ $W^{-1}m^{-1}$. Face à la haute puissance crête (> 1 MW) et la longue durée de l'impulsion émise par le laser, 765 fs, l'énergie théorique d'un soliton fondamental dans cette fibre est de l'ordre de E ≈ 0,7 nJ avec une puissance crête de 800 W à cette longueur d'onde. Ni la durée de l'impulsion ni son énergie ne correspondent à nos objectifs. Nous cherchons ici à produire des impulsions sub-100 fs avec des puissances crêtes élevées. Cela signifie que nous cherchons la fission de l'impulsion de pompe à un soliton fondamental plus court temporellement. Afin d'y parvenir, une injection de plus de puissance dans la fibre ZBLAN est demandée. Ceci augmentera l'ordre de soliton et conduira à la fission multi-solitonique de l'impulsion de pompe et à sa division en de nombreux solitons. Avec un rendement d'injection de 50 % et une puissance crête de 576 kW injectée dans la fibre, la longueur de dispersion calculée est L_D = 9,45 m et la longueur non linéaire est L_{NL} = 0,0129 m. Cela donne un ordre de soliton de N ≈ 27. Même avec un faible rendement d'injection, ~5 %, la puissance crête estimée est de de 57 kW et l'ordre de soliton calculé reste tout de même élevé N ≈ 8,5. La longue durée d'impulsion, la haute énergie et la faible dispersion de vitesse de groupe de la fibre ZBLAN à cette longueur d'onde nous conduisent à déduire qu'une génération de supercontinuum est attendue lorsque la fibre est pompée directement par notre source.

Cela est confirmé expérimentalement comme nous le montre la figure III.15. Sur cette figure on voit l'évolution du spectre expérimental mesuré par un spectromètre à réseau [1,5-3,4] µm (AQ6376, Yokogawa). En variant la puissance injectée de 100 mW à 400 mW par une roue à densité variable (*Thorlabs Round Step ND Filters* NDC-100S-4M) dans 1,5 m de fibre, le spectre de l'impulsion s'élargit par les deux effets d'automodulation de phase et de la fission multi-solitonique pour générer un supercontinuum qui s'étend jusqu'à 3 µm.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

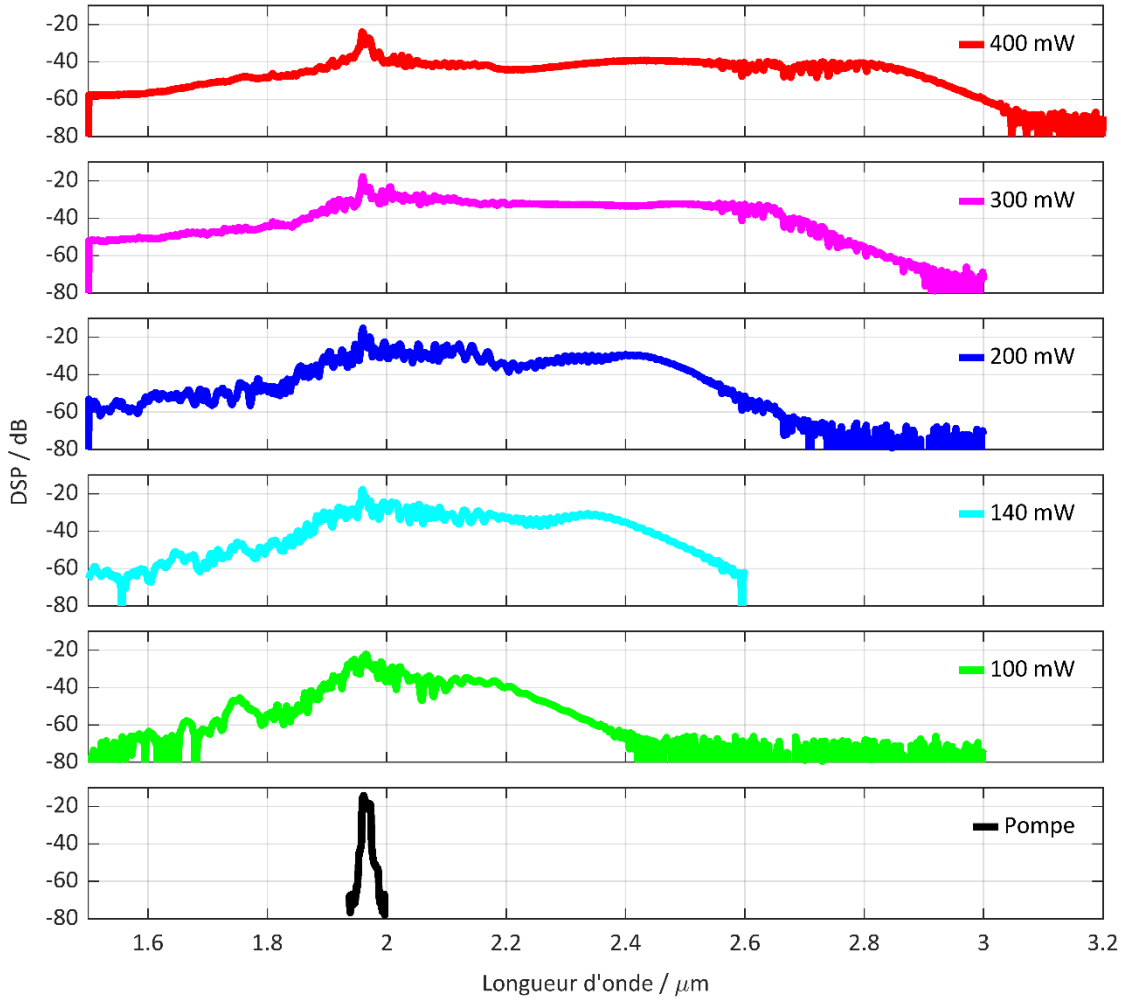


Figure III.15 : Évolution spectrale en sortie de la fibre ZBLAN26 en fonction de la puissance injectée

III.4.2.3. Auto-décalage solitonique dans les fibres LMA en silice

Pour avoir des solitons bien discernables et décalés par SSFS dans l'infrarouge moyen tout en ayant un maximum d'énergie et sans génération de supercontinuum, il est nécessaire d'utiliser des fibres optiques avec une dispersion de vitesse de groupe plus élevée et/ou avec une aire effective plus importante dans l'objectif de réduire le nombre de solitons générés. Face à l'absence de fibres ZBLAN monomodes plus larges que celle en notre possession, nous avons décidé de passer par une fibre intermédiaire en silice comme premier étage de décalage solitonique. Les procédés de fabrication des fibres en silice permettent d'agrandir considérablement l'aire effective en comparaison de celle de la fibre ZBLAN26. Par exemple, Hugo Delahaye, lors de sa thèse de doctorat dans notre groupe, a conçu et caractérisé une fibre de Bragg dont l'aire effective vaut ~2800 µm^2 à 1,965 µm [145]. Dans le cadre de ma thèse, nous avons testé cette fibre et conçu deux autres fibres à saut d'indice plus simple d'utilisation que la fibre de Bragg. Les résultats issus de la fibre de Bragg étaient peu différents de ceux obtenus avec ces fibres à saut d'indice. Dans ce manuscrit, je présenterai les résultats obtenus avec les deux fibres à saut d'indice uniquement.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

III.4.2.3.1. Fibres optiques à grande surface modale en verre de silice

Le faible indice non linéaire ($2{,}24 \times 10^{-20}$ m^2/W à 1,55 µm) et la maitrise des procédés de fabrication des fibres optique en verre de silice permet aujourd'hui de concevoir des fibres à saut d'indice à large surface modale monomodes ou faiblement multimodes. Les fibres LMA à saut d'indice nécessitent un contraste d'indice cœur/gaine très faible afin de préserver un guidage monomode. Contrairement aux fibres de Bragg ou aux barreaux microstructurés à grande surface modale, les fibres LMA à saut d'indice sont beaucoup plus faciles à manier. Elles présentent des aires effectives significativement élevées, sont moins sensibles à la courbure par rapport aux fibres de Bragg et offrent l'avantage de la souplesse comparé aux barreaux structurés.

Les fibres LMA en silice utilisées durant ces travaux sont : (1) une fibre à grande surface modale à saut d'indice avec un diamètre de cœur de 40 µm, un diamètre de gaine de 190 µm et une ouverture numérique ON = 0,08 à 1,55 µm. Dans la suite de ce manuscrit, cette fibre sera dénommée LMA40 ; (2) une fibre avec un diamètre de cœur de 50 µm, un diamètre de gaine de 367 µm et une ouverture numérique ON = 0,055 à 1,55 µm. Elle sera dénommée LMA50 par la suite.

Le cœur des fibres en silice est généralement dopé en dioxyde de germanium pour gérer le contraste d'indice. Le calcul de la variation de l'indice de réfraction du cœur et de la gaine en fonction de la longueur d'onde des deux fibres en silice se fait à travers l'équation de Sellmeier :

$$n^2(\lambda)-1 = \frac{\left(A_{j_{Si}} + x(A_{j_{Ge}} - A_{j_{Si}})\right)\lambda^2}{\lambda^2 - \left(\lambda_{j_{Si}}^2 + x(\lambda_{j_{Ge}}^2 - \lambda_{j_{Si}}^2)\right)} \qquad \text{(III-15)}$$

avec

x représente le taux de dopage en germanium.

S_j, λ_{S_j}, G_j et λ_{G_j} sont les coefficients de Sellmeier pour la silice pure et le dioxyde de germanium pur.

Les coefficients de Sellmeier sont représentés dans le tableau ci-dessous :

Tableau III.3 Coefficients de Sellmeier pour la silice pure et pour le dioxyde de germanium pur

Matériau	A_1	A_2	A_3	λ_1	λ_2	λ_3
SiO_2	0,6961663	0,4079426	0,8974794	0,0684043	0,1162414	9,896161
GeO_2	0,80686642	0,71815848	0,85416831	0,068972606	0,15396605	11,841931

Les deux fibres optiques ont une gaine en silice pure et un cœur peu dopé en germanium. L'ouverture numérique de la fibre LMA40 (resp. LMA50) est égale à 0,08 (resp. 0,055) qui correspond à un dopage x en germanium de 1,47 % (resp. 0,7 %). La figure III.16 ci-dessous présente les courbes d'aire effective et de dispersion chromatique des deux fibres LMA.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

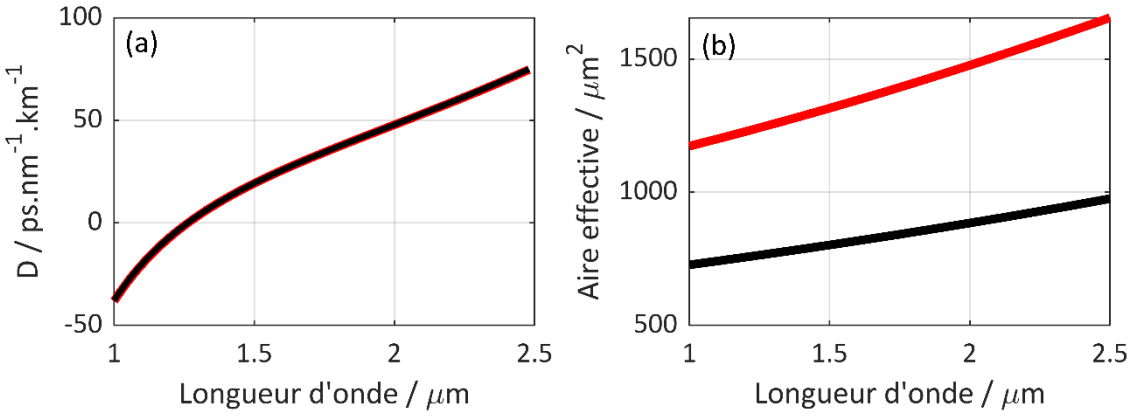


Figure III.16 : (a) Courbe de dispersion de la fibre LMA40, en noir, et de la fibre LMA50, en rouge. **(b)** courbe d'aire effective de la fibre LMA40, en noir, et de la fibre LMA50, en rouge.

Le ZDW des deux fibres correspond au ZDW du verre de silice, soit ZDW = 1,27 µm, en raison d'une dispersion de guide négligeable pour de si faibles ouvertures numériques. Ceci assura un fonctionnement en régime de dispersion anormale à la longueur d'onde de pompe. Dans le régime solitonique, les deux fibres présentent des aires effectives > 700 µm² qui permettront de réduire significativement leur coefficient non linéaire γ et ainsi augmenter l'énergie des solitons guidés. La fréquence normalisée de la fibre LMA40 à λ = 2 µm est V_{LMA40} = 5 et la fréquence normalisée de la fibre LMA50 est V_{LMA50} = 4,3. Les deux fibres sont légèrement multimodes à la longueur d'onde de pompe. Les deux fibres présentent une dispersion de vitesse de groupe assez élevée de $\beta_2 = -9.2\times10^{-26}$ s²/m à la longueur d'onde de pompe. L'aire effective de la fibre LMA40 est de A_{eff} = 877 µm² tandis que l'aire effective de LMA50 est A_{eff} = 1463 µm². Une injection de 500 mW donne un ordre de soliton N ≈ 9,5 (N_{ZBLAN}/2,5 pour la même puissance) dans la fibre LMA40 et N ≈ 7,3 (N_{ZBLAN}/3) dans la fibre LMA50. La génération d'un faible nombre de solitons, bien discernables et décalés vers les hautes longueurs d'onde, est attendue dans ce type de fibre. Bien sûr, la transparence des fibres en silice étant limitée à 2,4 µm, le décalage solitonique ne pourra avoir lieu dans l'infrarouge moyen. La transparence de la fibre en silice est liée aux pertes d'absorption qui sont présentées sur la figure III.17 et qui sont généralement exprimées sous la forme d'un coefficient d'atténuation α reliant la puissance transmise en sortie de fibre P_s à la puissance en entrée de la fibre P_0 [146]. Le coefficient d'absorption d'une fibre optique est généralement donné en dB/km et peut être calculé en fonction de la longueur parcourue selon la relation suivante :

$$\alpha_{dB} = -\frac{10}{L}\log\left(\frac{P_s}{P_0}\right) \qquad \text{(III-16)}$$

Licence CC BY-NC-ND 3.0

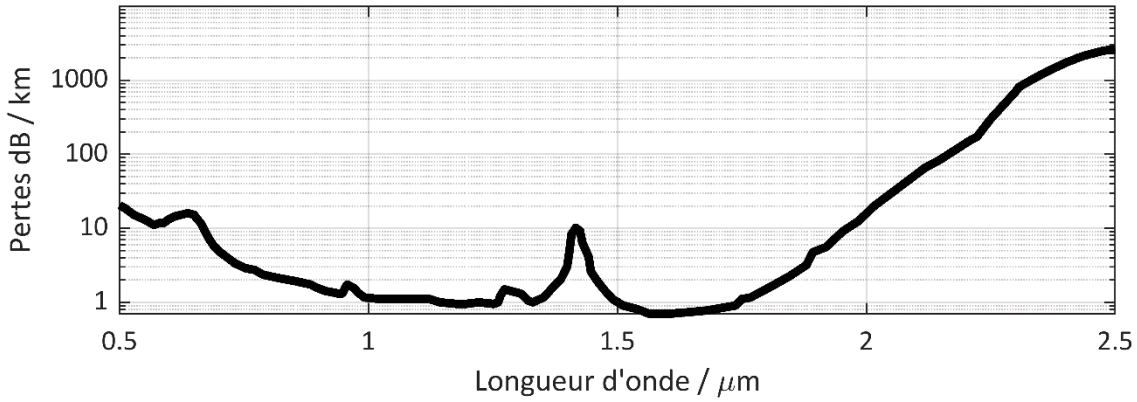


Figure III.17 : Pertes par absorption du verre de silice

Afin de réduire les pertes d'absorption multiphonon, il était judicieux de réduire la longueur de propagation du signal. En outre, selon la courbe, les pertes d'absorption sont de plus en plus importantes au-delà de 2,2 µm. Il est donc préférable que le soliton décalé ne dépasse pas cette longueur d'onde. C'est la raison pour laquelle je n'ai utilisé que de très courtes longueurs de fibres (< 1m) et j'ai commencé par effectuer des modélisations numériques pour étudier la propagation de l'impulsion dans chacune de ces fibres en fonction de la puissance injectée.

III.4.2.3.2. Modélisation de la propagation non-linéaire dans les fibres LMA40 et LMA50

L'impulsion injectée est de forme sécante hyperbolique d'une durée de 765 fs. La puissance varie entre 100 mW et 1 W. La longueur de propagation est fixée à 1 m pour les deux fibres. La figure III.18 montre l'évolution spectrale de l'impulsion dans chaque fibre. Selon ces modélisations, avec une puissance moyenne de 400 mW on observe un soliton décalé autour de 2,4 µm et 2,2 µm en sortie de chaque fibre. Pour une puissance injectée autour de 600 mW, on voit plusieurs solitons qui se détachent de l'impulsion initiale après 1 m de propagation dans la fibre LMA40 où le soliton le plus décalé se retrouve autour de 2,5 µm. De même concernant la fibre LMA50, pour la même puissance, deux solitons se détachent de l'impulsion et le soliton le plus décalé se trouve autour de 2,4 µm.

Afin de réduire le nombre de solitons générés, avec un bon taux de décalage et une puissance moyenne élevée, des longueurs de fibre encore plus courtes sont requises. D'après ces modélisations, on a conclu que des longueurs de 40-80 cm sont amplement suffisantes pour un décalage de soliton autour de 2,2-2,3 µm avec des puissances moyennes injectées de 500-600 mW.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

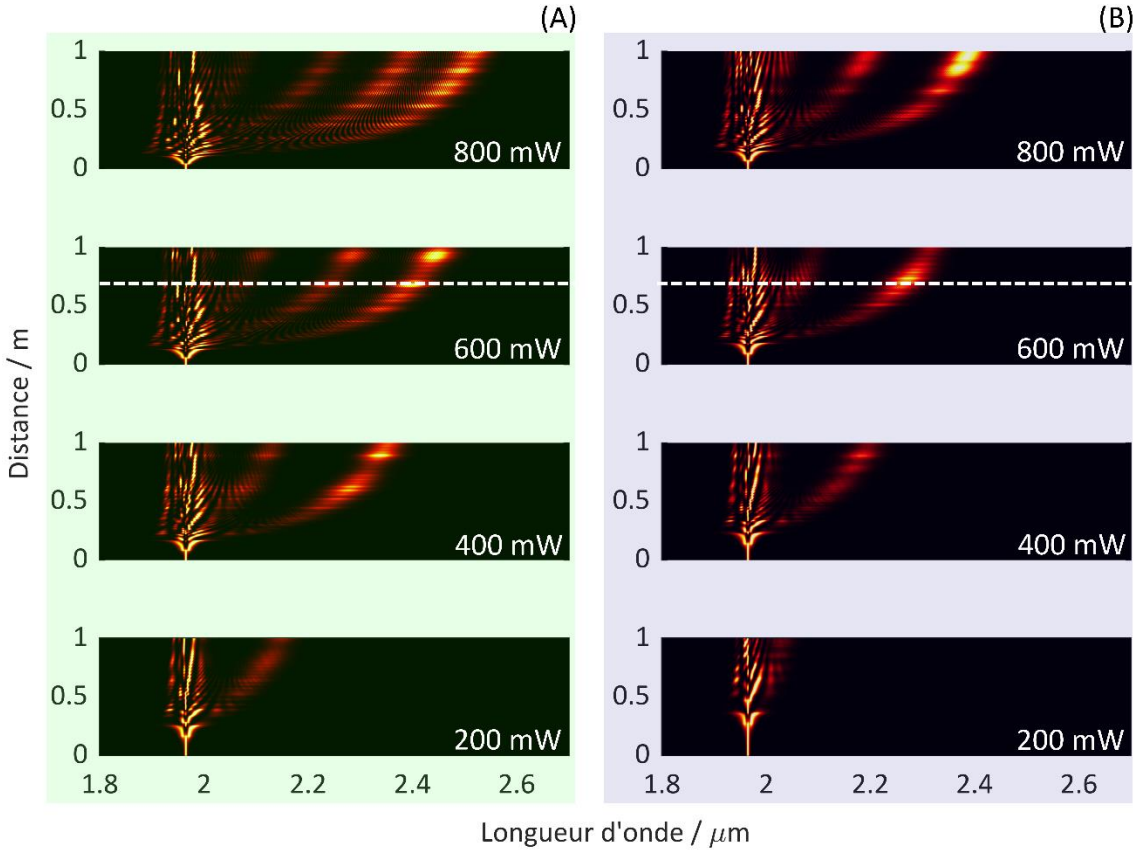


Figure III.18 : Modélisations de la propagation de l'impulsion émise par le laser Novae avec une durée temporelle fixe Δt = 765 fs avec une puissance moyenne variable dans : **(A)** 1 m de fibre LMA40, **(B)** 1 m de fibre LMA50

III.4.2.3.3. Résultats expérimentaux

Le montage expérimental présenté ci-dessous, figure III.19, est semblable à celui présenté auparavant. L'injection dans les fibres optiques en silice est faite avec une lentille de focale 50 mm. La puissance injectée dans les fibres est de 580-600 mW. La mesure spectrale est faite avec le spectromètre à réseau [1,5-3,4] µm (AQ6376, Yokogawa). Les spectres mesurés pour ~60-70 cm de chacune de ces fibres sont présentés sur la figure III.20.

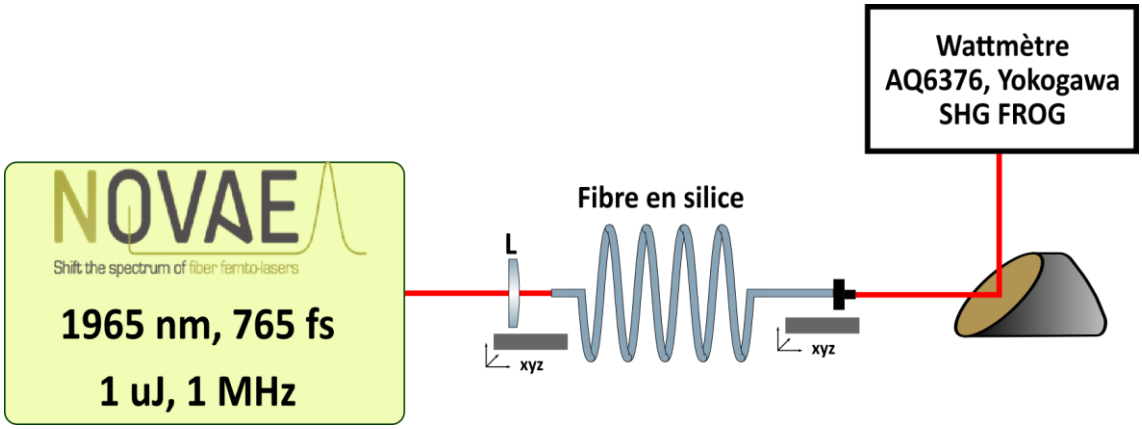


Figure III.19 : Montage expérimental pour le SSFS dans les fibres LMA en silice

Licence CC BY-NC-ND 3.0

La figure de gauche est mesurée en sortie de L ≈ 0,6 m de fibre LMA40 lorsque la puissance injectée est de l'ordre de 600 mW. La fission multi-solitonique de l'impulsion de pompe et le SSFS jusqu'à 2,39 µm en sortie de la fibre LMA40 sont visibles sur le spectre noir de la figure III.20(a). Le soliton le plus décalé a une largeur spectrale à mi-hauteur de Δλ = 63 nm. Sa durée temporelle en limite de Fourier est estimée à Δt = 95 fs. Le spectre présenté sur la figure III.20(b) a été mesuré en sortie de 0,7 m de LMA50 avec une puissance moyenne sur l'ensemble de spectre de 580 mW. Le soliton décalé à 2,27 µm présente une largeur spectrale à mi-hauteur de Δλ = 61 nm et une largeur temporelle en limite de Fourier de 88 fs.

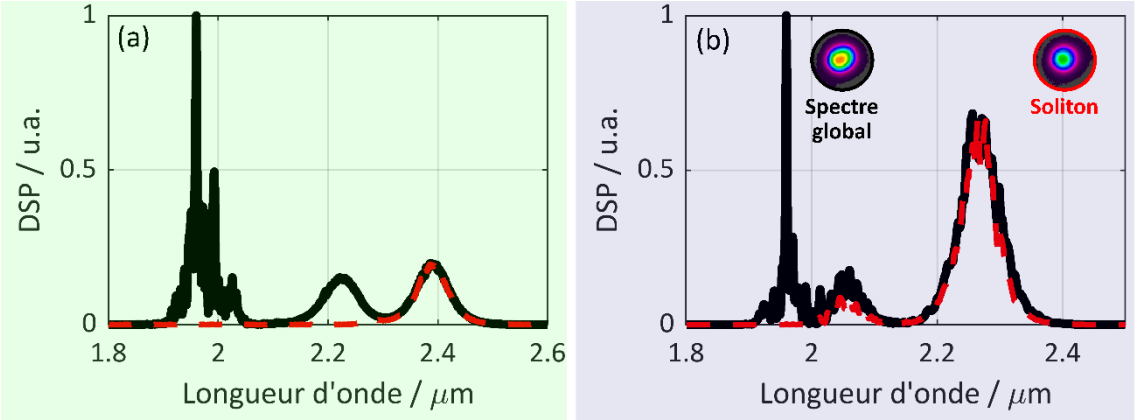


Figure III.20 : (a) Soliton décalé en sortie de 0,6 m de fibre LMA40 : en noir, la totalité du spectre en sortie, en rouge, le spectre après filtrage passe bande à 2500 nm **(b)** Soliton décalé en sortie de 0,7 m de fibre LMA50 : en noir, le spectre en entier, en rouge, le spectre après filtrage passe-bande à 2250 nm

En augmentant la puissance injectée dans chacune des fibres, on augmente aussi l'ordre du soliton. Dans la fibre LMA40, la puissance injectée était de 600 mW, ce qui correspond à une puissance crête de l'impulsion de $\hat{P}_0 \approx 690$ kW. La puissance crête et l'énergie du soliton le plus décalé, au moment de sa fission, peuvent être estimées numériquement en utilisant les formules III.13. La largeur temporelle à 1/e de l'impulsion de pompe étant $\tau_0 = 434$ fs, cela donne une longueur de dispersion égale à ~2 m. La longueur non linéaire de la fibre avec la puissance crête correspondante est de ~0,019 m. Ceci conduit à un ordre de soliton égal à N = 10,36. Ces paramètres peuvent nous donner une estimation de l'énergie contenue dans le premier soliton éjecté au moment de sa fission.

$$\hat{P}_{1_{LMA}} = \frac{(2N_{LMA}\text{-}2\times1+1)^2}{N_{LMA}{}^2}\hat{P}_0$$

$$\tau_1 = \frac{1}{(2N_{LMA}\text{-}2\times1+1)}\tau_0 \qquad \text{(III-17)}$$

$$E_1 = \frac{\Delta t}{0{,}88}\hat{P}_{1_{LMA}}$$

avec

$$\Delta t = 1{,}763.\tau_1$$

La puissance crête et la largeur temporelle à 1/e du premier soliton éjecté dans la fibre LMA40 sont $\hat{P}_1 = 2{,}5$ MW et $\tau_1 = 22$ fs. Avec une largeur temporelle à mi-hauteur $\Delta t \approx 39$ fs, nous pouvons déduire l'énergie contenue dans ce soliton qui sera $E_{1_{LMA40}} \approx 110$ nJ. De la même manière, nous calculons l'énergie estimée dans le premier soliton éjecté dans la fibre LMA50.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Avec une puissance moyenne injectée de 580 mW, l'ordre de soliton est un peu inférieur (N = 7,88). La puissance crête calculée est 2,35 MW avec une largeur temporelle à 1/e égale à ~30 fs. L'énergie estimée dans le soliton est $E_{1_{LMA50}}$ ≈ 138 nJ. Face à l'augmentation de la dispersion chromatique et de l'aire effective en fonction de la longueur d'onde dans les fibres ainsi que la courte durée des solitons générés, ces derniers vont rapidement subir la dispersion au cours de leur propagation pour atteindre des durées temporelles un peu plus longues que leurs durées temporelles lors de la fission.

La mesure de la puissance moyenne après deux filtres passe-bande centrés à 2,25 µm et 2,5 µm avec des bandes passantes de 500 nm indique que les énergies mesurées après filtres sont de 120-150 nJ. L'énergie estimée dans le soliton en sortie de la LMA40 est de ~90 % de l'énergie mesurée. Cela correspond à une énergie d'environ 108 nJ. L'énergie estimée dans le soliton en sortie de la LMA50 est de ~85 % de l'énergie mesurée. Cela correspond à une énergie d'environ 130 nJ. On constate que les mesures expérimentales correspondent bien aux niveaux d'énergie estimés théoriquement. Les modélisations numériques présentées sur la figure III.21 dans les deux tronçons de fibres sont aussi en bon accord avec les résultats expérimentaux. La colonne (A) montre l'évolution spectrale et temporelle de l'impulsion dans la fibre LMA40 tandis que la colonne (B) montre son évolution dans la fibre LMA50. Selon ces simulations, des puissances crêtes dépassant le mégawatt et des durées temporelles de 80-100 fs sont prévues en sortie de chaque tronçon.

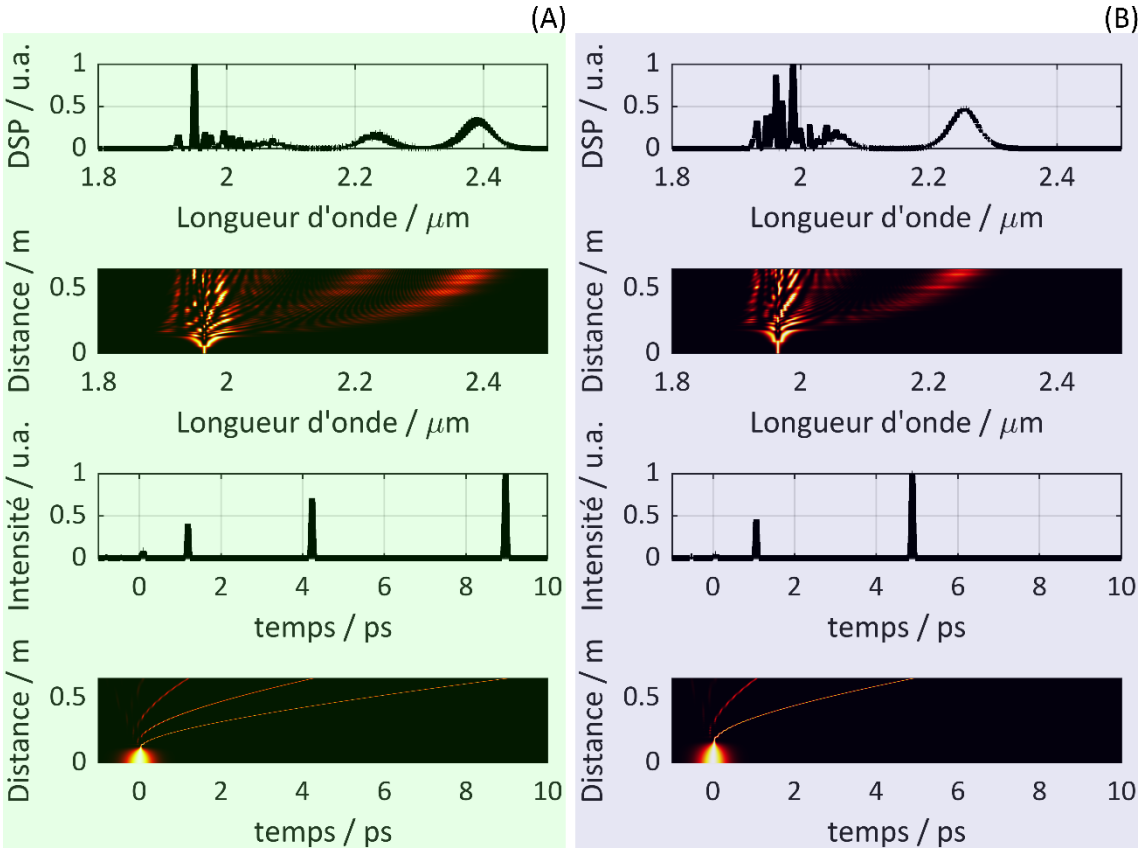


Figure III.21 : Modélisation numérique de l'évolution spectrale et temporelle de l'impulsion émise par le laser Novae de 765 fs avec une puissance moyenne injectée de 600 mW dans : **(A)** 0,6 m de fibre LMA40, **(B)** 0,7 m de fibre LMA50

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Expérimentalement, une caractérisation temporelle des solitons décalés en sortie de chaque fibre a été faite avec notre dispositif SHG-FROG. Les mesures SHG-FROG des deux solitons sont effectuées après collimation par une parabole hors-axe afin d'éviter les effets de dispersion lors de la traversée des lentilles. Les résultats obtenus sont présentés sur la figure III.22. La colonne (A) montre la mesure SHG-FROG du soliton en sortie de la fibre LMA40. La trace FROG mesurée (A.a) correspond bien à celle reconstruite (A.b). L'erreur entre les deux spectrogrammes est de 0,16 %. La mesure temporelle indique que la durée du soliton est FWHM = 116 fs. Le spectre reconstruit correspond bien au spectre mesuré à l'analyseur de spectre optique comme le montre la figure III.22 (A.d). Étant donné que la puissance moyenne du soliton mesurée après le filtre passe-bande est de ~108 mW, la puissance crête du soliton est estimée à ~0,8 MW. La colonne B de la figure III.22 montre la mesure SHG-FROG du soliton en sortie de la fibre LMA50. L'erreur FROG entre la trace FROG mesurée (B.a) et la trace reconstruite (B.b) est de 0,3 %. La mesure temporelle indique que la durée du soliton est FWHM = 91 fs. Le spectre reconstruit correspond au spectre mesuré à l'analyseur de spectre optique et nous déduisons une puissance crête > 1,2 MW dans le soliton.

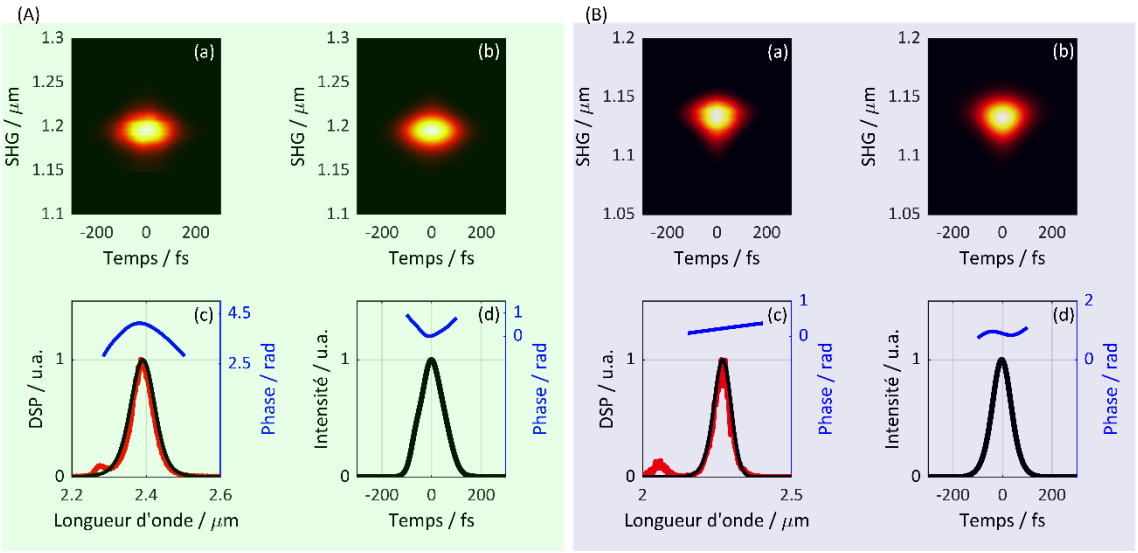


Figure III.22 : (A) mesure SHG-FROG du soliton en sortie de la fibre LMA40, **(B)** mesure SHG-FROG du soliton en sortie de la fibre LMA50

Les résultats obtenus en sortie de chaque fibre en silice sont récapitulés dans le tableau III.4. La forte puissance crête et la courte durée temporelle des solitons décalés font que ces derniers pourront servir d'impulsion de pompe d'un autre étage de SSFS dans la fibre ZBLAN26.

Tableau III.4 Résultats en sortie du 1er étage de SSFS

Fibre	Longueur [m]	Puissance moyenne [mW]	Puissance soliton [mW]	λ [µm]	FWHM [fs]	Puissance crête [MW]
LMA40	0,6	600	~108	2,39	116	0,8
LMA50	0,7	580	~ 130	2,27	91	1,2

III.4.2.4. SSFS dans la fibre ZBLAN26 après un étage de SSFS dans les fibres en silice

Contrairement au premier montage expérimental utilisé au tout début, dans cette situation, la fibre ZBLAN26 est pompée avec le soliton décalé à 2,3-2,4 µm au lieu de l'impulsion émise

Licence CC BY-NC-ND 3.0

directement par le laser BHP Novae. La dispersion et l'aire effective de la fibre ZBLAN26 sont plus élevées à la longueur d'onde du soliton décalé. Si on ajoute à cela la plus courte durée temporelle de l'impulsion « de pompe », on doit s'attendre à une réduction drastique de l'ordre du soliton N généré. Le soliton en sortie des fibres LMA de silice a une énergie de 110-130 nJ. L'énergie d'un soliton fondamental avec une durée Δt = 100 fs est de ~30 nJ fs à 2,4 µm. Avec un rendement d'injection de 50 %, soit une énergie de 50 nJ, l'ordre du soliton calculé dans la fibre ZBLAN26 à λ = 2,4 µm est de N ≈ 1,3. Soit un ordre de soliton 6,5 fois plus bas que précédemment pour le même niveau de puissance. L'énergie injectée étant supérieure à l'énergie d'un soliton fondamental, l'impulsion subira tout de même la fission multi-solitonique et le SSFS. L'énergie du premier soliton généré est calculée à $E_1 \approx 48$ nJ. Ceci indique qu'un soliton isolé et de haute énergie est prévu en sortie de la fibre ZBLAN26 avec cette approche. Le décalage estimé du soliton fondamental, calculé à partir de la relation III.11 avec T_R = 6 fs et $\beta_2 = -8{,}1\times10^{-26} s^2 m^{-1}$ à 2,4 µm, au bout d'1 m de fibre ZBLAN26 est $\Delta\lambda \approx 76$ nm. Dans le cas du soliton d'ordre supérieur, soit une énergie injectée de 50 nJ, la durée temporelle du premier soliton sera plus courte au moment de la fission et a pour valeur $\tau_1 \approx 36$ fs. Il va donc subir un décalage beaucoup plus important que le soliton fondamental. Son décalage estimé de l'équation III-11 est de 440 nm. Cette estimation ne tient pas compte des variations spectrales des paramètres dispersifs et non linéaires de la fibre (β_2 et n_2 sont pris comme constants). Ces variations entraineront la variation de la durée et de la puissance crête des impulsions lors de leur décalage en longueur d'onde dans la fibre optique. Cela n'empêche que l'on peut s'attendre à un décalage de quelques centaines de nanomètres au bout d'une courte longueur de fibre ZBLAN26. Le montage expérimental de l'auto-décalage en fréquence dans la fibre ZBLAN26 est montré dans la figure III.23. Nous avons ajouté un deuxième étage de SSFS dans un tronçon de fibre ZBLAN26.

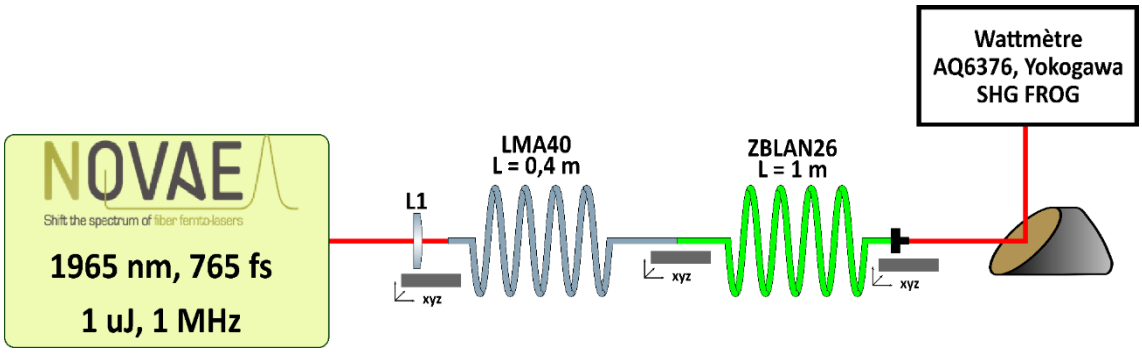


Figure III.23 : 1er Montage expérimental de SSFS à 3 µm dans la fibre ZBLAN26

Les premières mesures ont été faites en utilisant un morceau plus court de fibre LMA40 afin de réduire le nombre de solitons générés et de ne garder qu'un seul soliton décalé autour de 2,2 µm. La sortie de cette fibre est mise bout à bout avec la fibre ZBLAN26. Le rendement d'injection entre les deux fibres était d'environ 60 % grâce au bon accord d'ouverture numérique des deux fibres. Une première injection a été faite dans 3,5 m de fibre ZBLAN26. Le spectre mesuré en sortie montre un soliton propre décalé à 3,17 µm avec une puissance égale à ~48 mW après filtrage passe-bande à 3 µm de 500 nm de bande passante. La durée temporelle du soliton mesurée à l'aide d'un autocorrélateur en intensité (Femtochrome, FR-103XL Autocorrelator) est de 165 fs. D'après les simulations, l'efficacité du décalage de fréquence commence à diminuer au bout de 2 m de propagation. Ceci est dû à l'augmentation de l'aire effective et de la dispersion ainsi qu'aux pertes de propagation vues par le soliton. La

Licence CC BY-NC-ND 3.0

distance requise pour avoir un soliton avec la plus haute puissance crête était d'environ 1-2 m de longueur. C'est pourquoi dans la suite de nos expériences, de courtes longueurs de fibre ont été exploitées. Le choix d'une courte longueur de fibre réduira à la fois la dispersion du soliton ainsi que les pertes de propagation. Les résultats de modélisation de l'évolution spectrale du soliton en sortie de 4 m de fibre ZBLAN sont montrés sur la figure suivante :

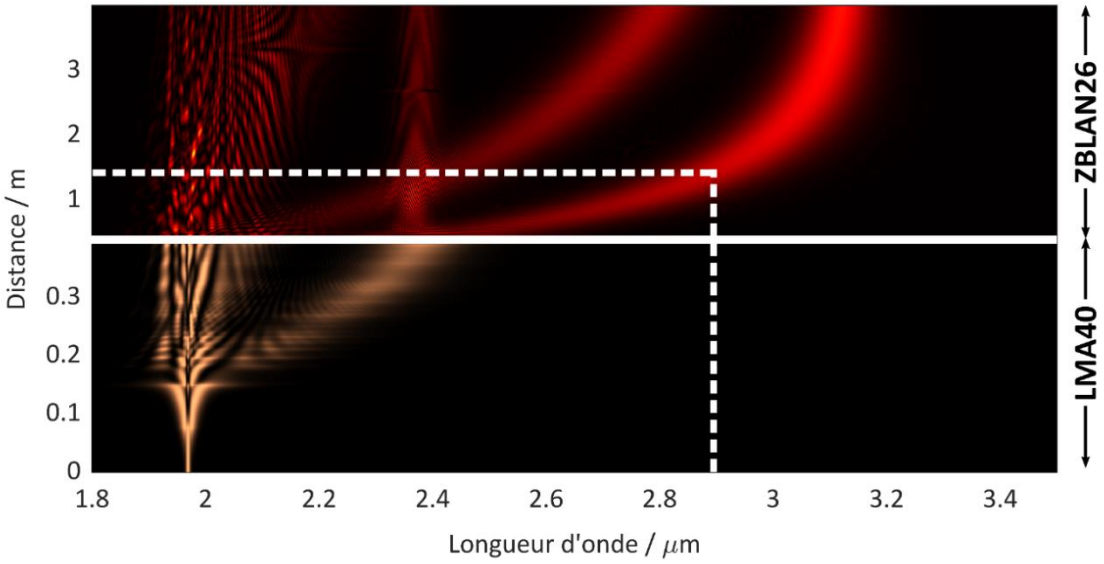


Figure III.24 : Modélisation numérique de la propagation de l'impulsion émise par le laser dans une cascade de fibre LMA40 et ZBLAN26

Par la suite, la fibre ZBLAN26 a été découpée à une longueur ~1 m. La puissance totale injectée était de ~380 mW. Le soliton a été décalé autour de 2,95 µm avec une énergie après filtrage passe-bande de 48 mW. La figure du spectre mesuré ainsi que la mesure SHG-FROG de ce soliton sont montrées sur la figure III.25. Le résultat montre que la durée temporelle du soliton est de 86 fs. La trace FROG mesurée et celle reconstruite sont en bon accord, ce qui est confirmé par la faible erreur de reconstruction de 0,7 % et le bon accord entre les spectres mesuré et reconstruit superposés sur la figure III.25(c). Ainsi nous déduisons que le soliton à 2,95 µm comprend 9 cycles optiques et une puissance crête d'environ 490 kW.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

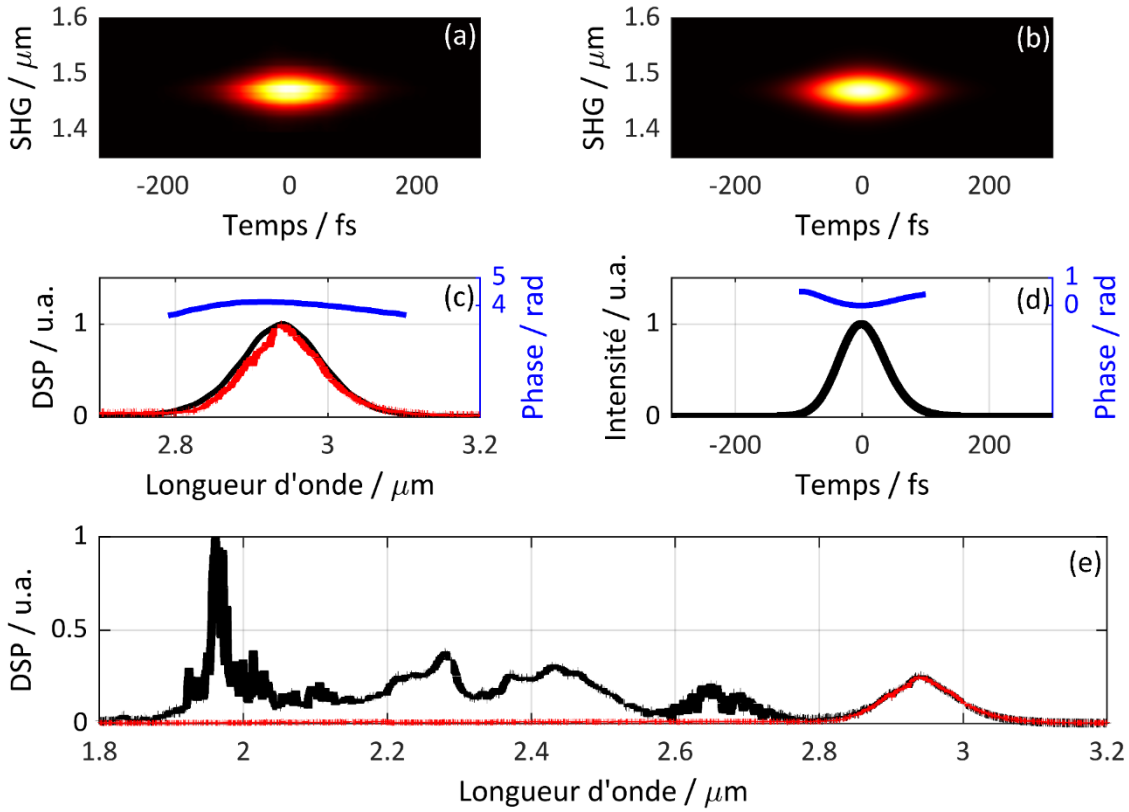


Figure III.25 : (a-d) Mesure temporelle par SHG-FROG et **(e)** mesure du spectre du soliton en sortie de la fibre ZBLAN26 après la fibre LMA40

D'autres mesures sont faites en utilisant la fibre LMA50 comme premier étage de SSFS. Le montage expérimental est présenté sur la figure III.26.

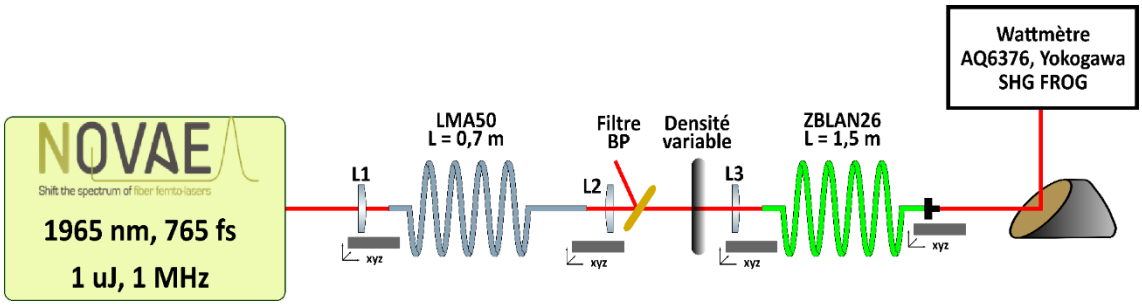


Figure III.26 : 2e montage expérimental de SSFS à 3 µm dans la fibre ZBLAN26

Dans cette configuration, l'injection dans la fibre ZBLAN26 se fait en espace libre par une paire de lentilles plan-convexes en silice revêtue en anti-réflexion E (Thorlabs LA8126-E et LA8308-E) avec des distances focales de L2 = 20 mm et L3 = 15 mm. Le soliton en sortie de la fibre LMA50 est filtré et la puissance mesurée en aval du filtre est ~150 mW. La longueur de la fibre LMA50 était de 70 cm. La puissance totale en sortie de cette dernière est de l'ordre de 580 mW sans la lentille et de 530 mW après la première lentille. La transmission des lentilles est de 100 % autour de 2,2 µm et de ~90 % autour de 2 µm selon le fabricant [147]. Cela revient à dire que les pertes de transmission sont appliquées au résidu de la pompe uniquement. Le rendement d'injection dans la fibre ZBLAN26 était de ~65 %. La puissance totale mesurée en sortie de 1,5 m de fibre ZBLAN26 était d'environ 330 mW. Le filtre en sortie

Licence CC BY-NC-ND 3.0

de la fibre LMA50 permet d'isoler le soliton uniquement afin de l'injecter par la suite dans la fibre ZBLAN. La puissance de l'ensemble soliton-résidu montré dans la figure III.27 est de 150 mW, dont ~85 % dans le soliton fondamental, soit une puissance de 130 mW. Une roue à densité variable a été placée entre la LMA50 et la ZBLAN26 pour varier la puissance injectée dans cette dernière. L'évolution spectrale du soliton en sortie en fonction de la puissance est présentée sur la figure III.27. Le spectre en sortie de la fibre ZBLAN est présenté sur la première colonne tandis que la durée du soliton correspondante est montrée sur la deuxième colonne. Le décalage du soliton varie en fonction de la puissance injectée dans la fibre ZBLAN26. Plus la puissance injectée est grande, plus le décalage en fréquence est important et plus la puissance moyenne du soliton le plus décalé est élevée. Ceci est lié à l'ordre de soliton comme on l'a discuté précédemment.

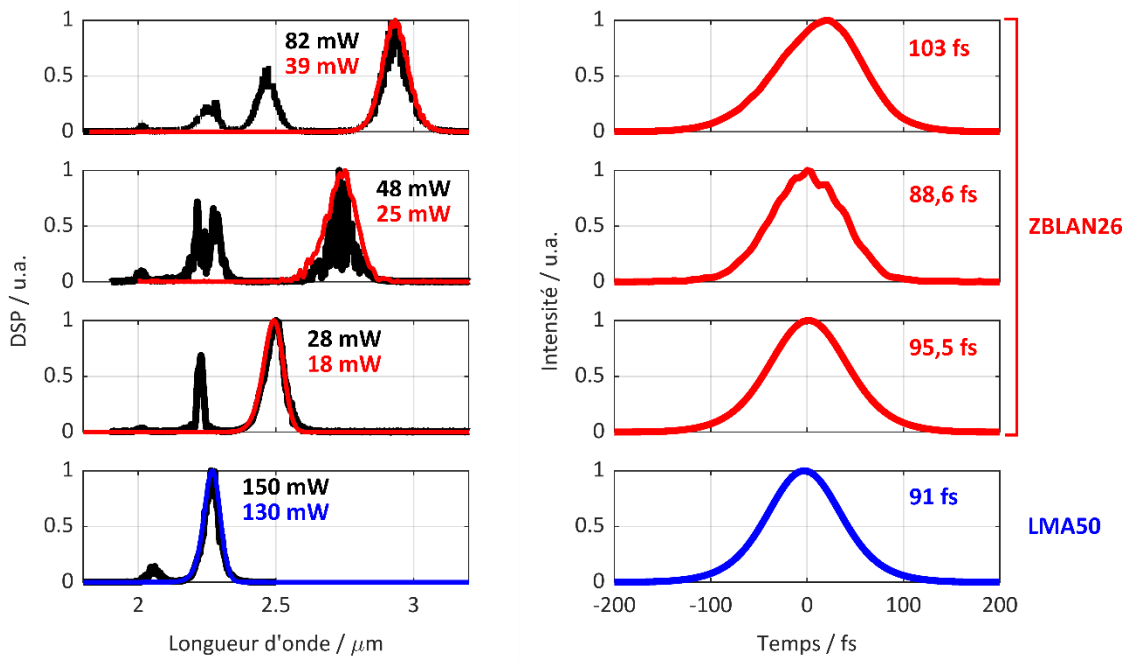


Figure III.27 : Évolution spectrale et temporelle du soliton décalé en sortie de la fibre ZBLAN26 en fonction de la puissance du soliton fondamental injecté

Ensuite, j'ai enlevé le filtre en sortie de la fibre LMA50 afin d'éviter les effets de dispersion et les pertes que peut subir le soliton. Tout l'ensemble du soliton et du résidu de la pompe sont injectés dans la fibre ZBLAN26. L'évolution du spectre en sortie en fonction de la puissance injectée est présentée sur la figure III.28.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

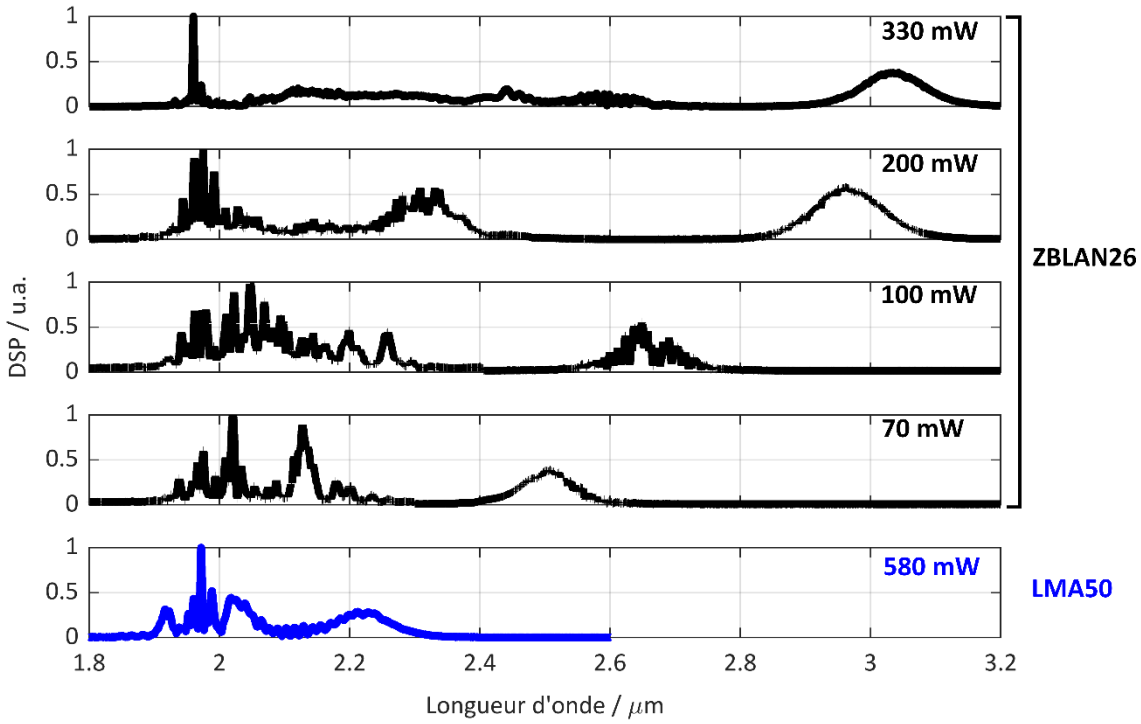


Figure III.28 : Évolution du spectre en sortie de la fibre ZBLAN26 en fonction de la puissance injectée

En sortie de la même longueur de fibre, le soliton se décale un peu plus loin dans le MIR. Avec une puissance totale de 330 mW, un soliton avec une largeur spectrale à mi-hauteur de $\Delta\lambda$ = 111 nm a été mesuré à 3,03 µm. La largeur temporelle en limite de Fourier du soliton est de ~87 fs. Sa puissance mesurée après un filtrage passe-bande autour de 3 µm est de 55 nJ.

La figure III.29(e) présente, en noir, le spectre mesuré en sortie de la fibre ZBLAN avec une puissance moyenne totale de 330 mW. La courbe en rouge correspond au spectre du soliton isolé avec le filtre passe-bande. La mesure SHG-FROG sur la même figure indique que sa largeur temporelle à mi-hauteur est de 96 fs. L'erreur entre la trace FROG mesurée et celle reconstruite est de 0,2 %. Sur la figure III.29(c), le spectre mesuré à l'analyseur de spectre optique correspond bien au spectre reconstruit par l'algorithme FROG. La puissance crête du soliton est donc d'environ 500 kW. Elle présente une valeur quasi-égale à la puissance crête obtenue avec la fibre LMA40 cependant le spectre mesuré en sortie est plus propre et le décalage est un peu plus important. C'est pour cette raison que j'ai utilisé cette configuration dans la suite de me travaux.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

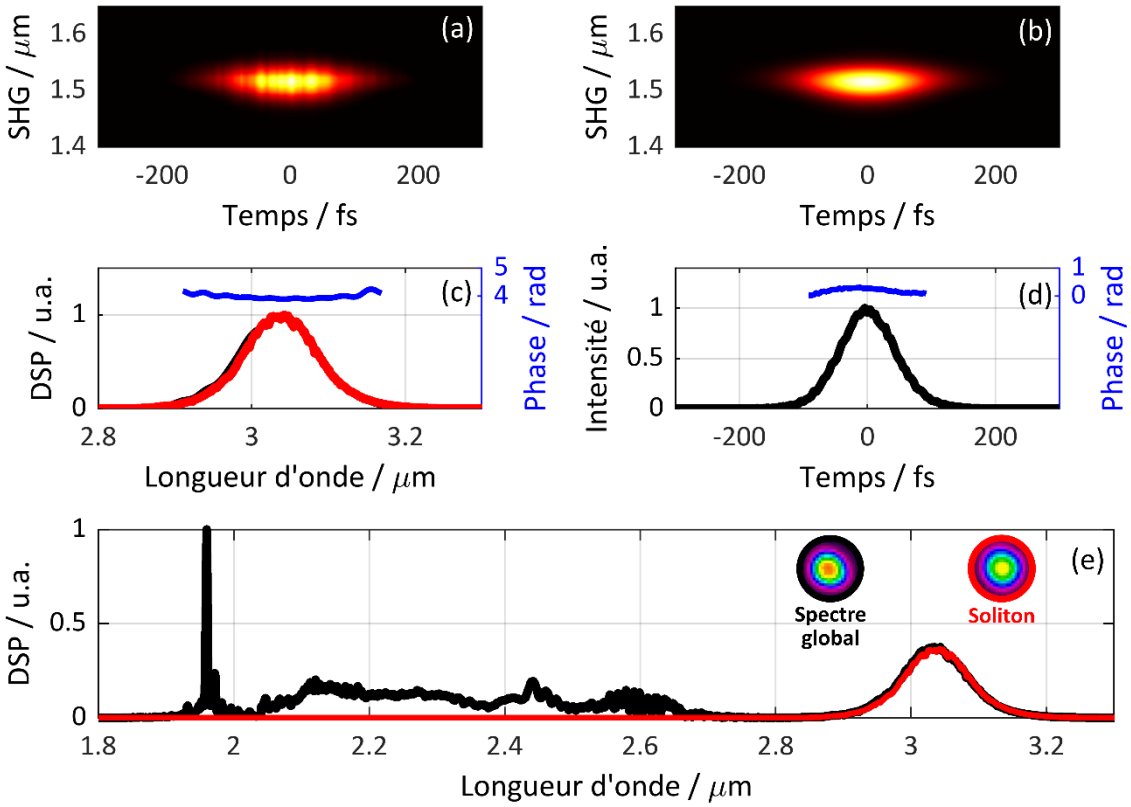


Figure III.29 : (a-d) Mesure temporelle par SHG-FROG et **(e)** spectre mesuré en sortie de la fibre ZBLAN26 après la fibre LMA50

Le tableau ci-dessous récapitule les résultats obtenus en sortie de la fibre ZBLAN26 dans les deux configurations utilisées :

Tableau III.5 Résultats en sortie du 2e étage de SSFS						
Fibre	**Longueur [m]**	**Puissance moyenne [mW]**	**Puissance soliton [mW]**	**λ [µm]**	**FWHM [fs]**	**Puissance crête [MW]**
LMA40/ZBLAN26	0,6 / 1	380	~48	2,95	86	0,49
LMA50/ZBLAN26	0,7 / 1,5	330	~55	3,03	96	0,5

Ces résultats représentent une amélioration d'un facteur 10 fois par rapport aux impulsions précédemment rapportées générées à cette gamme de longueurs d'onde via SSFS à partir de lasers dans l'infrarouge proche [36, 137]. À ma connaissance, c'est la première source par auto-décalage en fréquence délivrant des solitons de 0,5 MW crête dans l'infrarouge moyen. Cette haute puissance crête est bien adaptée à la génération de supercontinuums cohérents dans des fibres à large surface modale avec une dispersion normale pour la spectroscopie en peigne de fréquence [46] ou pour la génération d'harmoniques dans l'ultraviolet dans des cibles solides [8]. Cette source peut aussi être exploitée pour exciter un autre étage d'auto-décalage solitonique afin de se décaler davantage vers l'IR moyen.

III.4.3. Source SSFS au-delà de 3 µm

D'après les travaux discutés jusque-là, nous constatons que la technique SSFS se présente comme une bonne approche pour générer des solitons à forte puissance crête dans des

Licence CC BY-NC-ND 3.0

bandes de fréquence peu couvertes par les sources optiques actuelles. La faible non-linéarité liée à la grande aire effective des fibres LMA en silice et en fluorozirconate ont permis de générer une source SSFS sub-100 fs autour de 3 µm avec une énergie de l'ordre de 50 nJ. L'objectif ensuite est de décaler davantage ce soliton vers les hautes longueurs d'onde. Comme je l'ai évoqué précédemment, à ma connaissance, la seule source femtoseconde par émission directe au-delà de 3 µm dans une cavité à verrouillage de modes dans des fibres optiques a été publiée récemment. Elle génère des impulsions de 580 fs autour de 3,5 µm. En revanche, l'énergie émise par cette source reste limitée à 3,2 nJ [72]. Ces dernières années, plusieurs autres sources plus prometteuses émettant au-delà de 3 µm par SSFS ont été publiées. La majorité d'entre elles utilisent des cavités à verrouillage de modes à 2,8 µm comme source de pompe. Avant mes travaux de thèse, des sources de plus de 200 kW crête à 3,6 µm dans des fibres optiques en verre fluoré avaient été publiées [138]. À la fin de ma thèse deux autres travaux ont été publiés rapportant l'émission d'impulsions femtosecondes de 23 nJ et 4 nJ à 3,8 µm et 4,8 µm respectivement [120, 140]. À ma connaissance, il n'existe, à ce jour, qu'une seule source SSFS émettant autour de 4 µm à partir d'une source de pompe proche infrarouge. Cette source émet des solitons sub-200 fs décalés avec une énergie de 6,4 nJ à 4,3 µm. Dans cette source on a utilisé des impulsions de 550 fs (1,3 µJ) provenant d'un système d'amplification d'impulsions chirpées (CPA) à fibre dopée à l'erbium à 1,55 µm décalées successivement par SSFS dans un barreau en silice microstructurée à maintien de polarisation et dans une fibre en verre fluoroindate. Bien que cette démonstration ait souligné de manière convaincante le potentiel des sources MIR SSFS, elle a également montré les limites de cette approche pour générer un soliton propre et énergétique à cette longueur d'onde [137]. Des modélisations numériques ont montré l'utilité du SSFS dans une cascade de fibres optiques afin d'obtenir des solitons propres au-delà de 4 µm [148]. Les prochains travaux sont alors la suite de ce que nous avons vu jusqu'à maintenant. Il s'agit d'une continuité de l'auto-décalage en fréquence du soliton dans une cascade d'autres fibres optiques en verre fluoré.

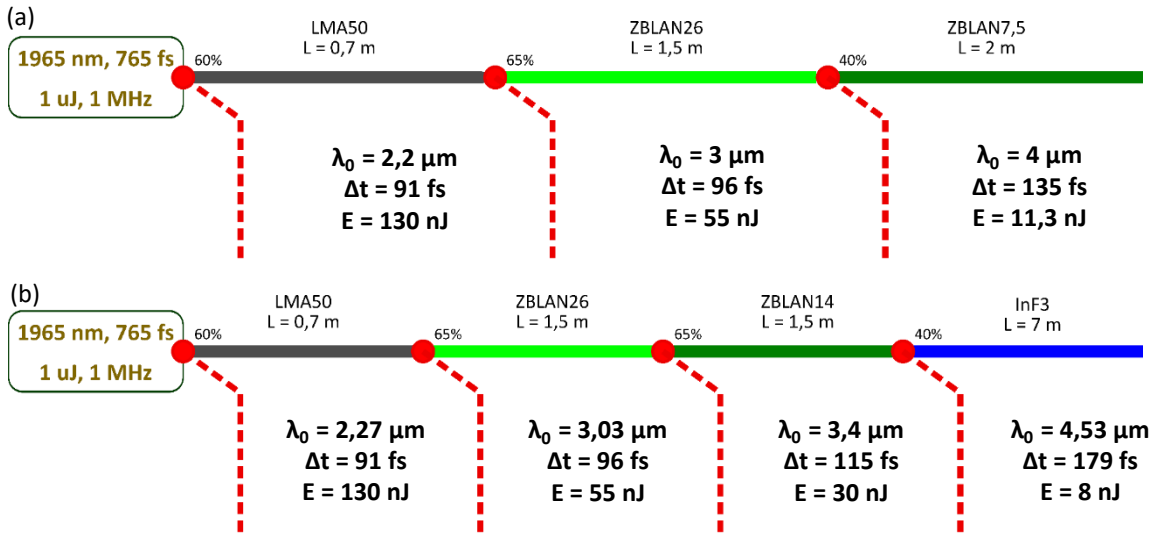


Figure III.30 : Schéma simplifié des montages expérimentaux pour les sources SSFS au-delà de 3 µm

Les schémas simplifiés de la figure III.30 présentent les deux montages discutés par la suite pour la réalisation de deux sources SSFS émettant des solitons sub-200 fs propres autour de 4 et 4,5 µm respectivement. Les fibres utilisées sont :

Licence CC BY-NC-ND 3.0

- Une fibre ZBLAN 7,5/125 µm d'ON = 0,23 et que je nommerai par la suite ZBLAN7,5 ;
- Une fibre ZBLAN 14/125 µm d'ON 0,125 (ZBLAN14);
- Une fibre InF_3 9,5/125 µm d'ON = 0,3 ($InF_3$9,5).

La figure III.31 présente les courbes de dispersion et d'aire effective de chacune de ces fibres.

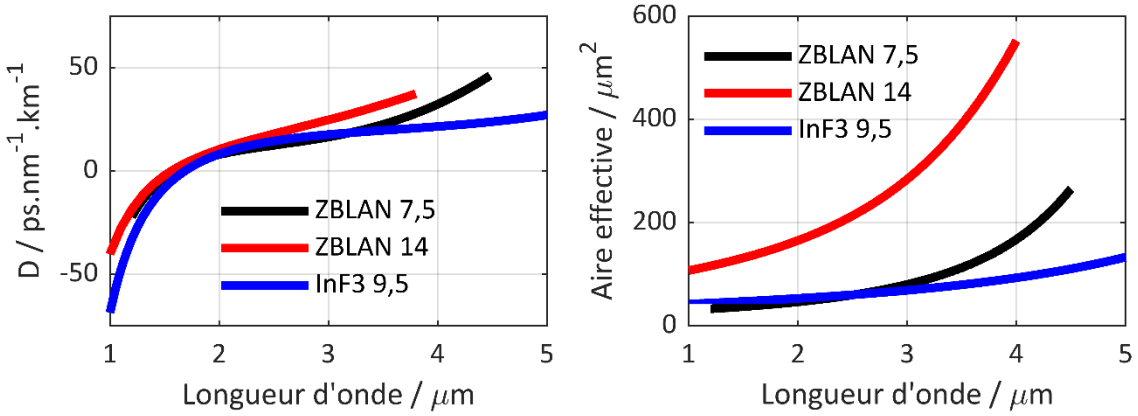


Figure III.31 : Courbes de dispersion et d'aire effective des fibres ZBLAN14, ZBLAN7,5 et $InF_3$9,5

Le tableau III.6 synthétise les paramètres de toutes les fibres optiques, en silice et verre fluoré, utilisées durant mes travaux de thèse :

Tableau III.6 Paramètres des différentes fibres exploitées pour les sources SSFS						
Fibre/ Paramètre	**Dcoeur [µm]**	**Dgaine [µm]**	**ON**	**ZDW [µm]**	**fr**	**n_2 [×10^{-20} m^2/W]**
LMA40	40	190	0,08	1,27	0,18	2,24 [149]
LMA50	50	367	0,055	1,27	0,18	2,24
ZBLAN26	26	250	0,075	1,55	0,15	2,1
ZBLAN14	14	125	0,125	1,56	0,15	2,1
ZBLAN7,5	7,5	125	0,23	1,6	0,15	2,1
InF_3 9,5	9,5	125	0,3	1,69	0,2	3,5

Le premier montage expérimental reprend les travaux présentés jusqu'ici. J'ai ajouté un étage de SSFS dans une fibre optique ZBLAN7,5 à l'ensemble présenté sur la figure III.26. L'injection dans la fibre ZBLAN7,5 se fait à travers deux lentilles en chalcogénure (60 % de sélénium, 28 % de germanium et 12 % d'antimoine) revêtues en anti-réflexion E transparentes à ~99 % entre 3 et 5 µm. Une première injection a été faite dans une bobine de fibre ZBLAN7,5 de 10 m de long. La puissance injectée ne dépasse pas 50 mW avec un rendement d'injection < 20 %. Ceci est attribué aux pertes de propagation et aux pertes par courbure dans la fibre. Le spectre mesuré en sortie par un spectromètre à transformée de Fourier (iS50 FTIR, Nicolet) est présenté sur la figure III.32. On constate que le soliton se décale autour de 4 µm, mais il commence à freiner et à subir la compression spectrale. Sa largeur spectrale est de 50 nm, ce qui donne une largeur temporelle à mi-hauteur en limite de Fourier de 340 fs. La puissance contenue dans le soliton et mesurée après filtrage passe-bande à 4 µm est de 4 nJ. Cela donne une puissance crête de 10 kW.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

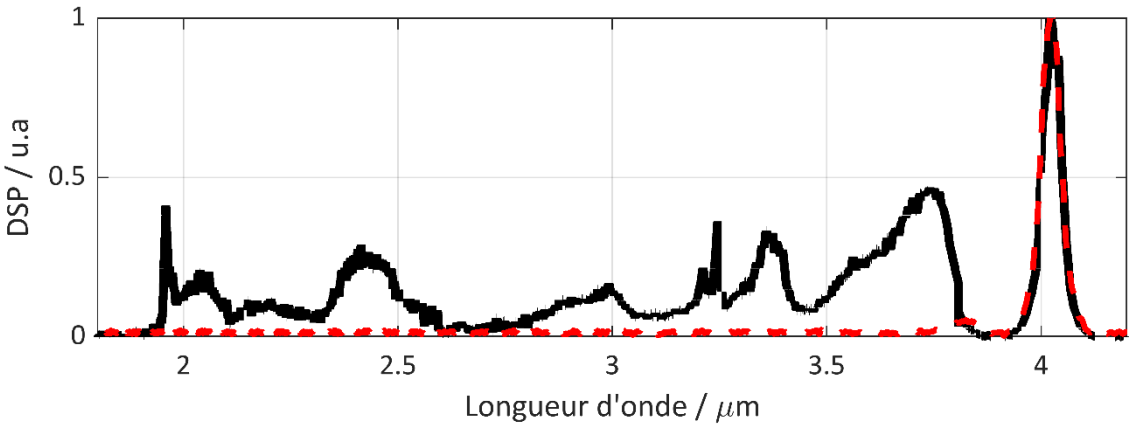


Figure III.32 : Spectre mesuré en sortie de 10 m de fibre ZBLAN7,5

Il apparait donc que la fibre est trop longue. Comme nous l'avons déjà évoqué dans le cas de la fibre ZBLAN26, le décalage Raman dans les fibres en verre fluoré est relativement rapide et ne nécessite pas de longues distances de propagation. C'est pour cela que je n'ai conservé que 2 m de fibre ZBLAN7,5. J'ai placé un filtre en sortie de la fibre ZBLAN afin de n'injecter que le soliton décalé à 3 µm. Avec une roue à densité variable en entrée, j'ai caractérisé le décalage du soliton après 2 m de propagation en fonction de la puissance moyenne injectée. J'ai aussi mesuré le profil temporel de l'impulsion décalée. Les résultats de mesures sont présentés sur la figure III.33.

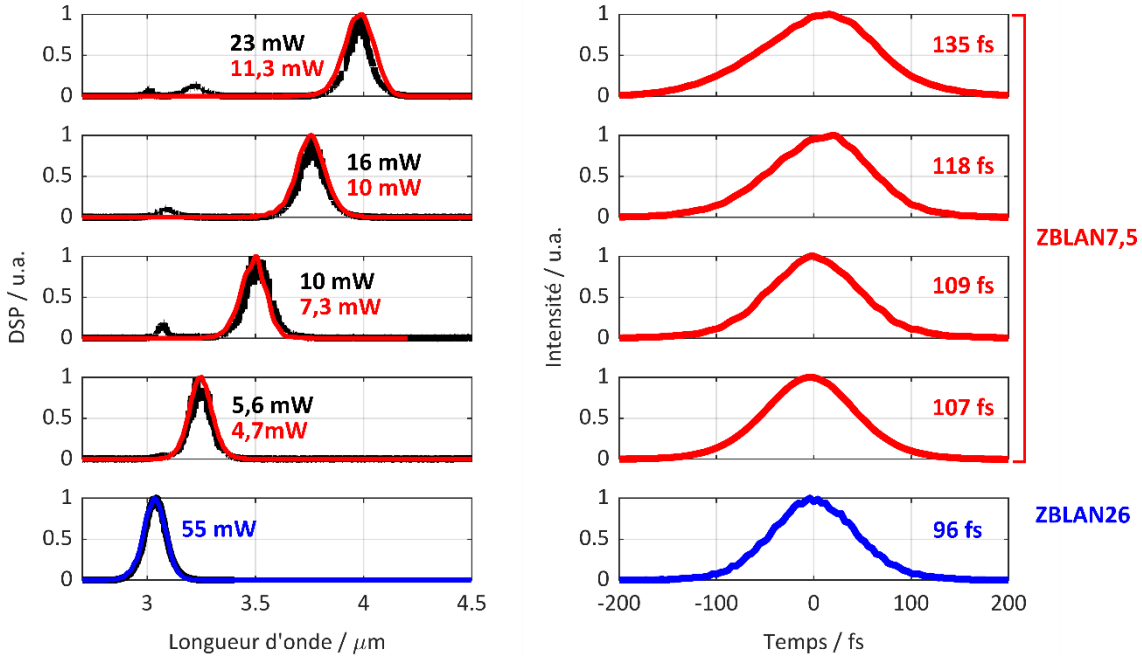


Figure III.33 : Evolutions spectrale et temporelle du soliton décalé en sortie de 2 m de fibre ZBLAN7,5 en fonction de la puissance injectée

Une première constatation est que la puissance mesurée indique un rendement d'injection > 40 %, soit un rendement deux fois plus élevé que précédemment. D'après les résultats expérimentaux, le soliton a une largeur spectrale à mi-hauteur de 110 nm à 4 µm, une énergie après filtrage passe-bande de 11,3 nJ et une durée temporelle caractérisée au SHG-FROG de 135 fs. Cela signifie que le soliton présente une puissance crête de ~70 kW. À ma connaissance, il s'agit de la plus haute puissance crête obtenue en sortie d'une fibre optique

Licence CC BY-NC-ND 3.0

à cette longueur d'onde. L'augmentation de l'aire effective de cette fibre autour de 4 µm (> 150 µm^2), de la dispersion chromatique ainsi que les pertes de transmission de la fibre freinent le décalage du soliton au-delà de cette longueur d'onde.

Comme le montre la figure III.31, cette limitation peut être contournée en utilisant la fibre $InF_3$9,5 qui présente simultanément une aire effective et une dispersion chromatique plus faibles au-delà de 4 µm que celles de la fibre ZBLAN7,5. Sachant aussi que les fibres en verre de fluoroindate sont transparentes jusqu'au ~5 µm, un soliton décalé au-delà de 4 µm semble atteignable dans cette fibre une fois pompée par notre source.

À 3 µm, la fibre $InF_3$9,5 présente des valeurs d'aire effective et de dispersion chromatique semblables à celles de la fibre ZBLAN7,5. L'indice non linéaire, en contrepartie, est de l'ordre de $3{,}5\times10^{-20}$ m²/W, soit ~1,5 fois plus élevé que celui de la fibre ZBLAN7,5 [58]. En conséquence, la fibre $InF_3$9,5 est 1,5 fois plus non-linéaire que la fibre ZBLAN7,5 à cette longueur d'onde et cela réduira l'énergie contenue dans le soliton décalé. Or étant donné que l'énergie nécessaire au SSFS augmente avec la longueur d'onde de pompe λ_p, un pompage de la fibre $InF_3$9,5 un peu plus haut en longueur d'onde est souhaitable. Pour cela, une fibre ZBLAN14 avec une longueur de 1,5 m est placée comme étage de décalage intermédiaire entre la fibre ZBLAN26 et la fibre $InF_3$9,5. L'injection du soliton filtré à 3 µm dans la fibre ZBLAN14 est faite en espace libre par une paire de lentilles. Le rendement d'injection entre les deux fibres était de 60 % et un soliton avec une trentaine de nanojoules est décalé autour de 3,3 µm. Le résultat obtenu est montré sur la figure III.34. La mesure temporelle du soliton n'a pas été faite, mais la largeur spectrale à mi-hauteur du soliton était de 100 nm. Cela correspond à une durée temporelle en limite de Fourier de 115 fs.

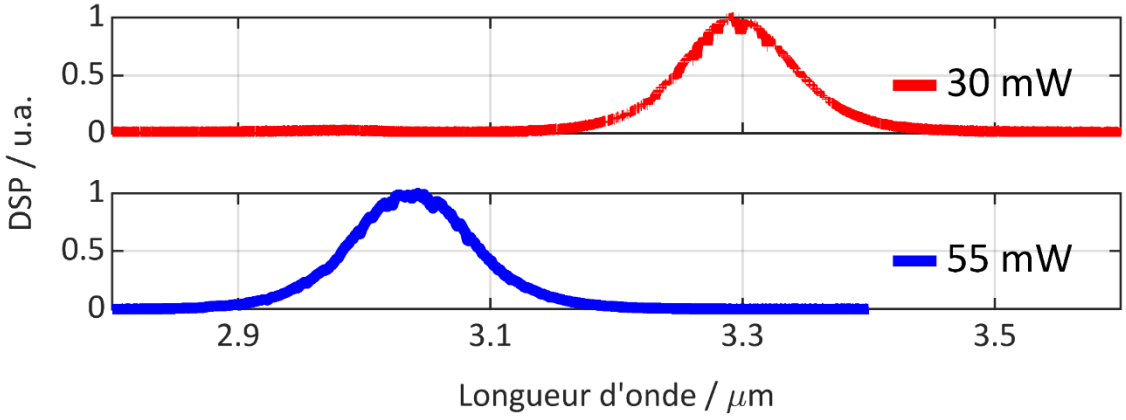


Figure III.34 : Soliton en amont (en bleu) et en aval (en rouge) de la fibre ZBLAN14

Enfin, dans l'objectif d'améliorer davantage l'injection, on a soudé la fibre ZBLAN26 à la fibre ZBLAN14. La soudure est faite à l'aide d'une soudeuse utilisant un laser CO_2 (LZM-100 FUJIKURA). La soudure était de bonne qualité et les pertes ont été évaluées à 2 dB. Le rapport d'injection dépassait 65 % et la puissance moyenne totale en sortie de la fibre ZBLAN14 était de 230 mW dont ~30 mW dans le soliton décalé à 3,4 µm. Le montage expérimental final est montré sur la figure suivante.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

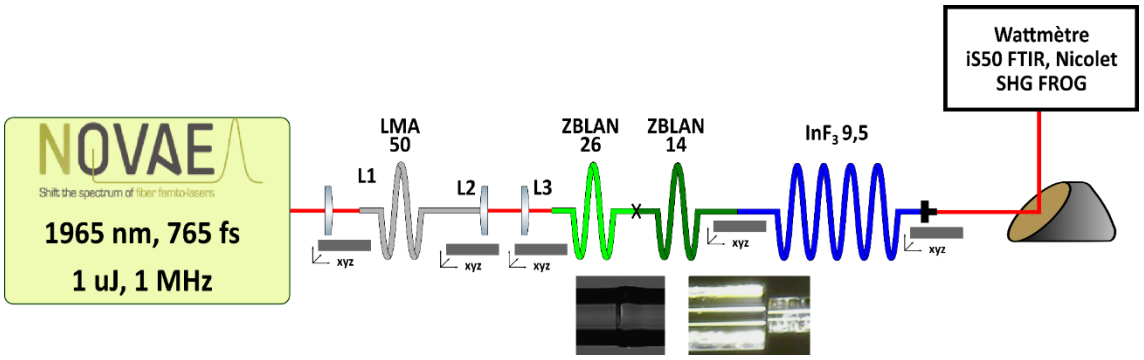


Figure III.35 : Montage expérimental de la source SSFS à 4,5 µm

La fibre ZBLAN14 est mise ensuite bout à bout avec la fibre InF_3 9,5. Le rendement d'injection entre les deux fibres est de > 35 %. Une puissance moyenne totale de > 80 mW a été mesurée en sortie de fibre. L'évolution spectrale tout le long de la chaine est montrée sur la figure suivante :

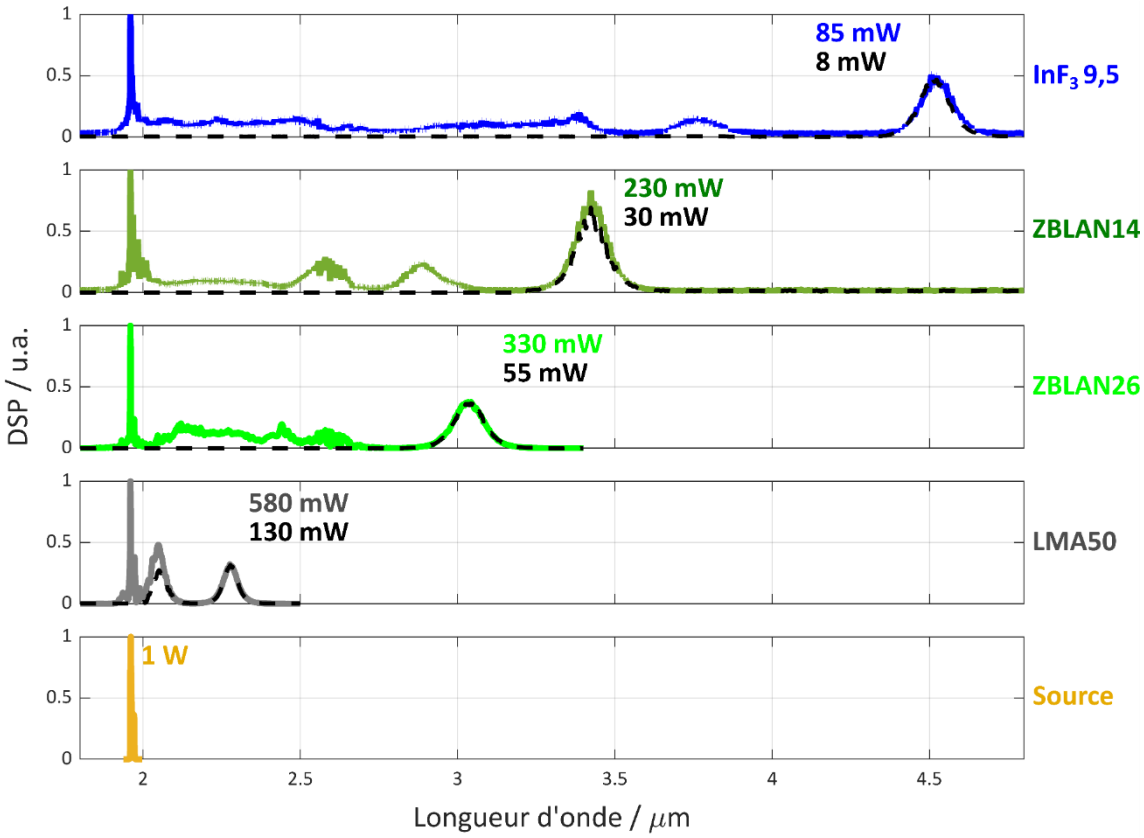


Figure III.36 : Évolution spectrale du soliton après les différents étages à fibre optique

La largeur spectrale à mi-hauteur du soliton à 4,5 µm est $\Delta\lambda$ = 102 nm. Cela donne une largeur temporelle en limite de Fourier de l'ordre de Δt = 210 fs. Vu que le photodétecteur du spectromètre utilisé sur le SHG-FROG à base d'arséniure d'indium gallium InGaAs est limité à 2,1 µm, la mesure FROG du soliton à 4,5 µm nous est inaccessible. La caractérisation du soliton est alors faite un peu plus bas en longueur d'onde. En baissant la puissance injectée dans la fibre $InF_3$9,5 à ~60 mW, le soliton est décalé autour de 4 µm avec une énergie de ~4,5 nJ. La caractérisation SHG-FROG du soliton est présentée sur la figure III.37 et indique que sa durée est de l'ordre de 179 fs. L'erreur FROG est de 0,4 % et il existe une bonne correspondance

Licence CC BY-NC-ND 3.0

entre le spectre mesuré à l'analyseur de spectre optique et celui reconstruit par l'algorithme. Cette durée temporelle mesurée nous donne une indication approximative de la durée du soliton à 4,5 µm qui ne devrait pas être trop différente de celle mesurée à 4 µm. C'est ainsi que la puissance crête du soliton à 4,5 µm est estimée à 35 kW. À ma connaissance, il s'agit de la première source femtoseconde à fibre optique avec une telle puissance crête à cette longueur d'onde. Cette source nous a permis ensuite de générer un supercontinuum dans le moyen infrarouge dans une fibre chalcogénure microstructurée en sélénure d'arsenic (SelenOptics).

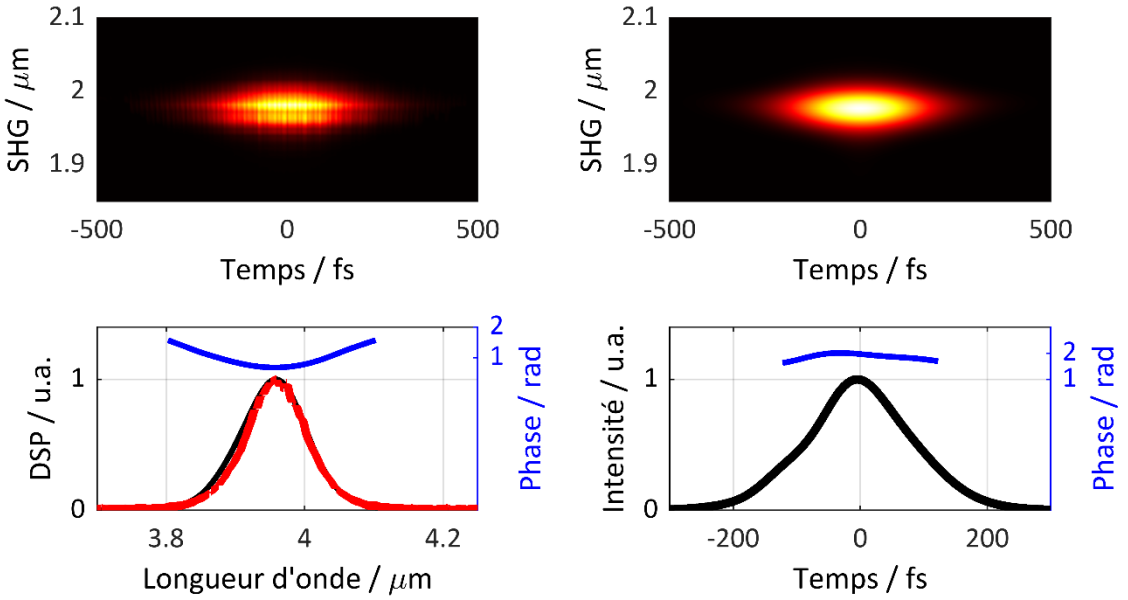


Figure III.37 : Mesure temporelle par SHG-FROG du soliton à 4 µm en sortie de la fibre $InF_3$9,5

Le tableau suivant récapitule les résultats obtenus en sortie du 3ème étage de SSFS composé soit de la fibre ZBLAN7,5 soit de la fibre $InF_3$9,5 :

Tableau III.7 Résultats en sortie du 3e étage de SSFS						
Fibre	**Longueur [m]**	**Puissance moyenne [mW]**	**Puissance soliton [mW]**	**$\lambda_{Soliton}$ [µm]**	**FWHM [fs]**	**Puissance crête [kW]**
ZBLAN7,5	2	23	11,3	4	135	70
InF_3 9,5	7	85	8	4,5	179	35

III.5. Applications des sources SSFS

III.5.1. Spectroscopie infrarouge

L'infrarouge moyen offre des opportunités importantes pour la détection de signatures de gaz puisque de nombreuses raies d'absorption fortes se produisent dans cette région [7, 150, 151]. Les raies d'absorption dans cette partie du spectre peuvent être deux ordres de grandeur plus intenses que les raies harmoniques du proche-infrarouge.

L'atmosphère de la terre est majoritairement composée d'azote (78,08 %), d'oxygène (20,95 %) et de gaz rares chimiquement neutres. Cependant, l'air contient de plus en plus d'autres particules et de gaz polluants dangereux pour la santé humaine et l'environnement. Quelle que soit l'origine de ces gaz, anthropique ou naturelle, les polluants atmosphériques

Licence CC BY-NC-ND 3.0

sont dangereux pour la santé humaine et se présentent souvent sous forme gazeuse et de particules respirables. Parmi les polluants atmosphériques les plus connus et les plus dangereux, on trouve le dioxyde de souffre SO_2, le dioxyde d'azote NO_2, l'ozone O_3 et le monoxyde de carbone CO. Le dioxyde de carbone CO_2 peut aussi s'avérer comme polluant atmosphérique. Le CO_2 est un composant naturel de l'air que nous respirons avec une quantité de l'ordre de 0,04 %, soit une concentration de 300 à 400 parties par million (ppm). À partir d'une certaine concentration dans l'air, le dioxyde de carbone peut causer un problème de santé (comme l'asphyxie et l'acidose) et causer des décès. Le CO_2 est un gaz à effet de serre et l'augmentation de sa concentration dans l'atmosphère provoque le réchauffement climatique. Le méthane CH_4 est aussi un gaz à effet de serre, mais qui est beaucoup plus puissant que le dioxyde de carbone. Il est actuellement le deuxième gaz contribuant le plus au réchauffement climatique. Bien que son pouvoir réchauffant soit bien supérieur à celui du CO_2, plus de 80 fois supérieur molécule par molécule, le méthane est classé comme deuxième responsable due à sa courte durée de vie (12 ans) et sa quantité dans l'atmosphère. La concentration du méthane dans l'atmosphère atteint actuellement 1 908 ppb (parties par milliard) soit un taux inégalé depuis au moins 800 000 ans. Il devient alors indispensable de surveiller la concentration de ces gaz dans l'atmosphère. Pour se faire, la spectroscopie infrarouge est couramment utilisée pour détecter et mesurer la concentration des gaz présents dans l'air. La figure III.38 présente les lignes d'absorption, tirées de la base de données HITRAN, des principaux gaz toxiques présents dans l'atmosphère et qui présentent tous des raies d'absorption dans l'IR moyen.

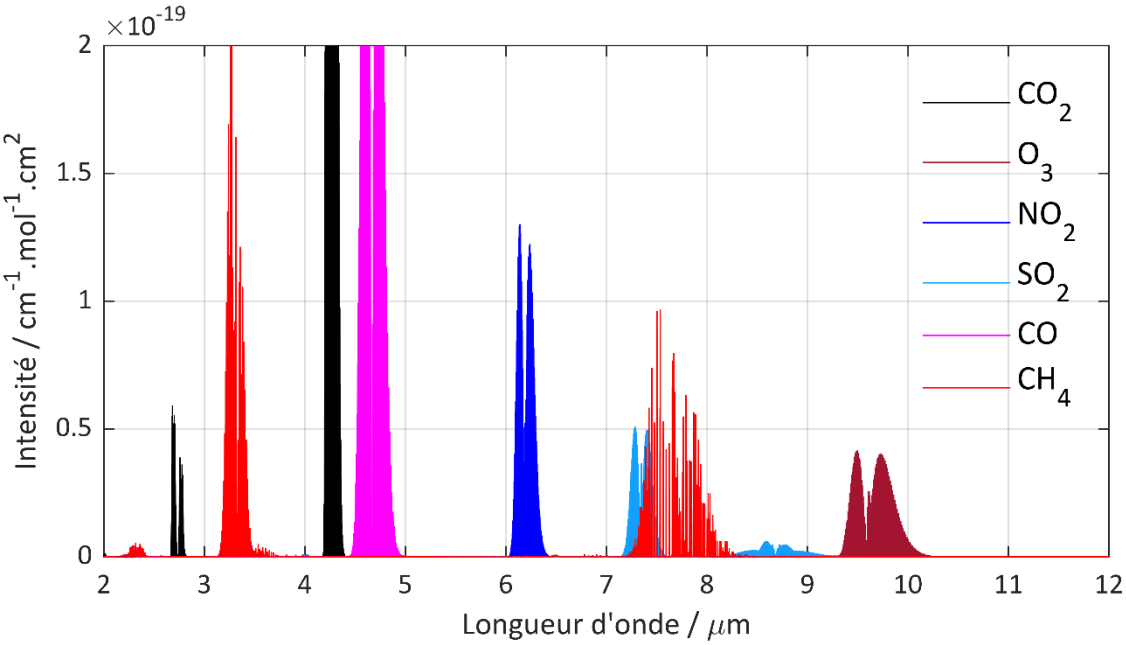


Figure III.38 : Les lignes d'absorption, tirées de la base de données HITRAN, des principaux gaz polluants présents dans l'atmosphère

La spectroscopie infrarouge est une technique de mesure de l'absorption de la lumière infrarouge par une molécule donnée. Lorsqu'un échantillon à analyser (solide, liquide, gazeux) est traversé par un rayon lumineux d'intensité I_0, une partie de la lumière incidente sera absorbée. Du coup, l'intensité lumineuse I en sortie de l'échantillon est plus faible qu'à l'entrée. Cette absorption est liée aux mouvements de vibration des liaisons chimiques des atomes de la molécule engendrée par l'énergie de la lumière infrarouge. En analysant les

Licence CC BY-NC-ND 3.0

radiations absorbées avec un spectromètre, on va pouvoir identifier la nature des liaisons et en déduire les groupes caractéristiques. L'analyse spectrale peut se faire en analysant l'absorbance ou la transmittance de l'échantillon. L'absorbance peut être calculée de la façon suivante :

$$A = \log\left(\frac{I_0}{I}\right) \qquad \text{(III-18)}$$

Les mesures de spectroscopie infrarouge se font généralement par une source de lumière supercontinuum SC [152, 153]. Une source SC possède un spectre lumineux continu sur une bande passante de plus d'une octave. Cela est très utile pour couvrir la bande d'absorption des différentes molécules de gaz cités précédemment. Outre la spectroscopie moléculaire, une source supercontinuum (SC) compacte et robuste dans le MIR ouvre de nouvelles possibilités pour des applications à l'imagerie haute résolution [154, 155].

III.5.1.1. Génération de supercontinuum dans le MIR

Les fibres en verres de chalcogénures, qui émettent de la lumière jusqu'à ~8 µm lorsqu'elles sont pompées dans le MIR [156], semblent être la plateforme la plus adéquate pour atteindre le plein potentiel des sources SC à base de fibres dans les applications spectroscopiques. Afin d'étendre au mieux un supercontinuum dans une fibre optique, il est toujours préférable de la pomper avec une source laser dans le régime anormal de dispersion, voire le plus proche possible de sa longueur d'onde de dispersion nulle ZDW. Ayant un ZDW haut en longueur d'onde, on a l'habitude de pomper les fibres en verres de chalcogénure par des sources paramétriques optiques émettant dans l'infrarouge moyen. Dans l'objectif de concevoir une source SC compacte et toute fibrée, une première approche courante consiste à générer un SC dans une cascade de fibres optiques depuis des lasers à haute énergie dans le proche infrarouge [157]. Récemment, suite au développement de sources lasers femtosecondes dans le MIR, une deuxième approche de génération de supercontinuum dans des fibres optiques en chalcogénure à dispersion contrôlée a montré son efficacité [18]. Or le contrôle de la dispersion des fibres chalcogénure se traduit généralement par une réduction de l'aire effective de la fibre et ainsi une baisse de la puissance injectée. La solution est alors d'utiliser des lasers femtosecondes émettant dans le régime anormal des fibres en verre de chalcogénure au lieu de contrôler leur dispersion. Les sources laser MIR par SSFS ont commencé à prouver leur potentiel pour ce genre d'applications avec la génération récente de SC avec une puissance moyenne élevée dans des fibres chalcogénures à saut d'indice par une source SSFS à 3,6 µm [139]. Toutefois l'extension spectrale de cette source supercontinuum était très limitée (de 2,5 à 5 µm).

Lors de mes travaux de thèse, j'ai exploité la source SSFS à 4,5 µm pour la génération de SC dans le MIR dans une fibre chalcogénure microstructurée. La courbe de transmission et la section transverse de celle-ci sont données par le fabricant et sont présentées sur la figure III.39.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

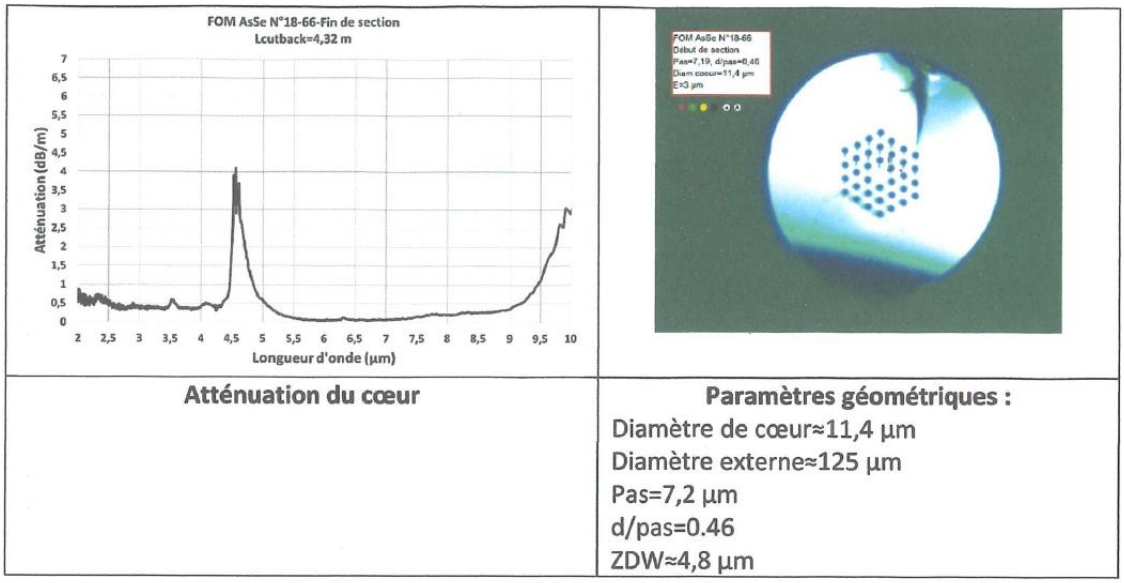


Figure III.39 : Fiche de données de la fibre optique microstructurée en verre de chalcogénure (séléniure d'arsenic AsSe) fournie par le fabricant SelenOptics

Cette fibre microstructurée air-chalcogénure présente un diamètre de cœur d = 11,4 µm et une distance entre deux trous adjacents Λ = 7,2 µm. Le rapport d/Λ = 0,46 fait qu'elle ne peut pas être infiniment monomode [158]. Cependant cette fibre est monomode entre 1,5 µm et 10 µm [49]. La dispersion chromatique de la PCF a été calculée à partir de la partie réelle de la valeur de l'indice effectif du mode guidé calculé sous COMSOL Multiphysics. L'indice de réfraction du substrat en sélénure d'arsenic As_2Se_3 se calcule à partir des coefficients de Sellmeier correspondants [159]. Les courbes de dispersion et d'aire effective de la fibre utilisée sont représentées sur la figure ci-dessous :

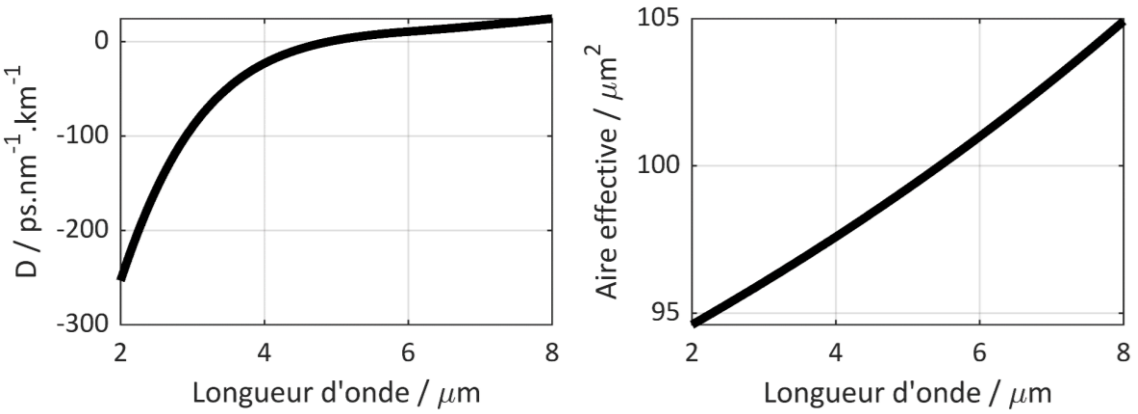


Figure III.40 : Courbes de dispersion et d'aire effective de la PCF chalcogénure

La longueur d'onde de dispersion nulle de la fibre se situe autour de 4,8 µm. La valeur de sa dispersion chromatique à 4,53 µm est assez faible (-8,8 $ps.nm^{-1}.km^{-1}$). Un tronçon de 30 cm de fibre AsSe est placé bout à bout avec la fibre $InF_3$9,5. Le rapport d'injection entre les deux fibres était de ~25 % et la puissance totale mesurée en sortie est de 20 mW. Avec une puissance crête injectée estimée à ~10 kW, un SC couvrant deux octaves a été mesuré en sortie, qui s'étend de 2 µm à 8 µm. La mesure du spectre a été faite par un spectromètre à transformée de Fourier (iS50 FTIR, Nicolet) après collimation du faisceau par une parabole hors axe. Les mesures spectrales du signal en amont et en aval de la fibre chalcogénure sont

Licence CC BY-NC-ND 3.0

montrées sur la figure III.41. Les performances de cette source en termes de couverture spectrale, de brillance et de cohérence temporelle pourraient faciliter le développement d'applications spectroscopiques, actuellement limitées aux sources de lumière synchrotron.

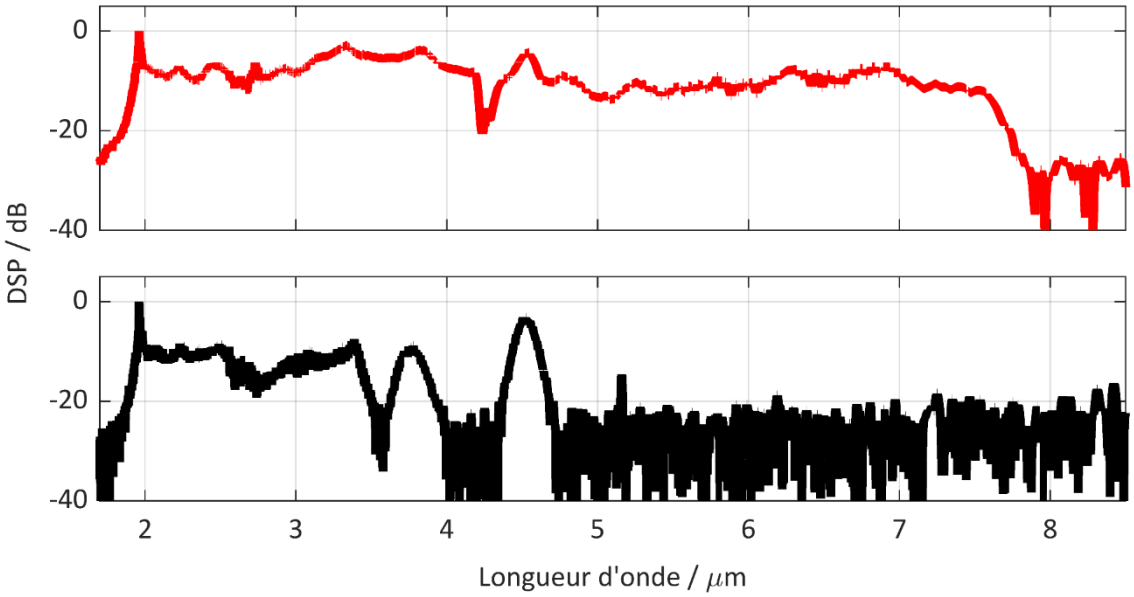


Figure III.41 : Mesure du spectre de la pompe (en noir) et du supercontinuum, respectivement en amont et en aval de la fibre chalcogénure

III.5.1.2. Spectroscopie du gaz méthane CH_4

Une deuxième partie de mes travaux consistaient à appliquer cette source SC dans une mesure spectroscopique du gaz de méthane CH_4. Ces travaux viennent dans le cadre d'une collaboration avec Rémi Bizot, doctorant en Sciences des matériaux au sein du Laboratoire Interdisciplinaire Carnot de Bourgogne.

Le CH_4 possède deux larges bandes d'absorption : une bande d'absorption autour de 3,3 µm et une deuxième bande autour de 7,65 µm comme le montre la figure III.38. La configuration expérimentale de la spectroscopie infrarouge est illustrée sur la figure III.42. La génération du supercontinuum dans la fibre chalcogénure était peu différente de celle présentée précédemment. Cette fois, le soliton à 3 µm en sortie de la fibre ZBLAN26 est filtré par un filtre passe-bande et injecté dans 8 m de fibre $InF_3$9,5. L'injection est faite en espace libre par deux lentilles en chalcogénure revêtues en anti-réflexion E avec des distances focales de 5 mm et 3 mm. Le rendement d'injection était de plus de 40 %. Une puissance totale de 21 mW est mesurée en sortie de la fibre InF_3. La figure III.43(a) montre l'autodécalage du soliton à ~4,35 µm dans cette dernière. Il se retrouve dans la bande d'absorption du CO_2. Sa largeur spectrale à mi-hauteur estimée, avec une interpolation par une sécante hyperbolique, est de $\Delta\lambda$ = 110 nm. Par conséquent, sa durée temporelle en limite de Fourier est de 180 fs. Sa puissance estimée est de plus de 8,5 mW soit une puissance crête de > 40 kW.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

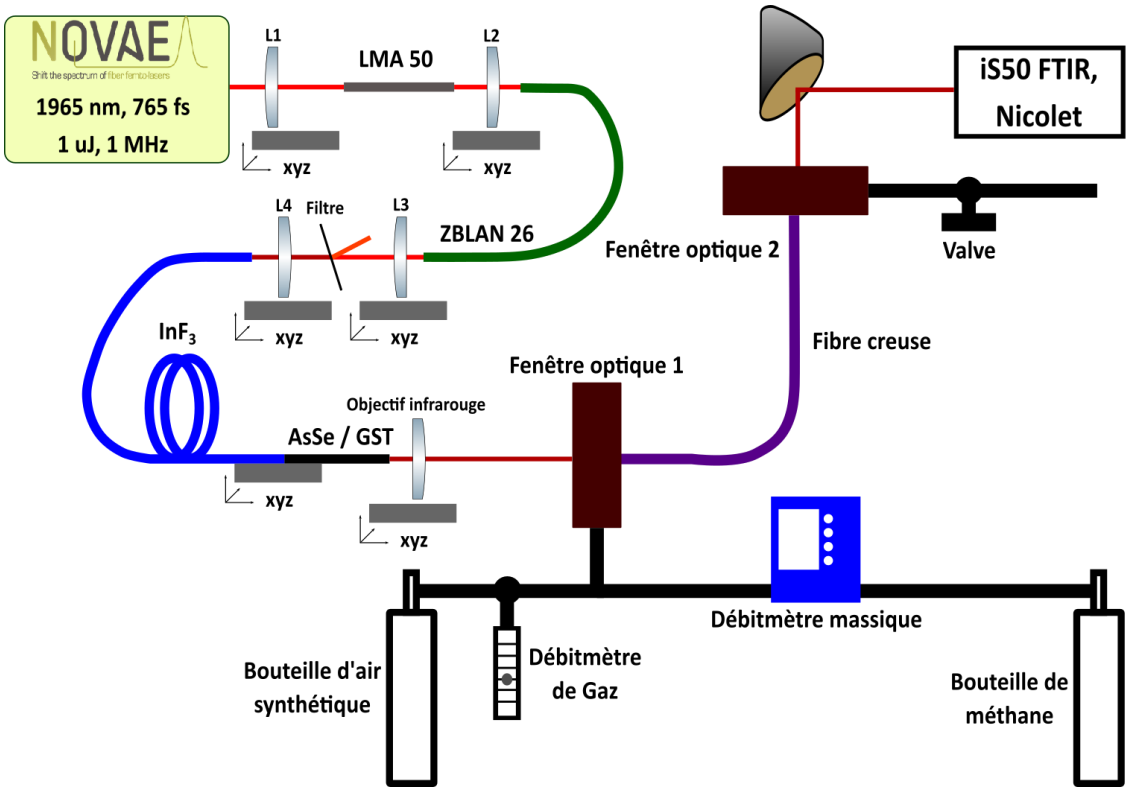


Figure III.42 : Montage expérimental de la spectroscopie infrarouge

Un tronçon de 8 cm de fibre AsSe est rabouté à la fibre InF_3. Le rapport d'injection était de 25 % avec une puissance totale mesurée de 5,2 mW. Le signal SC de sortie est collimaté vers la caméra thermique et le kit de spectroscopie par un objectif en Séléniure de Zinc ZnSe avec une distance focale de 6 mm. Le signal en sortie de la cellule de spectroscopie est collimaté avec un miroir parabolique hors axe en argent vers le spectromètre à transformée de Fourier (iS50 FTIR, Nicolet). Les mesures spectrales durant nos expériences sont faites avec une résolution de 4 cm^{-1}. La cellule à gaz, vendue par la société Guiding Photonics, comprend deux ensembles et une fibre creuse. Chaque ensemble se compose d'une fenêtre optique, un connecteur de fibre et un port de gaz. La cellule est reliée à deux bouteilles de gaz, l'une d'air synthétique (80%N 20%O_2), et l'autre d'un mélange d'air synthétique et de 2250 ppm de CH_4. L'air synthétique est utilisé pour purger la fibre creuse et les cellules à gaz de l'air atmosphérique. Le débit de l'air synthétique dans la cellule est réglé par un débitmètre de gaz. Le débit choisi durant les mesures est de 5L/min. La bouteille de mélange est utilisée pour adapter la concentration en CH_4 dans la fibre creuse. Le SC référence mesuré à la sortie de l'ensemble de la fibre AsSe et du kit de spectroscopie, lorsque la cellule est remplie d'air synthétique avec un débit de 5L/min, est représenté avec la courbe bleue sur la figure III. 43(a).

Licence CC BY-NC-ND 3.0

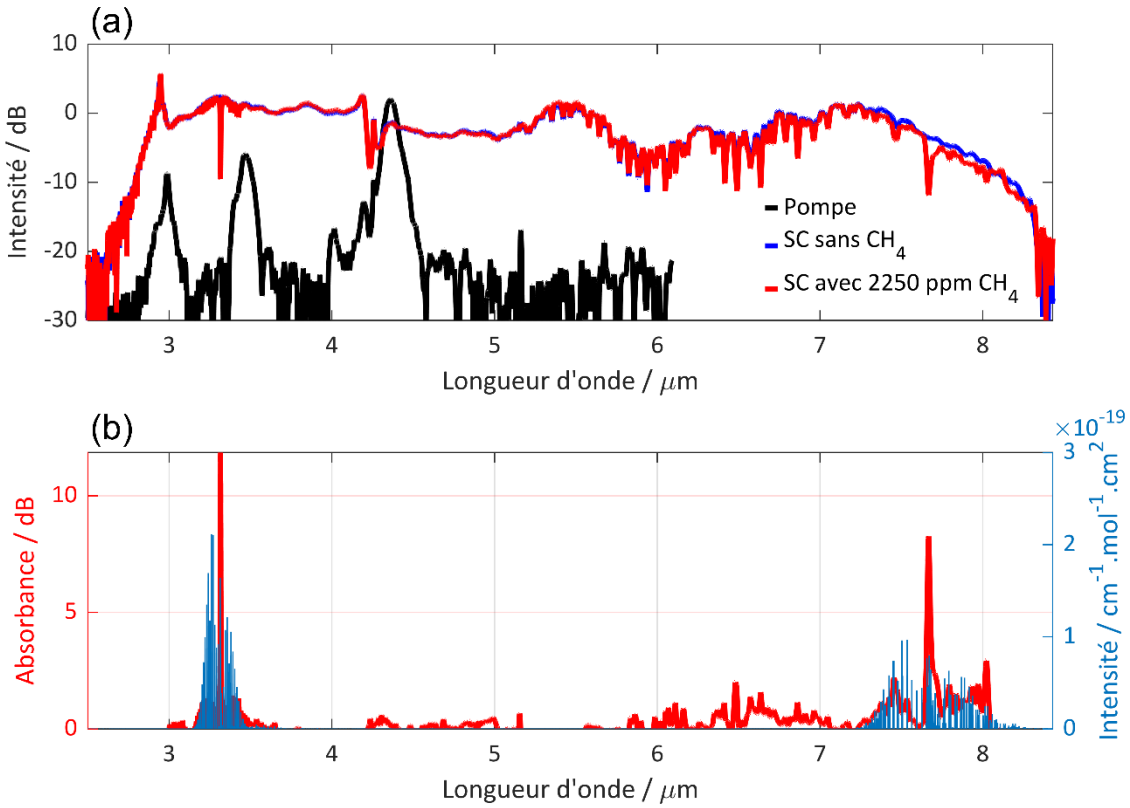


Figure III.43 : (a) Mesure du spectre de la pompe (en noir), du SC en sortie de la cellule purgée à l'air synthétique (en bleu) et du SC avec 2250 ppm de CH_4 (en rouge). **(b)** Comparaison entre l'absorbance du CH_4 mesurée (en rouge) et les lignes d'absorption tirées de la base de données HITRAN (en bleu ciel)

Le spectre de SC couvre la fenêtre spectrale de 2,5-8,5 µm. On peut ainsi voir les raies d'absorption des molécules de CO_2 autour de 4,2-4,3 µm. Au départ, j'ai injecté le gaz CH_4 uniquement dans la cellule. La bouteille de gaz contenait 2250 ppm de CH_4. La courbe rouge sur la figure III. 43(a) présente le SC mesurée durant un flux continu de 200 mL/min de CH_4. Le débit du méthane est réglé par un débitmètre massique de type **MASS-STREAM**. La courbe montre des raies d'absorption du CH_4 autour de 3,3 µm et 7,65 µm. J'ai tracé ensuite l'absorbance dans la fibre en utilisant la formule III.18 et j'ai comparé les résultats avec les raies d'absorption tirés de la base de données HITRAN. La figure III.43(b) montre la bonne correspondance des résultats obtenus avec ceux de la base de données HITRAN.

Afin de pousser davantage l'analyse spectroscopique, j'ai étudié l'absorption du gaz autour de 7,6 µm pour plusieurs valeurs de concentration. Une étude semblable a été déjà faite par Arnaud Lemière *et al.* pour les raies d'absorption autour de 3,3 µm [160]. La série de mesures spectroscopiques a été faite comme suit : la cellule est purgée en continu avec un flux d'air synthétique de 5L/min. Le flux de CH_4 est réglé par le débitmètre massique. Le flux de CH_4 maximum autorisé par l'appareil était de 500 mL/min. Pour chaque mesure, on choisit une valeur du flux de CH_4 et on le laisse se mélanger avec le flux d'air synthétique. Après un temps d'attente de quelques minutes, on lance la mesure spectrale. Les flux de CH_4 analysés sont : 500, 390, 260 et 130 mL/min. Pour calculer la concentration du CH_4 contenue dans le flux d'air, il suffit de faire le calcul suivant : pour un flux de gaz CH_4 de 500 mL/min, le flux d'air est 10 fois supérieur. Cela veut dire que le nombre de molécules CH_4 circulant dans la cellule est 10 fois inférieur au nombre de molécules d'air. Sachant que la bouteille de CH_4 contenait 2250 ppm, cela nous donne une concentration de 225 ppm dans la cellule. Or, selon le

Licence CC BY-NC-ND 3.0

fabricant du débitmètre massique, l'appareil est calibré à l'air. Si d'autres gaz ou mélanges de gaz sont utilisés, un facteur de conversion doit être appliqué. Par exemple, le facteur pour le dioxyde de carbone est de 0,86, celui du méthane 0,77, etc. Dans ce cas la concentration réelle du CH_4 passe de 225 ppm à 173 ppm. La figure III.44 montre les différentes courbes d'absorption pour diverses concentrations en CH_4. Les courbes sont normalisées par rapport au spectre de référence.

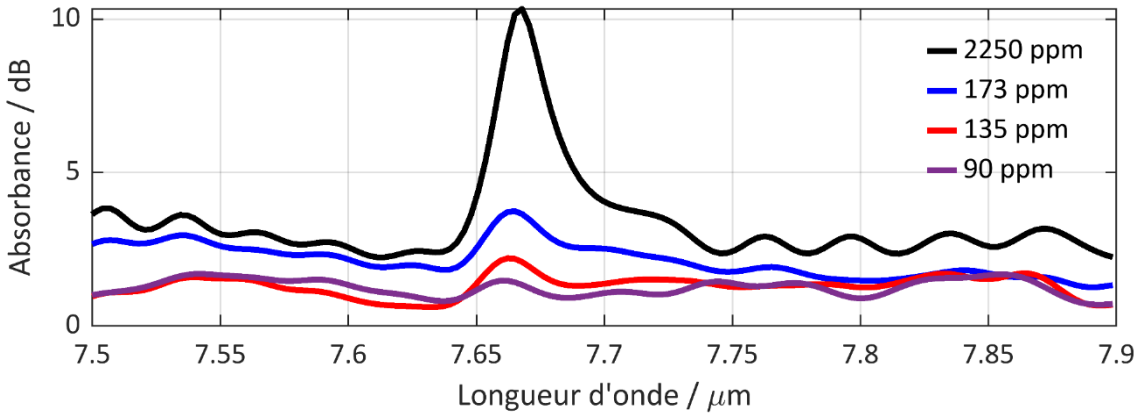


Figure III.44 : Évolution de l'absorbance en fonction de la concentration du CH_4 dans la cellule

La concentration minimale qu'on arrive à détecter avec notre dispositif est de 90 ppm. Cela vient essentiellement de la position du pic d'absorption situé au bord du SC. En utilisant un supercontinuum plus intense et plus large, on arrivera à détecter des concentrations plus faibles. On sait que le méthane, tout comme le CO_2, est responsable du réchauffement climatique. Il est alors indispensable de l'identifier et de mesurer sa concentration précisément. Aujourd'hui la concentration en CH_4 atmosphérique est de l'ordre de 1908 ppb, soit une concentration 45 fois inférieure de ce qu'on arrive à détecter actuellement. Ce travail était une première expérience de spectroscopie moléculaire dans notre équipe. Des améliorations du système sont envisagées afin d'augmenter le rapport signal à bruit, l'augmentation de la puissance moyenne et la génération de SC plus larges spectralement.

III.5.2. Compression temporelle

Une autre application de nos sources infrarouges consiste à comprimer temporellement l'impulsion émise à 3 µm. Au vu de la Figure III.31, la dispersion anormale des fibres ZBLAN autour de 3 µm, et la faible valeur de l'aire effective de la fibre ZBLAN7,5 font qu'il doit être possible d'exciter un soliton d'ordre élevé dans cette fibre à partir du soliton issu de la fibre ZBLAN26 (86 fs, 50 nJ). Dans ce régime multi-solitonique, un choix judicieux de la longueur de la fibre doit conduire à une compression multi-solitonique de l'impulsion. Le principe de fonctionnement est semblable à celui présenté récemment par Huang *et al* [73]. Ils ont réussi à compresser temporellement une impulsion de 82 fs avec une énergie de 30 nJ à 2,8 µm dans 9 cm de fibre ZBLAN de 6,5 µm de diamètre de cœur. Ils ont mesuré une impulsion de 15,9 fs avec une énergie de 11 nJ. La puissance crête est de l'ordre de 500 kW. C'est l'état de l'art en termes de durée d'impulsion et d'énergie d'une source à fibre optique à cette longueur d'onde. Durant mes travaux, le soliton à 3 µm a été filtré et injecté dans un tronçon de 4 cm de fibre ZBLAN7,5 par une lentille de distance focale égale à 3 mm. La mesure SHG-FROG du soliton en sortie est montrée sur la figure ci-dessous :

Licence CC BY-NC-ND 3.0

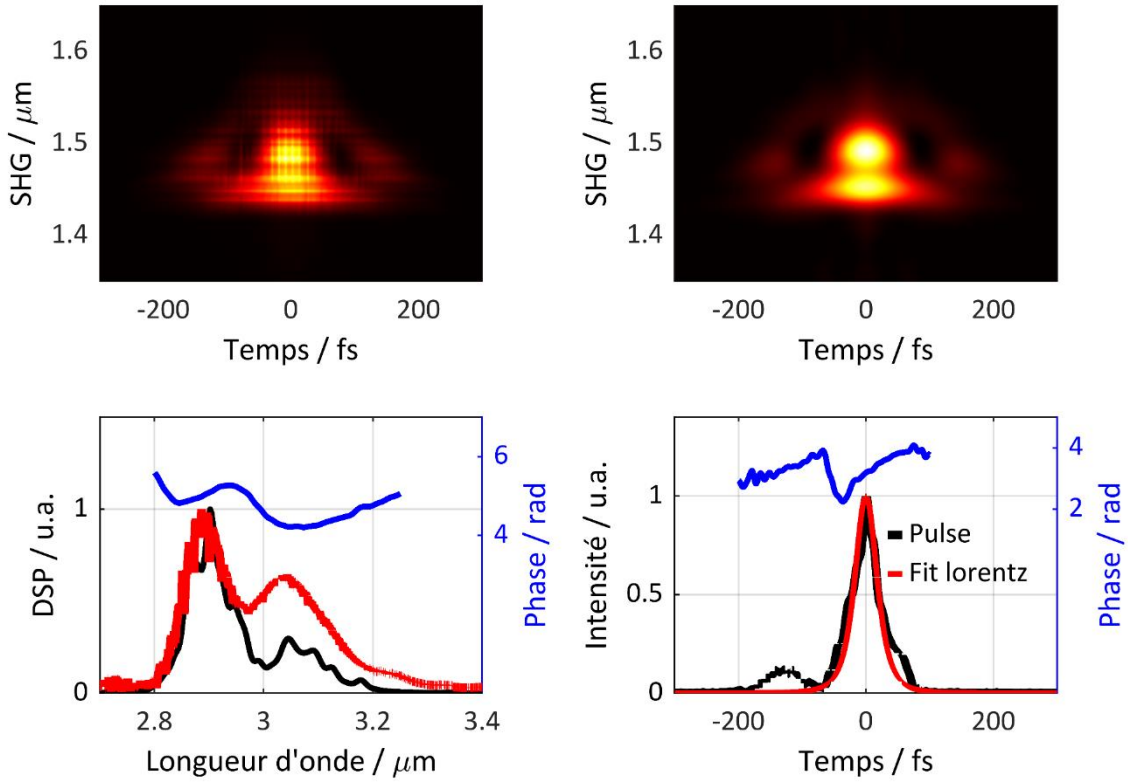


Figure III.45 : Mesure temporelle par SHG-FROG de l'impulsion compressée à 3 µm

Avec une erreur de 0,4 %, la mesure temporelle de l'impulsion est de 41 fs, ce qui indique que cette impulsion ne contient que 4 cycles optiques. La puissance totale est de 17 mW. L'énergie contenue dans le lobe principal de l'impulsion après un fit par une forme lorentzienne est estimée à 15 nJ (90 % de l'énergie contenue dans le lobe principal). Nous déduisons ainsi que la puissance crête de cette impulsion dépasse 350 kW à 3 µm. Comme nous l'avons vu, la longueur de compression optimale par auto-compression multi-solitonique correspond à la longueur de fission de l'impulsion. Ici, la longueur de fission de notre impulsion avec cette quantité d'énergie est de l'ordre de ~2 cm. Pour des raisons mécaniques liées à la fragilité des fibres optiques en verre fluoré, la manipulation de longueurs très courtes est assez délicate. Mais cela nous amène à penser que prochainement de nouveaux travaux pourraient être approfondis afin de raffiner ces mesures et compresser davantage ces impulsions dans l'objectif d'atteindre des niveaux de puissances plus élevées et des durées de l'ordre de 2 cycles.

III.6. Conclusion

Durant ce chapitre j'ai abordé le régime solitonique dans les fibres optiques qui se présente comme une approche intéressante pour la génération d'impulsions sub-100 fs dans l'infrarouge moyen. L'auto-décalage Raman des solitons est une solution pour concevoir une source laser accordable en longueur d'onde couvrant des bandes spectrales inaccessibles par une émission directe par les terres rares. La fission multi-solitonique permet la génération d'impulsions femtosecondes à partir de sources sub-ps à haute énergie.

Les progrès au niveau des développements des fibres infrarouges ont abouti aujourd'hui à commercialiser des fibres optiques très prometteuses pour ce genre d'applications. Les fibres fluorées, ZBLAN et InF_3, fabriquées et commercialisées par la société *Le Verre Fluoré* se

Licence CC BY-NC-ND 3.0

présentent comme de bons candidats dans le moyen infrarouge. L'état de l'art des sources SSFS montre que, durant ces dernières années, des résultats prometteurs exploitant ces fibres ont été publiés. Avec des pertes relativement faibles (< 30 dB/km) dans la bande spectrale [2-4] µm, la grande surface effective et le faible indice non linéaire du matériau, les fibres ZBLAN sont devenues la plateforme idéale pour la génération d'impulsions courtes et à haute énergie dans le MIR. Des sources délivrant des impulsions de plus de 200 kW crête à 3,4 µm ont été déjà publiés avant le début de ma thèse.

L'état de l'art des sources à décalage solitonique et des fibres fluorées a fait porter notre intention sur l'exploitation de la source laser CPA fournie par la société NOVAE (1,97 µm, 765 fs, 1 µJ, 1 MHz) pour monter une source SSFS dans le MIR. Inspiré des travaux menés précédemment dans notre équipe, et partant des modélisations numériques réalisées, l'exploitation des fibres en silice à large surface modale nous a permis de générer des impulsions MW crête à 2,2 µm. Cela a rendu possible le pompage des fibres ZBLAN par une source femtoseconde de haute énergie. Par conséquent, une impulsion de 500 kW crête avec une durée temporelle de 86 fs à 3 µm a été générée. Ces résultats ont été publiés dans *Optics Letters* [161] et surclassent d'un facteur 10 les résultats de SSFS présentés dans la littérature jusqu'à présent. La bonne maitrise des fibres ZBLAN et InF_3 ont conduit à plusieurs autres résultats expérimentaux. La transparence plus étendue des fibres en indium fluoré avec des pertes < 20 dB/km dans la bande spectrale [2-4] µm a permis de décaler davantage les solitons plus loin en longueur d'onde. Des solitons uniques sub-200 fs et avec plus de 8 nJ ont été générés autour de 4 µm, 4,5 µm et même jusqu'au 4,65 µm comme le montre la figure III.46. Ces résultats ont été présentés durant une conférence internationale et seront publiés prochainement.

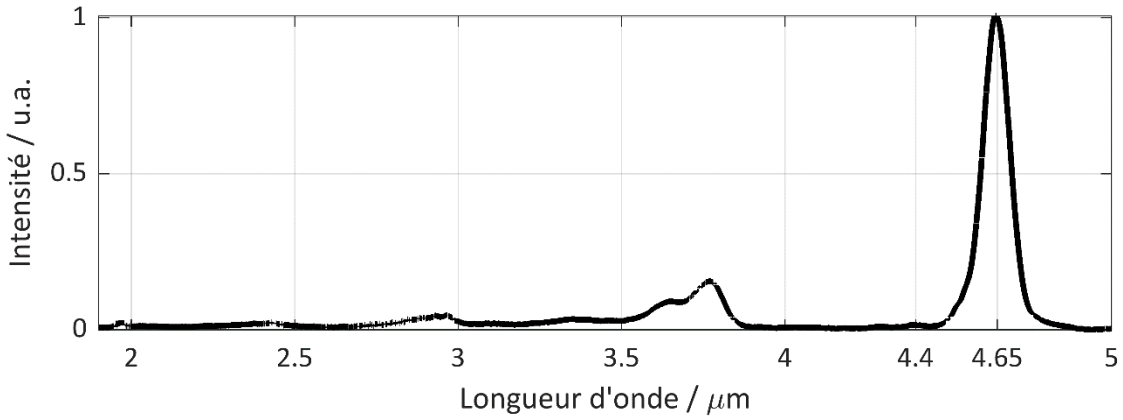


Figure III.46 : Soliton décalé à 4,65 µm

La suite de mes travaux consistait à me servir de ces sources infrarouges dans quelques applications. Une première application concerne la compression temporelle de la source 3 µm dans une fibre de plus petit cœur afin d'atteindre le régime *few-cycle*. L'impulsion de 86 fs au départ a été compressée temporellement dans un petit tronçon de fibre ZBLAN à 41 fs, soit 4 cycles optiques, avec une puissance crête de 350 kW. Il s'agit de la première tentative de ce genre d'expériences dans notre équipe dans le moyen infrarouge. Ces résultats sont relativement proches de l'état de l'art publié par l'équipe P. St. J. Russell à l'Institut Max Planck for the Science of Light à Erlangen.

Une deuxième application portait sur la génération de supercontinuum dans des fibres microstructurées en chalcogénure. Ces fibres optiques, beaucoup plus non linéaires que les

Licence CC BY-NC-ND 3.0

fibres en silice ou en verre fluoré, sont les candidats idéaux pour la génération de SC étendue dans le MIR. La transparence de la fibre que j'ai utilisée s'étendait jusqu'à 9 µm avec des pertes inférieures à 0,5 dB/m entre 2,5 et 9 µm. L'exaltation de la nonlinéarité de cette fibre par la source solitonique à 4,5 µm, légèrement inférieure à la longueur d'onde de dispersion nulle ZDW = 4,8 µm, a permis de produire un SC deux octaves de 2 à 8 µm avec 20 mW de puissance moyenne. Le spectre étendu du SC qui couvre les raies d'absorption de plusieurs gaz atmosphériques a permis de réaliser une seconde application des sources solitoniques au travers d'une étude spectroscopique. Ce travail a été réalisé en collaboration avec des collègues du Laboratoire Interdisciplinaire Carnot Bourgogne. Les mesures spectroscopiques ont permis la détection de plusieurs concentrations du gaz de méthane CH_4 autour de 7,65 µm dans une cellule à gaz à base de fibre creuse. Nous avons pu mesurer des concentrations relativement faibles, de l'ordre de 90 ppm. Ces expériences étaient satisfaisantes pour une première tentative de spectroscopie de gaz dans notre équipe, mais demandent à être affinées.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Conclusion générale

Au début de cette thèse, les recherches sur les sources à impulsions brèves et à haute énergie à base de fibres optiques dans le moyen infrarouge étaient en pleine croissance. Le vaste domaine d'application, comme la spectroscopie infrarouge et la microscopie multi-photon, a motivé plusieurs groupes de recherche à trouver d'autres initiatives pour remplacer les sources optiques paramétriques par des lasers à fibre moins volumineux, moins couteux et plus faciles à manipuler.

Le premier chapitre du manuscrit présente les techniques de synchronisation modale les plus utilisées ainsi que l'état de l'art des cavités à verrouillage de modes dans l'infrarouge moyen. Les techniques passives de verrouillage de modes, plus précisément, le verrouillage passif de modes par la rotation non linéaire de la polarisation est couramment utilisé aujourd'hui dans les cavités fibrées dans l'IR-moyen. Durant ce chapitre, j'ai fait le tour des différentes fibres optiques disponibles actuellement sur le marché et capables de fonctionner dans cette gamme de fréquences. Le développement des moyens de fabrication des fibres optiques, notamment les fibres en verre fluoré dopées aux terres rares, permet aujourd'hui de réaliser des sources lasers ultrarapides à 2,8 µm et 3,5 µm [65-68, 71, 72]. L'émission discrète des terres rares disponibles limite l'utilisation de ces sources à des bandes spectrales étroites. Cela nous a poussés à chercher d'autres approches afin d'élaborer des sources laser accordables en longueur d'onde. C'est dans ce contexte lié au développement de l'optique non linéaire fibrée dans le moyen infrarouge que se situent mes travaux de thèse.

Dans le deuxième chapitre, j'ai abordé la notion des impulsions courtes et leur propagation dans des fibres optiques passives. J'ai montré en détail les représentations temporelle et spectrale du champ électrique d'une impulsion courte. La dispersion chromatique et l'automodulation de phase sont deux effets, l'un linéaire, l'autre non linéaire, exacerbés simultanément dans une fibre optique par la propagation d'impulsions ultrabrèves de forte puissance crête. J'ai d'abord étudié l'impact de chaque effet séparément sur la phase et les profils, spectral et temporel, de l'impulsion. Ceci a permis d'évoquer les limites des moyens de caractérisation par autocorrélation en intensité pour les impulsions brèves asymétriques. Nous avons vu que la corrélation optique résolue en fréquence est une méthode meilleure pour caractériser ce type d'impulsions. Un dispositif de corrélation optique en fréquence par seconde harmonique SHG-FROG a été développé au sein de notre laboratoire. Le traitement numérique des mesures bidimensionnelles issues des mesures expérimentales permet, grâce aux algorithmes de conversion, de caractériser des impulsions asymétriques et courtes temporellement. Durant ces travaux, nous étions en mesure de caractériser des impulsions sub-4 cycles optiques et de connaitre avec plus de précision la puissance contenue dans le lobe central d'une impulsion asymétrique délivrée par un laser commercial.

Le dernier chapitre comprend la majorité de mes travaux expérimentaux. Il commence par une explication détaillée du régime solitonique dans les fibres optiques passives, un régime qui permet, en accordant judicieusement les paramètres optogéométriques des fibres optiques et les paramètres de la source impulsionnelle de pompe, de générer des impulsions de forte puissance crête à des longueurs d'onde exotiques au travers des processus de fission multi-solitonique et d'auto-décalage Raman des solitons. La source utilisée durant ma thèse est une source laser CPA commerciale fournie par la société NOVAE (1,97 µm, 765 fs, 1 µJ, 1 MHz). L'objectif de mes travaux était d'utiliser ce laser de pompe pour élaborer une source sub-100 fs à haute puissance crête dans l'infrarouge moyen au-delà de 3 µm. L'état de l'art

Licence CC BY-NC-ND 3.0

des sources à décalage solitonique a fait porter notre attention sur l'utilisation de fibres en verre fluoré qui se présentent comme d'excellentes plateformes dans l'IR moyen. Fabriquées et vendues par l'entreprise *Le Verre Fluoré* en France, elles étaient au cœur de plusieurs travaux de sources SSFS publiées ces dernières années. Des impulsions sub-200 fs avec une puissance instantanée dépassant 200 kW à 3,6 µm ont été délivrées à partir d'une cavité laser à 2,8 µm suivie d'un étage d'amplification et d'un étage de décalage à fibre fluorée [138]. D'autres travaux remarquables ont été publiés à la fin de ma thèse qui présentent des sources laser à décalage de soliton à des longueurs d'onde exotiques allant jusqu'à 4,8 µm [120, 140].

La haute énergie délivrée par la source laser CPA commerciale fournie par la société NOVAE permet de déclencher les processus nonlinéaires et conduit à la génération de supercontinuum dans les fibres optiques en verre fluorés actuelles. En l'absence de fibres optiques monomodes à large surface modale en verre fluoré, un étage de décalage solitonique intermédiaire dans des fibres optiques en silice a été utilisé (A_{eff} = 877 µm² et A_{eff} = 1463 µm² à 2 µm). Des modélisations numériques ont permis de connaitre les longueurs de fibre les plus adaptées pour obtenir des impulsions courtes à haute énergie dans la limite de la fenêtre de transparence de la silice. **Des impulsions mégawatt d'une centaine de femtosecondes ont été obtenues à 2,2-2,3 µm en sortie de 50-60 cm de fibre**. Cette source à impulsions courtes était idéale pour lancer un nouvel étage de décalage solitonique dans les fibres fluorées. Une fibre ZBLAN non commerciale à large surface modale à 2,2 µm (> 540 µm²) conçue et délivrée par la société *Le Verre Fluoré* a été utilisée durant tous mes travaux. La courte durée d'impulsion ainsi que la grande valeur de la dispersion chromatique et de la surface effective de la fibre en question au-delà de cette longueur d'onde, ont conduit, à travers des modélisations numériques, à un décalage solitonique d'impulsions sub-100 fs à plus de 3 µm dans 3-4 mètres de fibre. La réponse Raman dans ce verre étant plus importante que dans les fibres en silice, le décalage Raman des solitons se fait plus rapidement au bout de 1-1,5 m. Au-delà de cette longueur, face à l'augmentation de la dispersion chromatique et des pertes d'absorption de la fibre, le décalage du soliton ralentit et sa puissance crête diminue. **Les résultats expérimentaux ont montré la génération d'impulsion de 86 fs avec une énergie de 48-55 nJ autour de 3 µm. La puissance instantanée de 0,5 MW classe cette source à l'état de l'art des sources à décalage solitonique à cette longueur d'onde.**

Les sources laser ultracourtes émettant dans l'infrarouge ont aussi un grand intérêt dans la génération de supercontinuum dans les fibres en chalcogénure. Ces fibres fortement non linéaires et transparentes jusqu'à 18 µm sont la plateforme idéale pour émettre des SC étendus dans le MIR. Afin d'élargir davantage le SC, il est toujours préférable d'utiliser des lasers de pompe qui émettent des impulsions à haute puissance crête en régime anormal voire le plus proche possible de la longueur d'onde de dispersion nulle ZDW de la fibre optique. Sachant que le ZDW de la fibre chalcogénure en notre possession est très haut en longueur d'onde, 4,8 µm, j'ai donc cherché à décaler davantage ma source SSFS plus loin dans l'IR moyen. Pour y arriver, je me suis servi des fibres en indium fluoré qui ont une transparence plus large que les fibres en fluorozirconate. Avec des pertes de < 20 dB/km dans la bande spectrale [2-4] µm et de < 0,2 dB/m à 4,5 µm, un décalage solitonique au-delà de 4 µm était envisageable dans quelques mètres de fibre InF_3. **J'ai ensuite montré expérimentalement la génération de solitons sub-200 fs décalés autour de 4 µm et 4,5 µm avec des puissances crêtes de 70 kW et 35 kW dans deux fibres en ZBLAN (7,5/125 µm) et InF_3 (9,5/125 µm) respectivement. À ma connaissance, il s'agit des puissances instantanées les plus élevées à ces longueurs d'onde.**

Licence CC BY-NC-ND 3.0

J'ai présenté en fin du manuscrit quelques applications de mes sources moyen-infrarouge. Une première application a permis la compression temporelle de l'impulsion à 3 µm par auto-compression multi-solitonique dans un tronçon de fibre ZBLAN (7,5/125 µm). **Une impulsion de 4 cycles optiques avec une durée temporelle de 41 fs et une énergie de 15 nJ, soit une puissance instantanée de 350 kW, a été obtenue.** Une deuxième application consistait à utiliser la source décalée à 4,5 µm pour générer **un supercontinuum étendu à plus de 8 µm** dans une fibre optique microstructurée air-chalcogénure. Ce supercontinuum a servi par la suite à **la spectroscopie infrarouge de la molécule du méthane CH_4 à 7,65 µm**. Des travaux effectués en collaboration avec des collègues du Laboratoire Interdisciplinaire Carnot Bourgogne ont permis la détection de **concentrations relativement basses de CH_4 allant jusqu'à 90 ppm.**

Je présente ci-dessous un petit rappel de mes sources à décalage solitonique et de leur positionnement par rapport à l'état de l'art. Ces sources ont conduit à une publication scientifique, deux conférences internationales et une conférence nationale.

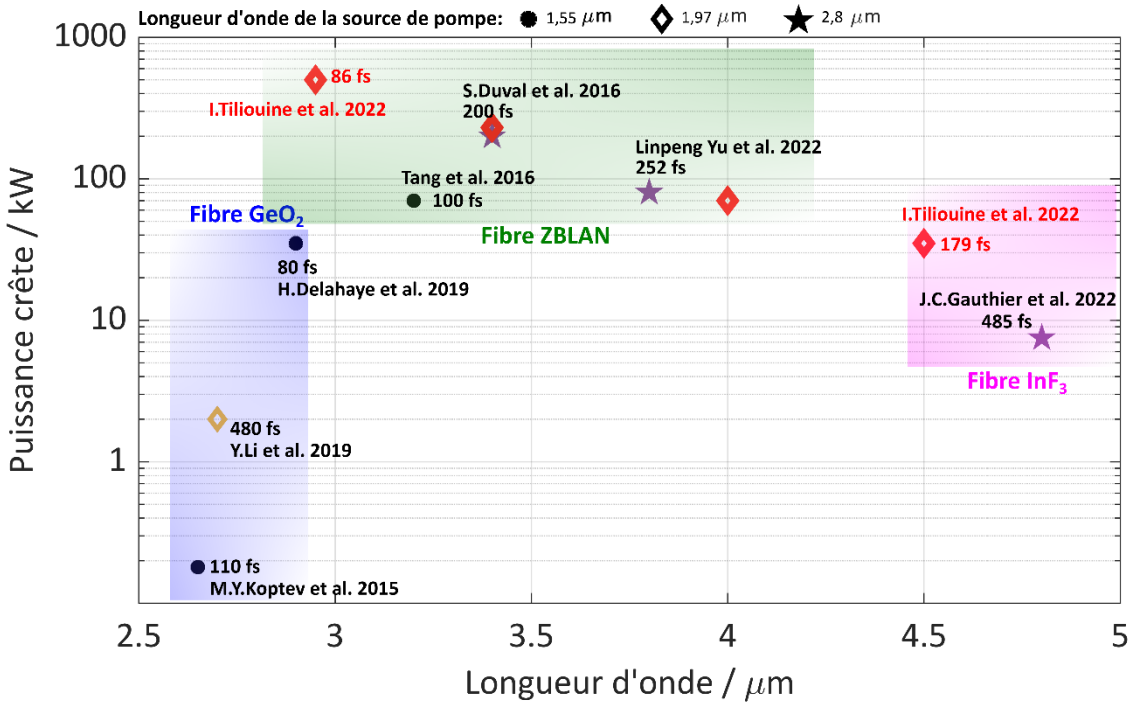


Figure III.47 : État de l'art des sources solitoniques à la fin de ma thèse**. En rouge, ma contribution à l'état de l'art.**

Ces résultats ouvrent plusieurs perspectives dans un futur proche. Une augmentation de la puissance moyenne issue de la source en augmentant la cadence du laser de pompe est envisageable. Ceci augmentera d'un ordre de grandeur la puissance moyenne de la source à 4,5 µm et ainsi la puissance moyenne du SC généré dans la fibre chalcogénure. Cela augmentera le rapport signal à bruit et, par conséquent, une détection de concentrations plus faibles de méthane sera à portée de main. Nous sommes arrivés dernièrement à améliorer le rapport signal à bruit en utilisant une autre source SC dans un autre type de fibre optique. La fibre optique utilisée a été fabriquée par nos collègues du Laboratoire Interdisciplinaire Carnot Bourgogne. **Cela nous a permis de détecter des concentrations plus faibles en méthane CH_4 allant jusqu'à 22 ppm.**

Licence CC BY-NC-ND 3.0

La maitrise de la manipulation des fibres fluorées, notamment leurs clives, nous fait penser à la mise au point d'un système monolithique sans étages mobiles. Cela signifie qu'il faudrait maitriser la soudure des fibres fluorées entre elles ou à des fibres chalcogénures. Ceci semble réaliste au vu de nos travaux préliminaires et de publications récentes [138, 140, 162]. Une augmentation de la longueur d'onde dans un autre étage de décalage peut être aussi une perspective intéressante. Ces longueurs d'onde ne sont pas encore atteintes en ce moment. Des fibres en chalcogénure avec des paramètres adéquats pourraient être exploitées pour ce genre d'application. L'idée serait de décaler le soliton dans le régime anormal de dispersion de fibres chalcogénures, jusqu'à 8-9 µm et proposer ainsi une source intégralement fibrée d'impulsions sub-100 fs de forte puissance crête à ces longueurs d'onde.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Références bibliographiques

1. T. H. Maiman, "Stimulated optical radiation in ruby," Nature **187**, 493–494 (1960). *https://doi.org/10.1038/187493a0*

2. J. Valdmanis and R. Fork, "Design considerations for a femtosecond pulse laser balancing self phase modulation, group velocity dispersion, saturable absorption, and saturable gain," IEEE journal of quantum electronics **22**, 112-118 (1986). *https://doi.org/10.1109/JQE.1986.1072854*

3. R. L. Fork, C. B. Cruz, P. Becker, and C. V. Shank, "Compression of optical pulses to six femtoseconds by using cubic phase compensation," Opt. Lett. **12**, 483-485 (1987). *https://doi.org/10.1364/OL.12.000483*

4. D. H. Sutter, G. Steinmeyer, L. Gallmann, N. Matuschek, F. Morier-Genoud, U. Keller, V. Scheuer, G. Angelow, and T. Tschudi, "Semiconductor saturable-absorber mirror–assisted Kerr-lens mode-locked Ti: sapphire laser producing pulses in the two-cycle regime," Opt. Lett. **24**, 631-633 (1999). *https://doi.org/10.1364/ol.24.000631*

5. F. Kartner, I. Jung, and U. Keller, "Soliton mode-locking with saturable absorbers," IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics **2**, 540-556 (1996). *https://doi.org/10.1109/2944.571754*

6. B. Schenkel, J. Biegert, U. Keller, C. Vozzi, M. Nisoli, G. Sansone, S. Stagira, S. De Silvestri, and O. Svelto, "Generation of 3.8-fs pulses from adaptive compression of a cascaded hollow fiber supercontinuum," Opt. Lett. **28**, 1987-1989 (2003). *https://doi.org/10.1364/OL.28.001987*

7. D. Popa and F. Udrea, "Towards integrated mid-infrared gas sensors," Sensors **19**, 2076 (2019). *https://doi.org/10.3390/s19092076*

8. Z. Chang, P. B. Corkum, and S. R. Leone, "Attosecond optics and technology: progress to date and future prospects," JOSA B **33**, 1081-1097 (2016). *https://doi.org/10.1364/JOSAB.33.001081*

9. Z. Zhang, T. Nakagawa, K. Torizuka, T. Sugaya, and K. Kobayashi, "Gold-reflector-based semiconductor saturable absorber mirror for femtosecond mode-locked Cr4+: YAG lasers," Applied Physics B **70**, S59-S62 (2000). *https://doi.org/10.1007/s003400000328*

10. S. D. D. D. Cafiso, E. Ugolotti, A. Schmidt, V. Petrov, U. Griebner, A. Agnesi, W. B. Cho, B. H. Jung, F. Rotermund, and S. Bae, "Sub-100-fs Cr: YAG laser mode-locked by monolayer graphene saturable absorber," Opt. Lett. **38**, 1745-1747 (2013). *https://doi.org/10.1364/OL.38.001745*

11. L. D. DeLoach, R. H. Page, G. D. Wilke, S. A. Payne, and W. F. Krupke, "Transition metal-doped zinc chalcogenides: spectroscopy and laser demonstration of a new class of gain media," IEEE Journal of Quantum Electronics **32**, 885-895 (1996). *https://doi.org/10.1109/3.502365*

12. C. R. Pollock, N. A. Brilliant, D. Gwin, T. J. Carrig, W. J. Alford, J. Heroux, W. Wang, I. Vurgaftman, and J. Meyer, "Mode locked and Q-switched Cr: ZnSe laser using a semiconductor saturable absorbing mirror (SESAM)," in *Advanced Solid-State Photonics*, (Optica Publishing Group, 2005). *https://doi.org/10.1364/ASSP.2005.252*

13. I. T. Sorokina, E. Sorokin, T. J. Carrig, and K. I. Schaffers, "A SESAM passively mode-locked Cr: ZnS laser," in *Advanced Solid-State Photonics*, (Optica Publishing Group, 2006). *https://doi.org/10.1364/ASSP.2006.TuA4*

14. I. T. Sorokina and E. Sorokin, "Chirped-mirror dispersion controlled femtosecond Cr: ZnSe laser," in *Advanced Solid-State Photonics*, (Optica Publishing Group, 2007). *https://doi.org/10.1364/ASSP.2007.WA7*

15. S. Vasilyev, I. Moskalev, M. Mirov, S. Mirov, and V. Gapontsev, "Three optical cycle mid-IR Kerr-lens mode-locked polycrystalline Cr 2+: ZnS laser," Opt. Lett. **40**, 5054-5057 (2015). *https://doi.org/10.1364/OL.40.005054*

16. M. I. Dzhibladze, Z. Esiashvili, É. S. Teplitskiĭ, S. Isaev, and V. Sagaradze, "Mode locking in a fiber laser," Soviet Journal of Quantum Electronics **13**, 245 (1983). *https://doi.org/10.1070/QE1983v013n02ABEH004112*

17. C. R. Petersen, U. Møller, I. Kubat, B. Zhou, S. Dupont, J. Ramsay, T. Benson, S. Sujecki, N. Abdel-Moneim, and Z. Tang, "Mid-infrared supercontinuum covering the 1.4–13.3 μm molecular fingerprint region using ultra-high NA chalcogenide step-index fibre," Nature Photonics **8**, 830-834 (2014). *https://doi.org/10.1038/nphoton.2014.213*

Licence CC BY-NC-ND 3.0

18. D. D. Hudson, S. Antipov, L. Li, I. Alamgir, T. Hu, M. El Amraoui, Y. Messaddeq, M. Rochette, S. D. Jackson, and A. Fuerbach, "Toward all-fiber supercontinuum spanning the mid-infrared," Optica **4**, 1163-1166 (2017). *https://doi.org/10.1364/OPTICA.4.001163*

19. L. Hargrove, R. L. Fork, and M. Pollack, "Locking of He–Ne laser modes induced by synchronous intracavity modulation," Applied Physics Letters **5**, 4-5 (1964). *https://doi.org/10.1063/1.1754025*

20. M. DiDomenico Jr, J. Geusic, H. Marcos, and R. Smith, "Generation of ultrashort optical pulses by mode locking the YAIG: Nd laser," Applied Physics Letters **8**, 180-183 (1966). *https://doi.org/10.1063/1.1754544*

21. C. J. Koester and E. Snitzer, "Amplification in a fiber laser," Applied optics **3**, 1182-1186 (1964). *https://doi.org/10.1364/AO.3.001182*

22. M. Fermann, M. Andrejco, Y. Silberberg, and M. Stock, "Passive mode locking by using nonlinear polarization evolution in a polarization-maintaining erbium-doped fiber," Opt. Lett. **18**, 894-896 (1993). *https://doi.org/10.1364/OL.18.000894*

23. P. Wigley, P. French, and J. Taylor, "Mode locking of a continuous wave neodymium doped fibre laser with a linear external cavity," Electronics Letters **16**, 1238-1240 (1990). *https://doi.org/10.1049/el:19900798*

24. D. Tang and L. Zhao, "Generation of 47-fs pulses directly from an erbium-doped fiber laser," Opt. Lett. **32**, 41-43 (2007). *https://doi.org/10.1364/OL.32.000041*

25. X. Li, W. Zou, G. Yang, and J. Chen, "Direct generation of 148 nm and 44.6 fs pulses in an Erbium-doped fiber laser," IEEE Photonics Technology Letters **27**, 93-96 (2014). *https://doi.org/10.1109/LPT.2014.2362514*

26. D. Ma, Y. Cai, C. Zhou, W. Zong, L. Chen, and Z. Zhang, "37.4 fs pulse generation in an Er: fiber laser at a 225 MHz repetition rate," Opt. Lett. **35**, 2858-2860 (2010). *https://doi.org/10.1364/OL.35.002858*

27. X. Li, W. Zou, and J. Chen, "34.3 fs pulse generation in an Er-doped fibre laser at 201 MHz repetition rate," Electronics Letters **51**, 351-352 (2015). *https://doi.org/10.1049/el.2014.4251*

28. J. Zhang, Z. Kong, Y. Liu, A. Wang, and Z. Zhang, "Compact 517 MHz soliton mode-locked Er-doped fiber ring laser," Photonics Research **4**, 27-29 (2016). *https://doi.org/10.1364/PRJ.4.000027*

29. L. Nelson, E. Ippen, and H. J. A. p. l. Haus, "Broadly tunable sub-500 fs pulses from an additive-pulse mode-locked thulium-doped fiber ring laser," **67**, 19-21 (1995). *https://doi.org/10.1063/1.115477*

30. Y. Wang, Y. Tang, S. Yan, and J. Xu, "High-power mode-locked 2 μm multimode fiber laser," Laser Physics Letters **15**, 085101 (2018). *http://dx.doi.org/10.1088/1612-202X/aac429*

31. Y. Nomura and T. Fuji, "Sub-50-fs pulse generation from thulium-doped ZBLAN fiber laser oscillator," Opt. Express **22**, 12461-12466 (2014). *https://doi.org/10.1364/OE.22.012461*

32. L. Calvez, "Chalcogenide glasses and glass-ceramics: Transparent materials in the infrared for dual applications," Comptes Rendus Physique **18**, 314-322 (2017). *https://doi.org/10.1016/j.crhy.2017.05.003*

33. E. M. Dianov and V. M. Mashinsky, "Germania-based core optical fibers," Journal of lightwave technology **23**, 3500-3508 (2005). *https://doi.org/10.1109/JLT.2005.855867*

34. Y. Yatsenko and A. Mavritsky, "D-scan measurement of nonlinear refractive index in fibers heavily doped with GeO 2," Opt. Lett. **32**, 3257-3259 (2007). *https://doi.org/10.1364/OL.32.003257*

35. L. Yang, B. Zhang, K. Yin, J. Yao, G. Liu, and J. Hou, "0.6-3.2 μm supercontinuum generation in a step-index germania-core fiber using a 4.4 kW peak-power pump laser," Opt. Express **24**, 12600-12606 (2016). *https://doi.org/10.1364/oe.24.012600*

36. H. Delahaye, G. Granger, J.-T. Gomes, L. Lavoute, D. Gaponov, N. Ducros, and S. Fevrier, "Generation of 35 kW peak power 80 fs pulses at 2.9 μm from a fully fusion-spliced fiber laser," Opt. Lett. **44**, 2318-2321 (2019). *https://doi.org/10.1364/OL.44.002318*

37. J. Stanworth, "Tellurite glasses," Nature **169**, 581-582 (1952). *https://doi.org/10.1038/169581b0*

38. J. Wang, E. Vogel, and E. Snitzer, "Tellurite glass: a new candidate for fiber devices," Optical materials **3**, 187-203 (1994). *https://doi.org/10.1016/0925-3467(94)90004-3*

Licence CC BY-NC-ND 3.0

39. S. Fujino and K. Morinaga, "Material dispersion and its compositional parameter of oxide glasses," Journal of non-crystalline solids **222**, 316-320 (1997). *https://doi.org/10.1016/S0022-3093(97)90130-7*

40. G. Ghosh, "Sellmeier coefficients and chromatic dispersions for some tellurite glasses," Journal of the American Ceramic Society **78**, 2828-2830 (1995). *https://doi.org/10.1111/j.1151-2916.1995.tb08060.x*

41. B. Kibler, A. Lemière, J. T. Gomes, D. Gaponov, L. Lavoute, F. Désévédavy, and F. Smektala, "Octave-spanning coherent supercontinuum generation in a step-index tellurite fiber and towards few-cycle pulse compression at 2 μm," Optics Communications **488**, 126853 (2021). *https://doi.org/10.1016/j.optcom.2021.126853*

42. T. S. Saini, T. H. Tuan, L. Xing, N. P. T. Hoa, T. Suzuki, and Y. Ohishi, "Coherent mid-infrared supercontinuum spectrum using a step-index tellurite fiber with all-normal dispersion," Applied Physics Express **11**, 102501 (2018). *https://doi.org/10.7567/APEX.11.102501*

43. M. Y. Koptev, E. Anashkina, A. Andrianov, V. Dorofeev, A. Kosolapov, S. Muravyev, and A. Kim, "Widely tunable mid-infrared fiber laser source based on soliton self-frequency shift in microstructured tellurite fiber," Opt. Lett. **40**, 4094-4097 (2015). *https://doi.org/10.1364/OL.40.004094*

44. T. M. Monro and H. Ebendorff-Heidepriem, "Progress in microstructured optical fibers," Annu. Rev. Mater. Res. **36**, 467-495 (2006). *https://doi.org/10.1146/annurev.matsci.36.111904.135316*

45. G. Tao, H. Ebendorff-Heidepriem, A. M. Stolyarov, S. Danto, J. V. Badding, Y. Fink, J. Ballato, A. F. Abouraddy, and Photonics, "Infrared fibers," Advances in Optics **7**, 379-458 (2015). *https://doi.org/10.1364/AOP.7.000379*

46. V. Shiryaev and M. Churbanov, "Trends and prospects for development of chalcogenide fibers for mid-infrared transmission," Journal of Non-Crystalline Solids **377**, 225-230 (2013). *https://doi.org/10.1016/j.jnoncrysol.2012.12.048*

47. R. E. Slusher, G. Lenz, J. Hodelin, J. Sanghera, L. B. Shaw, and I. D. Aggarwal, "Large Raman gain and nonlinear phase shifts in high-purity As 2 Se 3 chalcogenide fibers," JOSA B **21**, 1146-1155 (2004). *https://doi.org/10.1364/JOSAB.21.001146*

48. IRFlex, "IRF-Se Series Chalcogenide Long-wave Infrared (LWIR) Fiber (1.5 to 10μm)," *https://irflex.com/products/irf-se-series/*

49. SelenOptics, "AsSe single mode OPTICAL FIbers," *https://www.selenoptics.com/optical-fiber/*

50. F. Théberge, N. Thiré, J.-F. Daigle, P. Mathieu, B. E. Schmidt, Y. Messaddeq, R. Vallée, and F. Légaré, "Multioctave infrared supercontinuum generation in large-core As2S3 fibers," Opt. Lett. **39**, 6474-6477 (2014). *https://doi.org/10.1364/OL.39.006474*

51. B. Zhang, W. Guo, Y. Yu, C. Zhai, S. Qi, A. Yang, L. Li, Z. Yang, R. Wang, and D. Tang, "Low loss, high NA chalcogenide glass fibers for broadband mid-infrared supercontinuum generation," Journal of the American Ceramic Society **98**, 1389-1392 (2015). *https://doi.org/10.1111/jace.13574*

52. Z. Zhao, X. Wang, S. Dai, Z. Pan, S. Liu, L. Sun, P. Zhang, Z. Liu, Q. Nie, and X. Shen, "1.5–14 μm midinfrared supercontinuum generation in a low-loss Te-based chalcogenide step-index fiber," Opt. Lett. **41**, 5222-5225 (2016). *https://doi.org/10.1364/OL.41.005222*

53. Z. Zhao, B. Wu, X. Wang, Z. Pan, Z. Liu, P. Zhang, X. Shen, Q. Nie, S. Dai, and R. Wang, "Mid-infrared supercontinuum covering 2.0–16 μm in a low-loss telluride single-mode fiber," Laser Photonics Reviews **11**, 1700005 (2017). *https://doi.org/10.1002/lpor.201700005*

54. L. Sojka, Z. Tang, D. Jayasuriya, M. Shen, J. Nunes, D. Furniss, M. Farries, T. M. Benson, A. B. Seddon, and S. J. A. S. Sujecki, "Milliwatt-level spontaneous emission across the 3.5–8 μm spectral region from Pr3+ doped selenide chalcogenide fiber pumped with a laser diode," **10**, 539 (2020). *https://doi.org/10.3390/app10020539*

55. M. F. Churbanov, B. I. Denker, B. I. Galagan, V. V. Koltashev, V. G. Plotnichenko, G. E. Snopatin, M. V. Sukhanov, S. E. Sverchkov, and A. P. J. J. o. N.-C. S. Velmuzhov, "Laser potential of Pr3+ doped chalcogenide glass in 5-6 μm spectral range," **559**, 120592 (2021). *https://doi.org/10.1016/j.jnoncrysol.2020.120592*

56. T. Cheng, Y. Kanou, K. Asano, D. Deng, M. Liao, M. Matsumoto, T. Misumi, T. Suzuki, and Y. Ohishi, "Soliton self-frequency shift and dispersive wave in a hybrid four-hole AsSe2-As2S5

Licence CC BY-NC-ND 3.0

microstructured optical fiber," Applied Physics Letters **104**, 121911 (2014). *https://doi.org/10.1063/1.4869756*

57. X. Yan, C. Kito, S. Miyoshi, M. Liao, T. Suzuki, and Y. Ohishi, "Raman transient response and enhanced soliton self-frequency shift in ZBLAN fiber," JOSA B **29**, 238-243 (2012). *https://doi.org/10.1364/JOSAB.29.000238*

58. I. Basaldua, R. Kuis, P. Burkins, Z. Jiang, and A. M. Johnson, "Measurements of the nonlinear refractive index (n2) for indium fluoride (InF3) bulk glass and fiber," in *Latin America Optics and Photonics Conference*, (Optical Society of America, 2018). *https://doi.org/10.1364/LAOP.2018.Th3D.7*

59. Z. Eslami, P. Ryczkowski, C. Amiot, L. Salmela, and G. Genty, "High-power short-wavelength infrared supercontinuum generation in multimode fluoride fiber," JOSA B **36**, A72-A78 (2019). *https://doi.org/10.1364/JOSAB.36.000A72*

60. F. Jobin, P. Paradis, Y. O. Aydin, T. Boilard, V. Fortin, J.-C. Gauthier, M. Lemieux-Tanguay, S. Magnan-Saucier, L.-C. Michaud, and S. Mondor, "Recent developments in lanthanide-doped mid-infrared fluoride fiber lasers," Opt. Express **30**, 8615-8640 (2022). *https://doi.org/10.1364/oe.450929*

61. M. Brierley and P. France, "Continuous wave lasing at 2.7 μm in an erbium-doped fluorozirconate fibre," Electronics Letters **24**, 935-937 (1988). *https://doi.org/10.1049/el:19880637*

62. L. Wetenkamp, "Efficient CW operation of a 2.9 μm Ho3+-doped fluorozirconate fibre laser pumped at 640 nm," Electronics Letters **26**, 883-884 (1990). *https://doi.org/10.1049/el:19900577*

63. H. Többen, "Cw lasing at 3.45 μm in erbium-doped fluorozirconate fibres," Frequenz **45**, 250-252 (1991). *https://doi.org/10.1515/FREQ.1991.45.9-10.250*

64. J. Schneide, C. Carbonnier, and U. B. Unrau, "Characterization of a Ho 3+-doped fluoride fiber laser with a 3.9-μm emission wavelength," Applied Optics **36**, 8595-8600 (1997). *https://doi.org/10.1364/AO.36.008595*

65. S. Duval, M. Bernier, V. Fortin, J. Genest, M. Piché, and R. Vallée, "Femtosecond fiber lasers reach the mid-infrared," Optica **2**, 623-626 (2015). *https://doi.org/10.1364/OPTICA.2.000623*

66. T. Hu, S. D. Jackson, and D. D. Hudson, "Ultrafast pulses from a mid-infrared fiber laser," Opt. Lett. **40**, 4226-4228 (2015). *https://doi.org/10.1364/OL.40.004226*

67. S. Antipov, D. D. Hudson, A. Fuerbach, and S. D. Jackson, "High-power mid-infrared femtosecond fiber laser in the water vapor transmission window," Optica **3**, 1373-1376 (2016). *https://doi.org/10.1364/OPTICA.3.001373*

68. H. Gu, Z. Qin, G. Xie, T. Hai, P. Yuan, J. Ma, and L. Qian, "Generation of 131 fs mode-locked pulses from 2.8 μm Er:ZBLAN fiber laser," Chin. Opt. Lett. **18**, 031402 (2020). *http://dx.doi.org/10.3788/COL202018.031402*

69. Z. Qin, T. Hai, G. Xie, J. Ma, P. Yuan, L. Qian, L. Li, L. Zhao, and D. Shen, "Black phosphorus Q-switched and mode-locked mid-infrared Er:ZBLAN fiber laser at 3.5 μm wavelength," Opt. Express **26**, 8224-8231 (2018). *https://doi.org/10.1364/OE.26.008224*

70. Z. Qin, X. Chai, G. Xie, Z. Xu, Y. Zhou, Q. Wu, J. Li, Z. Wang, Y. Weng, T. Hai, P. Yuan, J. Ma, J. Chen, and L. Qian, "Semiconductor saturable absorber mirror in the 3–5 μm mid-infrared region," Opt. Lett. **47**, 890-893 (2022). *https://doi.org/10.1364/OL.444485*

71. Y. Wang, F. Jobin, S. Duval, V. Fortin, P. Laporta, M. Bernier, G. Galzerano, and R. Vallée, "Ultrafast Dy3+:fluoride fiber laser beyond 3 μm," Opt. Lett. **44**, 395-398 (2019). *https://doi.org/10.1364/OL.44.000395*

72. N. Bawden, O. Henderson-Sapir, S. D. Jackson, and D. J. Ottaway, "Ultrafast 3.5 μm fiber laser," Opt. Lett. **46**, 1636-1639 (2021). *https://doi.org/10.1364/OL.418162*

73. J. Huang, M. Pang, X. Jiang, F. Köttig, D. Schade, W. He, M. Butryn, and P. S. J. Russell, "Sub-two-cycle octave-spanning mid-infrared fiber laser," Optica **7**, 574-579 (2020). *https://doi.org/10.1364/OPTICA.389143*

74. Y. Zhou, Z. Qin, P. Yuan, J. Ma, and G. Xie, "2-MW peak-power pulses from a dispersion-managed fluoride fiber amplifier at 2.8 μm," Opt. Lett. **46**, 5104-5107 (2021). *https://doi.org/10.1364/ol.440029*

Licence CC BY-NC-ND 3.0

75. L. Yu, J. Liang, S. Huang, J. Wang, J. Wang, X. Luo, P. Yan, F. Dong, X. Liu, and Q. Lue, "Average-power (4.13 W) 59 fs mid-infrared pulses from a fluoride fiber laser system," Opt. Lett. **47**, 2562-2565 (2022). *https://doi.org/10.1364/ol.457438*

76. Z. Qin, G. Xie, C. Zhao, S. Wen, P. Yuan, and L. Qian, "Mid-infrared mode-locked pulse generation with multilayer black phosphorus as saturable absorber," Opt. Lett. **41**, 56-59 (2016). *https://doi.org/10.1364/OL.41.000056*

77. G. Zhu, X. Zhu, F. Wang, S. Xu, Y. Li, X. Guo, K. Balakrishnan, R. Norwood, and N. Peyghambarian, "Graphene Mode-Locked Fiber Laser at 2.8 μm," IEEE Photonics Technology Letters **28**, 7-10 (2015). *https://doi.org/10.1109/LPT.2015.2478836*

78. C. Guo, J. Wei, P. Yan, R. Luo, S. Ruan, J. Wang, B. Guo, P. Hua, and Q. Lue, "Mode-locked fiber laser at 2.8 μm using a chemical-vapor-deposited WSe2 saturable absorber mirror," Applied Physics Express **13**, 012013 (2019). *http://dx.doi.org/10.7567/1882-0786/ab6031*

79. R. W. Boyd, *Nonlinear optics* (Academic press, 2020).

80. F. DeMartini, C. Townes, T. Gustafson, and P. Kelley, "Self-steepening of light pulses," Physical Review **164**, 312 (1967). *https://doi.org/10.1103/PhysRev.164.312*

81. J. M. Dudley and J. R. Taylor, *Supercontinuum generation in optical fibers* (Cambridge University Press, 2010). *https://doi.org/10.1017/CBO9780511750465*

82. G. P. Agrawal and Photonics, "Nonlinear fiber optics third edition," JOSA B **2**(2001). *https://doi.org/10.1007/3-540-46629-0_9*

83. A. Wirth, M. T. Hassan, I. Grguraš, J. Gagnon, A. Moulet, T. T. Luu, S. Pabst, R. Santra, Z. Alahmed, and A. Azzeer, "Synthesized light transients," Science **334**, 195-200 (2011). *https://doi.org/10.1126/science.1210268*

84. W. Li, Z. Gan, L. Yu, C. Wang, Y. Liu, Z. Guo, L. Xu, M. Xu, Y. Hang, and Y. Xu, "339 J high-energy Ti: sapphire chirped-pulse amplifier for 10 PW laser facility," Opt. Lett. **43**, 5681-5684 (2018). *https://doi.org/10.1364/OL.43.005681*

85. L. Taylor and Propagation, "The phase retrieval problem," IEEE Transactions on Antennas **29**, 386-391 (1981). *https://doi.org/10.1109/TAP.1981.1142559*

86. J.-C. M. Diels, J. J. Fontaine, I. C. McMichael, and F. Simoni, "Control and measurement of ultrashort pulse shapes (in amplitude and phase) with femtosecond accuracy," Applied Optics **24**, 1270-1282 (1985). *https://doi.org/10.1364/AO.24.001270*

87. D. J. Kane and R. Trebino, "Characterization of arbitrary femtosecond pulses using frequency-resolved optical gating," IEEE Journal of Quantum Electronics **29**, 571-579 (1993). *https://doi.org/10.1109/3.199311*

88. R. Trebino, K. DeLong, D. Fittinghoff, J. Sweetser, M. Krumbuegel, B. Richman, and D. Kane, "Mesuring Ultrashort Laser Pulses in the Time-frequency Domain using Frequency-resolved Optical Gating," Review of Scientific Instruments **68**, 3277-3295 (1997). *https://doi.org/10.1063/1.1148286*

89. S. Byrnes, "Frequency-resolved optical gating (FROG) algorithm," *https://fr.mathworks.com/matlabcentral/fileexchange/34986-frequency-resolved-optical-gating-frog*

90. R. Trebino and D. J. Kane, "Using phase retrieval to measure the intensity and phase of ultrashort pulses: frequency-resolved optical gating," J. Opt. Soc. Am. A **10**, 1101-1111 (1993). *https://doi.org/10.1364/JOSAA.10.001101*

91. K. W. DeLong, D. N. Fittinghoff, R. Trebino, B. Kohler, and K. Wilson, "Pulse retrieval in frequency-resolved optical gating based on the method of generalized projections," Opt. Lett. **19**, 2152-2154 (1994). *https://doi.org/10.1364/OL.19.002152*

92. D. J. Kane, G. Rodriguez, A. J. Taylor, and T. S. Clement, "Simultaneous measurement of two ultrashort laser pulses from a single spectrogram in a single shot," J. Opt. Soc. Am. B **14**, 935-943 (1997). *https://doi.org/10.1364/JOSAB.14.000935*

93. D. J. Kane, "Recent progress toward real-time measurement of ultrashort laser pulses," IEEE Journal of Quantum Electronics **35**, 421-431 (1999). *https://doi.org/10.1109/3.753647*

94. G. Taft and K. DeLong, "Practical Issues, Marginals, Error Checks, and Error Correction," in *Frequency-Resolved Optical Gating: The Measurement of Ultrashort Laser Pulses*, R. Trebino, ed. (Springer US, Boston, MA, 2000), pp. 203-218. *https://doi.org/10.1007/978-1-4615-1181-6_10*

Licence CC BY-NC-ND 3.0

95. K. DeLong, "FROG (Frequency-Resolved Optical Gating) Software," *https://github.com/kenwdelong/frog*

96. P. O'Shea, M. Kimmel, X. Gu, and R. Trebino, "Highly simplified device for ultrashort-pulse measurement," Opt. Lett. **26**, 932-934 (2001). *https://doi.org/10.1364/OL.26.000932*

97. P. O'Shea, S. Akturk, M. Kimmel, and R. Trebino, "Practical issues in ultra-short-pulse measurements with 'GRENOUILLE'," Applied Physics B **79**, 683-691 (2004). *https://doi.org/10.1007/s00340-004-1644-x*

98. C. Iaconis and I. A. Walmsley, "Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of ultrashort optical pulses," Opt. Lett. **23**, 792-794 (1998). *https://doi.org/10.1364/OL.23.000792*

99. M. E. Anderson, A. Monmayrant, S. P. Gorza, P. Wasylczyk, and I. Walmsley, "SPIDER: A decade of measuring ultrashort pulses," Laser Physics Letters **5**, 259-266 (2008). *https://doi.org/10.1002/lapl.200710129*

100. I. Z. Kozma, P. Baum, U. Schmidhammer, S. Lochbrunner, and E. J. R. o. S. i. Riedle, "Compact autocorrelator for the online measurement of tunable 10 femtosecond pulses," **75**, 2323-2327 (2004). *https://doi.org/10.1063/1.1764615*

101. S. Optics, "Swamp Optics Tutorial," *https://www.swampoptics.com/assets/tutorials_frog.pdf*

102. A. Baltuška, M. Pshenichnikov, and D. Wiersma, "Second-Harmonic Generation Frequency-Resolved Optical Gating in the Single-Cycle Regime," IEEE Journal of Quantum Electronics (1999). *https://doi.org/10.1109/3.753651*

103. unitedcrystals, "Non-linear Optical Crystal Overview," *https://www.unitedcrystals.com/NLOCOverview.html*

104. G. C. Catella and D. Burlage, "Crystal Growth and Optical Properties of AgGaS2 and AgGaSe2," MRS Bulletin **23**, 28-36 (1998). *https://doi.org/10.1557/S0883769400029055*

105. A. Baltuska, M. S. Pshenichnikov, and D. A. Wiersma, "FROG in the Single-Cycle Regime," in *Frequency-Resolved Optical Gating: The Measurement of Ultrashort Laser Pulses*, R. Trebino, ed. (Springer US, Boston, MA, 2000), pp. 257-303. *https://doi.org/10.1007/978-1-4615-1181-6_14*

106. G. Tamošauskas, G. Beresnevičius, D. Gadonas, and A. Dubietis, "Transmittance and phase matching of BBO crystal in the 3−5 μm range and its application for the characterization of mid-infrared laser pulses," Opt. Mater. Express **8**, 1410-1418 (2018). *https://doi.org/10.1364/OME.8.001410*

107. A. Rogalski, P. Martyniuk, M. Kopytko, and W. Hu, "Trends in Performance Limits of the HOT Infrared Photodetectors," Applied Sciences **11**, 501 (2021). *https://doi.org/10.3390/app11020501*

108. P. Cadroas, L. Kotov, L. Abdeladim, M. Likhachev, D. Lipatov, A. Hideur, W. Supatto, J. Livet, E. Beaurepaire, and S. Février, "Three-photon microscopy with a monolithic all-fiber format laser emitting at 1650 nm," in *Specialty Optical Fibers*, (Optica Publishing Group, 2016). *https://doi.org/10.1364/SOF.2016.SoM4F.4*

109. A. Andrianov, S. Muraviev, A. Kim, and A. J. L. p. Sysoliatin, "Widely-wavelength-tunable few-cycle optical pulse generation from an all-fiber erbium-doped laser system," **19**, 2014-2018 (2009). *https://doi.org/10.1134/S1054660X09200018*

110. Thorlabs, "UHNA4 - Ultra-High NA Silica Fiber, 0.35 NA, 1100 - 1600 nm " *https://www.thorlabs.com/thorproduct.cfm?partnumber=UHNA4*

111. L. Chen, M. Liao, W. Bi, F. Yu, T. Wang, W. Gao, and L. Hu, "Coherent Supercontinuum Generation in Step-Index Heavily Ge-Doped Silica Fibers With All Normal Dispersion," IEEE Photonics Journal **14**, 1-6 (2022). *https://doi.org/10.1109/JPHOT.2022.3177945*

112. P. Ciąćka, A. Rampur, A. Heidt, T. Feurer, and M. Klimczak, "Dispersion measurement of ultra-high numerical aperture fibers covering thulium, holmium, and erbium emission wavelengths," JOSA B **35**, 1301-1307 (2018). *https://doi.org/10.1364/JOSAB.35.001301*

113. D. M. Lesko, H. Timmers, S. Xing, A. Kowligy, A. J. Lind, and S. A. J. N. P. Diddams, "A six-octave optical frequency comb from a scalable few-cycle erbium fibre laser," **15**, 281-286 (2021). *https://doi.org/10.1038/s41566-021-00778-y*

114. R. H. Stolen, J. P. Gordon, W. Tomlinson, and H. A. Haus, "Raman response function of silica-core fibers," JOSA B **6**, 1159-1166 (1989). *https://doi.org/10.1364/JOSAB.6.001159*

Licence CC BY-NC-ND 3.0

115. C. V. Raman and K. S. Krishnan, "A New Type of Secondary Radiation," Nature **121**, 501-502 (1928). *https://doi.org/10.1038/121501c0*

116. C. Headley and G. P. Agrawal, "Unified description of ultrafast stimulated Raman scattering in optical fibers," JOSA B **13**, 2170-2177 (1996). *https://doi.org/10.1364/JOSAB.13.002170*

117. C. Agger, C. Petersen, S. Dupont, H. Steffensen, J. K. Lyngsø, C. L. Thomsen, J. Thøgersen, S. R. Keiding, and O. Bang, "Supercontinuum generation in ZBLAN fibers—detailed comparison between measurement and simulation," JOSA B **29**, 635-645 (2012). *https://doi.org/10.1364/JOSAB.29.000635*

118. V. Fortin, M. Bernier, J. Carrier, and R. Vallée, "Fluoride glass Raman fiber laser at 2185 nm," Opt. Lett. **36**, 4152-4154 (2011). *https://doi.org/10.1364/OL.36.004152*

119. S. Duval, "Laser femtoseconde à fibre optique émettant dans l'infrarouge moyen," (Université Laval, 2019).

120. J.-C. Gauthier, M. Olivier, P. Paradis, M.-F. Dumas, M. Bernier, and R. Vallée, "Femtosecond tunable solitons up to 4.8 µm using soliton self-frequency shift in an InF3 fiber," (2022). *https://doi.org/10.1038/s41598-022-19658-8*

121. D. Hollenbeck and C. D. Cantrell, "Multiple-vibrational-mode model for fiber-optic Raman gain spectrum and response function," J. Opt. Soc. Am. B **19**, 2886-2892 (2002). *https://doi.org/10.1364/JOSAB.19.002886*

122. Y. Durteste, M. Monerie, and P. Lamouler, "Raman amplification in fluoride glass fibres," Electronics Letters **21**, 723 (1985). *https://doi.org/10.1049/el:19850510*

123. A. Saissy, J. Botineau, L. Macon, and G. Maze, "Diffusion Raman dans une fibre optique en verre fluoré," Journal de Physique Lettres **46**, 289-294 (1985). *https://doi.org/10.1051/jphyslet:01985004606028900*

124. T. Mizunami, H. Iwashita, and K. Takagi, "Gain saturation characteristics of Raman amplification in silica and fluoride glass optical fibers," Optics Communications **97**, 74-78 (1993). *https://doi.org/10.1016/0030-4018(93)90620-K*

125. C. Petersen, S. Dupont, C. Agger, J. Thøgersen, O. Bang, and S. R. Keiding, "Stimulated Raman scattering in soft glass fluoride fibers," JOSA B **28**, 2310-2313 (2011). *https://doi.org/10.1364/JOSAB.28.002310*

126. V. Fortin, M. Bernier, N. Caron, D. Faucher, M. El-Amraoui, Y. Messaddeq, and R. Vallee, "Towards the development of fiber lasers for the 2 to 4 µm spectral region," Optical Engineering **52**, 054202 (2013). *https://doi.org/10.1117/1.OE.52.5.054202*

127. J. Parker, "Fluoride glasses," Annual Review of Materials Science **19**, 21-41 (1989). *https://doi.org/10.1146/annurev.ms.19.080189.000321*

128. N. Tolstik, E. Sorokin, V. Kalashnikov, and I. T. Sorokina, "Soliton delivery of mid-IR femtosecond pulses with ZBLAN fiber," Opt. Mater. Express **2**, 1580-1587 (2012). *https://doi.org/10.1364/OME.2.001580*

129. E. M. Vogel, M. Weber, and D. Krol, "Nonlinear optical phenomena in glass," Physics chemistry of glasses **32**, 231-254 (1991).

130. S. Duval, M. Olivier, L.-R. Robichaud, V. Fortin, M. Bernier, M. Piché, and R. Vallée, "Numerical modeling of mid-infrared ultrashort pulse propagation in Er 3+: fluoride fiber amplifiers," JOSA B **35**, 1450-1462 (2018). *https://doi.org/10.1364/JOSAB.35.001450*

131. E. Dianov, A. I. Karasik, P. Mamyshev, A. Prokhorov, and V. Serkin, "Stimulated-Raman conversion of multisoliton pulses in quartz optical fibers," ZhETF Pisma Redaktsiiu **41**, 242-244 (1985). *https://doi.org/10.1364/OFC.1986.WG7*

132. F. M. Mitschke and L. F. Mollenauer, "Discovery of the soliton self-frequency shift," Opt. Lett. **11**, 659-661 (1986). *https://doi.org/10.1364/OL.11.000659*

133. J. M. Dudley, G. Genty, and S. Coen, "Supercontinuum generation in photonic crystal fiber," Reviews of modern physics **78**, 1135 (2006). *https://doi.org/10.1103/RevModPhys.78.1135*

134. H. Delahaye, G. Granger, D. Gaponov, L. Lavoute, S. Aleshkina, M. Salganskii, A. Hideur, M. Likhachev, and S. Février, "Megawatt solitons generated above 2000 nm in Bragg fibers," Opt. Lett. **44**, 2713-2715 (2019). *https://doi.org/10.1364/OL.44.002713*

Licence CC BY-NC-ND 3.0

135. E. A. Anashkina, A. V. Andrianov, M. Yu. Koptev, S. V. Muravyev, and A. V. Kim, "Generating femtosecond optical pulses tunable from 2 to 3 μm with a silica-based all-fiber laser system," Opt. Lett. **39**, 2963-2966 (2014). *https://doi.org/10.1364/ol.39.002963*

136. Y. Li, T. Du, B. Xu, H. Xu, Z. Cai, V. M. Mashinsky, and Z. Luo, "Compact all-fiber 2.1-2.7 μm tunable Raman soliton source based on germania-core fiber," Opt. Express **27**, 28544-28550 (2019). *https://doi.org/10.1364/OE.27.028544*

137. Y. Tang, L. G. Wright, K. Charan, T. Wang, C. Xu, and F. W. Wise, "Generation of intense 100 fs solitons tunable from 2 to 4.3 μm in fluoride fiber," Optica **3**, 948-951 (2016). *https://doi.org/10.1364/OPTICA.3.000948*

138. S. Duval, J.-C. Gauthier, L.-R. Robichaud, P. Paradis, M. Olivier, V. Fortin, M. Bernier, M. Piché, and R. Vallée, "Watt-level fiber-based femtosecond laser source tunable from 2.8 to 3.6 μm," Opt. Lett. **41**, 5294-5297 (2016). *https://doi.org/10.1364/OL.41.005294*

139. L.-R. Robichaud, S. Duval, L.-P. Pleau, V. Fortin, S. T. Bah, S. Châtigny, R. Vallée, and M. Bernier, "High-power supercontinuum generation in the mid-infrared pumped by a soliton self-frequency shifted source," Opt. Express **28**, 107-115 (2020). *https://doi.org/10.1364/oe.380737*

140. L. YU, J. LIANG, S. HUANG, J. WANG, J. WANG, X. LUO, P. YAN, F. DONG, X. LIU, and Q. LUE, "Generation of single solitons tunable from 3 to 3.8 μm in cascaded Er3+-doped and Dy3+-doped fluoride fiber amplifiers," *https://doi.org/10.1364/PRJ.463613*

141. D. Gaponov, L. Lavoute, N. Ducros, A. Hideur, and S. Février, "10μJ-class compact thulium all-fibered CPA system," in *The European Conference on Lasers and Electro-Optics*, (Optica Publishing Group, 2017). *https://doi.org/10.1109/CLEOE-EQEC.2017.8086980*

142. F. Gan, "Optical properties of fluoride glasses: a review," Journal of non-crystalline solids **184**, 9-20 (1995). *https://doi.org/10.1016/0022-3093(94)00592-3*

143. T. Nakai, N. Norimatsu, Y. Noda, O. Shinbori, and Y. Mimura, "Changes in refractive index of fluoride glass fibers during fiber fabrication processes," Applied physics letters **56**, 203-205 (1990). *https://doi.org/10.1063/1.102831*

144. T. Boilard, R. Vallée, and M. Bernier, "Probing the dispersive properties of optical fibers with an array of femtosecond-written fiber Bragg gratings," Scientific Reports **12**, 1-8 (2022). *https://doi.org/10.1038/s41598-022-08329-3*

145. H. Delahaye, C. Hage, S. Bardet, I. Tiliouine, G. Granger, D. Gaponov, L. Lavoute, M. Jossent, S. Aleshkina, and M. Bubnov, "Generation of megawatt soliton at 1680 nm in very large mode area antiresonant fiber and application to three-photon microscopy," Journal of Optics **23**, 115504 (2021). *https://doi.org/10.1088/2040-8986/ac26cf*

146. Thorlabs, "Typical attenuation for fluoride and silica fiber," *https://www.thorlabs.com/images/TabImages/InF3_ZrF4_silica_Comparison_G4-780.gif*

147. Thorlabs, "Si Plano-Convex Lenses, AR Coated: 2 - 5 μm," *https://www.thorlabs.com/newgrouppage9.cfm?objectgroup_id=4346*

148. Y. Hou, X. Wu, Q. Wu, F. Liu, H. Luo, F. Ouellette, and J. Li, "Theoretical investigation of a multistage cascaded fiber Raman soliton frequency shift system in mid-infrared region," IEEE Photonics Journal **13**, 1-8 (2021). *https://doi.org/10.1109/JPHOT.2021.3101508*

149. P. Kabaciński, T. M. Kardaś, Y. Stepanenko, and C. Radzewicz, "Nonlinear refractive index measurement by SPM-induced phase regression," Opt. Express **27**, 11018-11028 (2019). *https://doi.org/10.1364/OE.27.011018*

150. J. Hodgkinson and R. P. Tatam, "Optical gas sensing: a review," Measurement science technology **24**, 012004 (2012). *http://dx.doi.org/10.1088/0957-0233/24/1/012004*

151. M. F. Ferreira, E. Castro-Camus, D. J. Ottaway, J. M. López-Higuera, X. Feng, W. Jin, Y. Jeong, N. Picqué, L. Tong, and B. M. Reinhard, "Roadmap on optical sensors," Journal of Optics **19**, 083001 (2017). *https://doi.org/10.1088/2040-8986/aa7419*

152. N. Picqué and T. W. Hänsch, "Frequency comb spectroscopy," Nature Photonics **13**, 146-157 (2019). *https://doi.org/10.1038/s41566-018-0347-5*

153. H. Timmers, A. Kowligy, A. Lind, F. C. Cruz, N. Nader, M. Silfies, G. Ycas, T. K. Allison, P. G. Schunemann, and S. B. Papp, "Molecular fingerprinting with bright, broadband infrared frequency combs," Optica **5**, 727-732 (2018). *https://doi.org/10.1364/OPTICA.5.000727*

Licence CC BY-NC-ND 3.0

154. A. Dazzi and C. B. Prater, "AFM-IR: Technology and applications in nanoscale infrared spectroscopy and chemical imaging," Chemical reviews **117**, 5146-5173 (2017). *https://doi.org/10.1021/acs.chemrev.6b00448*

155. F. Borondics, M. Jossent, C. Sandt, L. Lavoute, D. Gaponov, A. Hideur, P. Dumas, and S. Février, "Supercontinuum-based Fourier transform infrared spectromicroscopy," Optica **5**, 378-381 (2018). *https://doi.org/10.1364/OPTICA.5.000378*

156. A. Lemière, R. Bizot, F. Désévédavy, G. Gadret, J.-C. Jules, P. Mathey, C. Aquilina, P. Béjot, F. Billard, and O. Faucher, "1.7–18 µm mid-infrared supercontinuum generation in a dispersion-engineered step-index chalcogenide fiber," Results in Physics **26**, 104397 (2021). *https://doi.org/10.1016/j.rinp.2021.104397*

157. S. Venck, F. St-Hilaire, L. Brilland, A. N. Ghosh, R. Chahal, C. Caillaud, M. Meneghetti, J. Troles, F. Joulain, and S. Cozic, "2-10 µm mid-infrared supercontinuum generation in cascaded optical fibers: experiment and modelling," in *Nonlinear Frequency Generation and Conversion: Materials and Devices XIX*, (SPIE, 2020). *https://doi.org/10.1117/12.2543753*

158. P. Toupin, "Fibres optiques microstructurées en verre de chalcogénure pour la détection d'espèces chimiques et la conversion de longueurs d'onde," (Université Rennes 1, 2013). *https://theses.hal.science/tel-00934871*

159. W. Yuan, "2–10 µm mid-infrared supercontinuum generation in As2Se3 photonic crystal fiber," Laser Physics Letters **10**, 095107 (2013). *https://doi.org/10.1088/1612-2011/10/9/095107*

160. A. Lemière, A. Maldonado, F. Désévédavy, B. Kibler, P. Mathey, G. Gadret, J.-C. Jules, N. P. T. Hoa, T. Suzuki, and Y. Ohishi, "Towards absorption spectroscopy by means of mid-infrared supercontinuum generation in a step index tellurite fiber," Laser Physics **31**, 025702 (2021). *http://dx.doi.org/10.1088/1555-6611/abd9af*

161. I. Tiliouine, H. Delahaye, G. Granger, Y. Leventoux, C. Jimenez, V. Couderc, and S. Février, "Fiber-based source of 500 kW mid-infrared solitons," Opt. Lett. **46**, 5890-5893 (2021). *https://doi.org/10.1364/ol.445235*

162. I. Tiliouine, G. Granger, Y. Leventoux, C. Jimenez, J. Melek, V. Couderc, and S. Février, "Two-octave mid-infrared supercontinuum pumped by a 4.5 µm femtosecond fiber source," in *2022 Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO)*, (IEEE, 2022). *https://doi.org/10.1364/CLEO_AT.2022.JM3E.5*

163. K. W. DeLong and R. Trebino, "Improved ultrashort pulse-retrieval algorithm for frequency-resolved optical gating," J. Opt. Soc. Am. A **11**, 2429-2437 (1994). *https://doi.org/10.1364/JOSAA.11.002429*

164. S. Linden, J. Kuhl, and H. Giessen, "XFROG—Cross-correlation Frequency-resolved Optical Gating," in *Frequency-Resolved Optical Gating: The Measurement of Ultrashort Laser Pulses*, R. Trebino, ed. (Springer US, Boston, MA, 2000), pp. 313-322. *https://doi.org/10.1007/978-1-4615-1181-6_16*

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Annexes

Annexe 1. Algorithmes de reconstruction FROG.....124

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Annexe 1. Algorithmes de reconstruction FROG

Algorithme Vanilla

Les spectrogrammes FROG obtenus expérimentalement ne permettent pas de connaitre directement ni l'amplitude ni la phase de l'impulsion ayant servi à leur génération. L'efficacité de la technique FROG vient des outils de récupération de phase à base des algorithmes de transformée de Fourier itérative. Sachant que la mesure par la technique FROG est bidimensionnelle, il n'y aura donc plus de problèmes de récupération de phase 1D [85].

Lors d'une mesure FROG, le spectromètre sert à enregistrer l'intensité spectrale du signal à chaque valeur du retard du bras mobile du FROG. Ces données peuvent être représentées mathématiquement comme l'amplitude au carré de la transformée de Fourier de $\tilde{E}_{sig}(t\text{-}\tau)$:

$$I_{FROG}(\omega,\tau) = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{E}_{sig}(t,\tau) \exp(-i\omega t)\, dt \right|^2 \quad \text{(A-1)}$$

avec

$\tilde{E}_{sig}(t\text{-}\tau) = \tilde{E}(t)\tilde{E}(t\text{-}\tau)$ pour un « SHG-FROG ».

L'intensité spectrale de l'impulsion en fonction du temps $I_{FROG}(\omega, \tau)$ est une grandeur réelle, par conséquent, elle ne contient aucune information directe sur la phase de l'impulsion. L'algorithme d'inversion FROG sert à déterminer la phase en résolvant l'équation :

$$\sqrt{I_{FROG}(\omega, \tau)}\ \exp(i\psi(\omega,\tau)) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{E}(t)\tilde{E}(t\text{-}\tau) \exp(-i\omega t)\, dt \quad \text{(A-2)}$$

avec

$\psi(\omega,\tau)$ est la phase de l'impulsion.

Cette équation définit la contrainte d'intensité (appelée aussi : la contrainte physique) et elle est appliquée dans le domaine fréquentiel. Il existe une deuxième contrainte, appelée contrainte de forme mathématique. Cette dernière est utilisée dans les algorithmes à la fois pour obtenir la prochaine estimation pour $\tilde{E}(t)$ et pour construire le nouveau champ de signal $\tilde{E}_{sig}(t,\tau)$. Elle est donnée par :

$$\tilde{E}_{sig}(t,\tau) = \tilde{E}(t)\tilde{E}(t\text{-}\tau) \quad \text{(A-3)}$$

Ces deux contraintes sont appliquées dans tous les algorithmes de reconstruction FROG et qui doivent être satisfaites

Il existe plusieurs algorithmes de reconstruction FROG, ils servent tous à minimiser la différence entre les données mesurées et les résultats calculés à partir de l'impulsion courante, $\tilde{E}(t)$. Un algorithme de base de reconstruction FROG, appelé **algorithme Vanilla** [90], est présenté sur la figure 1.

L'algorithme commence par deviner un champ $\tilde{E}(t)$ **(1)** et appliquer la contrainte mathématique pour générer un champ-signal $\tilde{E}_{sig}(t,\tau)$ **(2)**. Il calcule ensuite la transformée de Fourier directe par rapport au temps t de $\tilde{E}_{sig}(t,\tau)$ pour générer $\tilde{E}_{sig}(\omega,\tau)$ **(3)**. Une fois dans le domaine fréquentiel, il applique la contrainte physique pour remplacer l'amplitude de $\tilde{E}_{sig}(\omega,\tau)$ résultante par l'amplitude de la trace SHG-FROG mesurée $\sqrt{I_{FROG}(\omega, \tau)}$ tout en gardant sa phase intacte $\arg\left(\tilde{E}_{sig}(\omega,\tau)\right)$ **(4)**. On obtient alors un nouveau champ signal mixte entre théorie (pour la phase) et mesure (pour l'amplitude) :

Licence CC BY-NC-ND 3.0

$$\tilde{E}'_{sig}(\omega,\tau) = \sqrt{I_{FROG}(\omega,\tau)}\exp\left(i\arg\left(\tilde{E}_{sig}(\omega,\tau)\right)\right) \quad \text{(A-4)}$$

En appliquant la transformée de Fourier inverse à $\tilde{E}'_{sig}(\omega,\tau)$ par rapport à ω nous obtenons une nouvelle expression du champ signal mixte $\tilde{E}'_{sig}(t,\tau)$ **(5)**. Enfin, à partir de $\tilde{E}'_{sig}(t,\tau)$, et par une simple intégration en fonction du retard τ selon l'équation Eq. A-5, nous obtenons la nouvelle estimation pour la prochaine itération de $\tilde{E}(t)$, appelée $\tilde{E}_{new}(t)$ **(6)**.

$$\tilde{E}_{new}(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{E}'_{sig}(t,\tau)d\tau \quad \text{(A-5)}$$

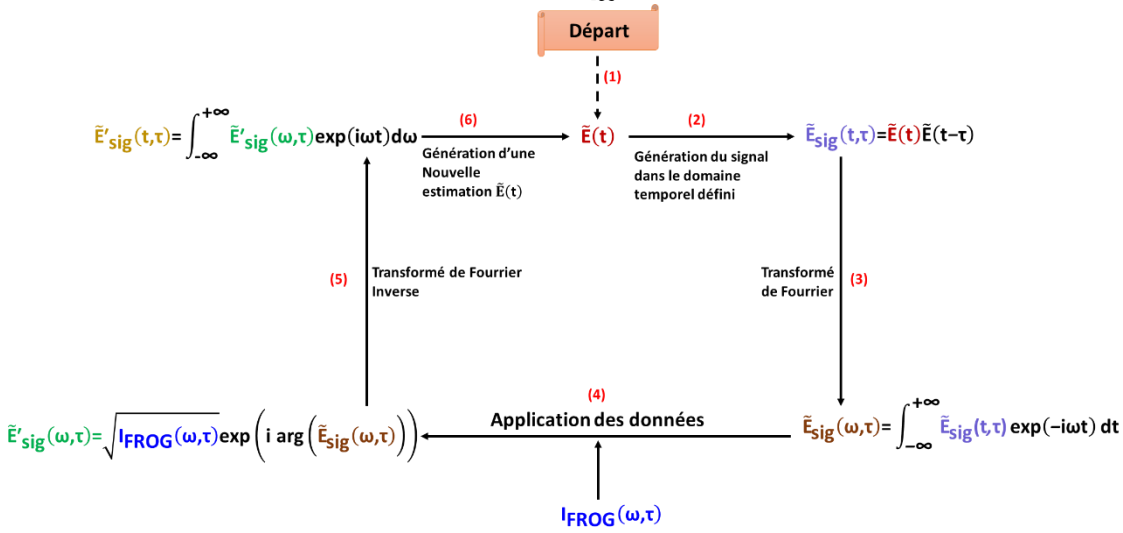


Figure 1 : Le principe de fonctionnement de l'algorithme de base « Vanilla »

L'itération suivante commence et cette procédure se poursuit jusqu'à la convergence de l'algorithme. La convergence est estimée par une mesure de l'écart-type quadratique moyen entre le spectrogramme expérimental et celui généré par l'algorithme. Cet écart-type, appelé aussi « erreur FROG » se calcule de la manière suivante :

$$\epsilon^{(k)} = \sqrt{\left(\frac{1}{N^2}\sum_{i=1}^{N}\sum_{j=1}^{N}\left|I_{SHG_FROG}(\omega_i,\tau_j) - I_{alg}^{(k)}(\omega_i,\tau_j)\right|^2\right)} \quad \text{(A-6)}$$

Dans cette équation, la sommation s'étend selon les deux axes temporel τ et fréquentiel ω. L'intensité de la trace SHG-FROG mesurée I_{SHG_FROG} est normalisée à la même intensité que la trace SHG-FROG récupérée à la k^{ième} itération $I_{alg}^{(k)}(\omega_i,\tau_j)$. N définit la taille de la matrice des deux traces FROG. A chaque itération, ce coefficient est calculé et comparé à l'erreur de l'itération précédente. Si $\epsilon^{(k)} < \epsilon^{(k-1)}$ alors l'expression du champ pour l'itération suivante $\tilde{E}^{(k+1)}(t) = \tilde{E}_{new}{}^{(k)}(t)$. Cette manipulation permet la convergence progressive de l'algorithme vers un taux d'erreur minimale. La valeur finale de l'erreur détermine alors la qualité du profil restitué par l'algorithme.

L'algorithme « Vanilla » est rapide cependant il se bloque facilement et ne parvient pas à reconstruire les spectrogrammes des impulsions complexes et des impulsions doubles. Pour surmonter ces problèmes de blocage et augmenter la robustesse de l'algorithme, des améliorations lui ont été apportées [163]. Grâce à ces améliorations, l'algorithme converge dans la plupart des cas vers de bonnes valeurs, même si son temps de convergence est allongé.

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Algorithme des projections généralisées

D'autres algorithmes de reconstruction FROG ont été développés. Ils se ressemblent tous sur la boucle d'itération, mais diffèrent dans la manière dont $\tilde{E}(t)$ est calculé à partir de $\sqrt{I_{FROG}(\omega, \tau)}\exp\left(i\,\psi(\omega,\tau)\right)$. Le plus robuste d'entre eux est l'algorithme **des projections généralisées** [91]**.** Cet algorithme permet de mesurer des impulsions laser ultracourtes. En l'absence de bruit, il converge généralement vers la solution exacte, quelle que soit la complexité de l'impulsion. Il est limité uniquement par les performances numériques du système informatique utilisé. Cet algorithme peut être utilisé pour n'importe quelle topologie de FROG [88]. L'algorithme des projections généralisées, dont le principe est présenté sur la figure 2, fonctionne en alternant entre deux sous-ensembles. Chacun des sous-ensembles correspond à l'une des deux contraintes, mathématique et physique. Le sous-ensemble d'en haut correspond à la contrainte mathématique et celui d'en bas comprend toutes les fonctions complexes qui vérifient la contrainte physique.

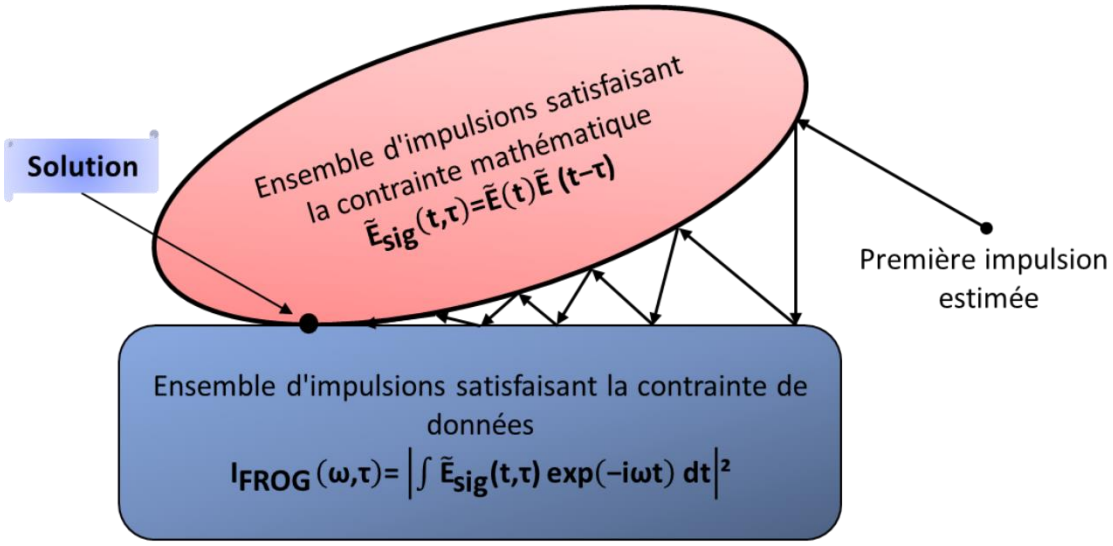


Figure 2 : Principe de fonctionnement de l'algorithme des projections généralisées

Contrairement à l'algorithme Vanilla, l'algorithme de projections généralisées utilise des algorithmes de minimisation pour trouver l'expression du champ-solution $\tilde{E}^{(k+1)}(t)$ qui minimise la distance entre les deux sous-ensembles, ce qui signifie la distance euclidienne entre le champ de signal construit à partir de $\tilde{E}^{(k+1)}(t)$ et le champ-signal actuel :

$$Z = \sum_{i,j=1}^{N} \left| \tilde{E}'^{(k)}_{sig}(t_i,\tau_j) - \tilde{E}^{(k+1)}(t_i)\tilde{E}^{(k+1)}(t_i-\tau_j) \right|^2 \qquad \text{(A-7)}$$

La distance Z est minimisée à chaque itération ce qui permet à l'algorithme de converger vers l'intersection des deux sous-ensembles et ainsi vers la solution unique du champ $\tilde{E}(t)$.

Algorithme des projections généralisées en Composantes Principales

Un algorithme simplifié des projections généralisées, appelé algorithme des **Projections Généralisées en Composantes Principales (*Principal Component Generalized Projections* PCGP)**, et qui ne demande pas d'étapes de minimisation [92], a été récemment développé et a permis l'accélération du taux d'itération de près d'un facteur deux. Cet algorithme est compact et peut être intégré facilement dans des cartes de traitement de signal numérique

Licence CC BY-NC-ND 3.0

peu coûteuses, permettant l'acquisition simultanée de données et l'inversion des traces FROG. Il a été aussi utilisé pour inverser les traces FROG et caractériser des impulsions laser ultracourtes en temps réel [93]. Le principe de fonctionnement de cet algorithme est simple et présenté sur la figure 3. À chaque itération l'algorithme commence par une estimation de l'expression du champ incident $\tilde{E}(t)$ et du signal porte $\widetilde{G}(t)$ **(1)**. Il existe des situations quand le champ $\tilde{E}(t) \neq \widetilde{G}(t)$ où le champ-porte utilisé est un champ de référence connu comme dans le cas des X-FROG [164]. Nous prenons ici $\tilde{E}(t) = \widetilde{G}(t)$ correspondant à la topologie SHG-FROG où l'impulsion est échantillonnée par elle-même.

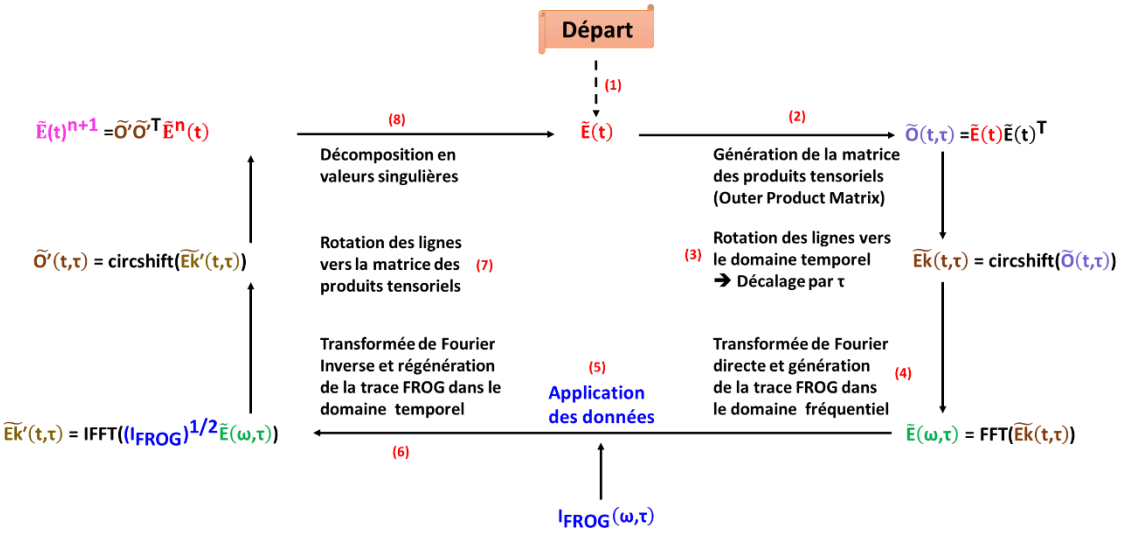


Figure 3 : Schéma de l'algorithme des Projections Généralisées en Composantes Principales

Ces deux signaux sont discrétisés dans le temps de telle façon qu'on obtient deux vecteurs $\tilde{E}(t) = [\tilde{E}(t_1), \tilde{E}(t_2), \ldots, \tilde{E}(t_N)]$. On calcule le produit matriciel des deux vecteurs tout en transposant le champ-porte $\widetilde{G}(t) = \tilde{E}^{T}(t)$ afin d'obtenir une matrice carrée **(2)**. Cette matrice O est appelée en anglais « *Outer product matrix* » et elle a la forme suivante :

$$\widetilde{O} = \tilde{E}\tilde{E}^{T} \tag{A-8}$$

$$\widetilde{O} = \begin{bmatrix} \tilde{E}(t_1)\tilde{E}(t_1) & \tilde{E}(t_1)\tilde{E}(t_2) & \cdots & \tilde{E}(t_1)\tilde{E}(t_N) \\ \tilde{E}(t_2)\tilde{E}(t_1) & \tilde{E}(t_2)\tilde{E}(t_2) & \cdots & \tilde{E}(t_2)\tilde{E}(t_N) \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \tilde{E}(t_N)\tilde{E}(t_1) & \tilde{E}(t_N)\tilde{E}(t_2) & \cdots & \tilde{E}(t_N)\tilde{E}(t_N) \end{bmatrix} \tag{A-9}$$

La matrice carrée $\widetilde{O}$ contient tous les points nécessaires pour construire la trace FROG dans le domaine temporel. Elle contient toutes les interactions entre l'impulsion et la porte pour des temps de retard discrets. Par conséquent, une cartographie terme à terme des éléments de la matrice est nécessaire. Ceci peut être accompli en faisant pivoter les éléments des lignes de la matrice vers la gauche par le numéro de chaque ligne moins un. Cela veut dire faire tourner circulairement à gauche la $N^{ième}$ ligne par (N-1) positions afin de simuler le délai entre le signal et la porte **(3)**.

$$\widetilde{O}_{FROG} = \begin{bmatrix} \tilde{E}(t_1)\tilde{E}(t_1) & \tilde{E}(t_1)\tilde{E}(t_2) & \cdots & \tilde{E}(t_1)\tilde{E}(t_N) \\ \tilde{E}(t_2)\tilde{E}(t_2) & \tilde{E}(t_2)\tilde{E}(t_2) & \cdots & \tilde{E}(t_2)\tilde{E}(t_1) \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \tilde{E}(t_N)\tilde{E}(t_N) & \tilde{E}(t_N)\tilde{E}(t_1) & \cdots & \tilde{E}(t_N)\tilde{E}(t_{N-1}) \\ \boldsymbol{\tau = 0} & \boldsymbol{\tau = -\Delta t} & \boldsymbol{\cdots} & \boldsymbol{\tau = \Delta t} \end{bmatrix} \tag{A-10}$$

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Une manipulation des colonnes est nécessaire pour centrer la matrice autour $\tau = 0$. La première colonne de cette nouvelle matrice $\widetilde{O}_{FROG}$ représente le champ du signal de seconde harmonique quand le délai entre le signal et la porte est $\tau = 0$. La deuxième colonne représente le champ quand $\tau = -\Delta t$ et ainsi de suite. On cherche donc à faire en sorte que la colonne pour $\tau = 0$ soit au centre de la matrice. Ceci se fait en plaçant le délai τ le plus négatif à gauche et τ le plus positif à droite. Ainsi on obtient une nouvelle matrice notée $\widetilde{Ek}(t,\tau)$ et appelée « trace FROG dans le domaine temporel » où l'axe des abscisses (les colonnes) correspond au retard τ tandis que l'axe des ordonnées (les lignes) est donné en temps t. Enfin, en appliquant la transformée de Fourier directe à chaque colonne de la nouvelle matrice $\widetilde{Ek}(t,\tau)$ on génère la trace FROG dans le domaine fréquentiel **(4)**. La figure 4 illustre les quatre étapes de la génération numérique des traces SHG-FROG utilisées par cet algorithme.

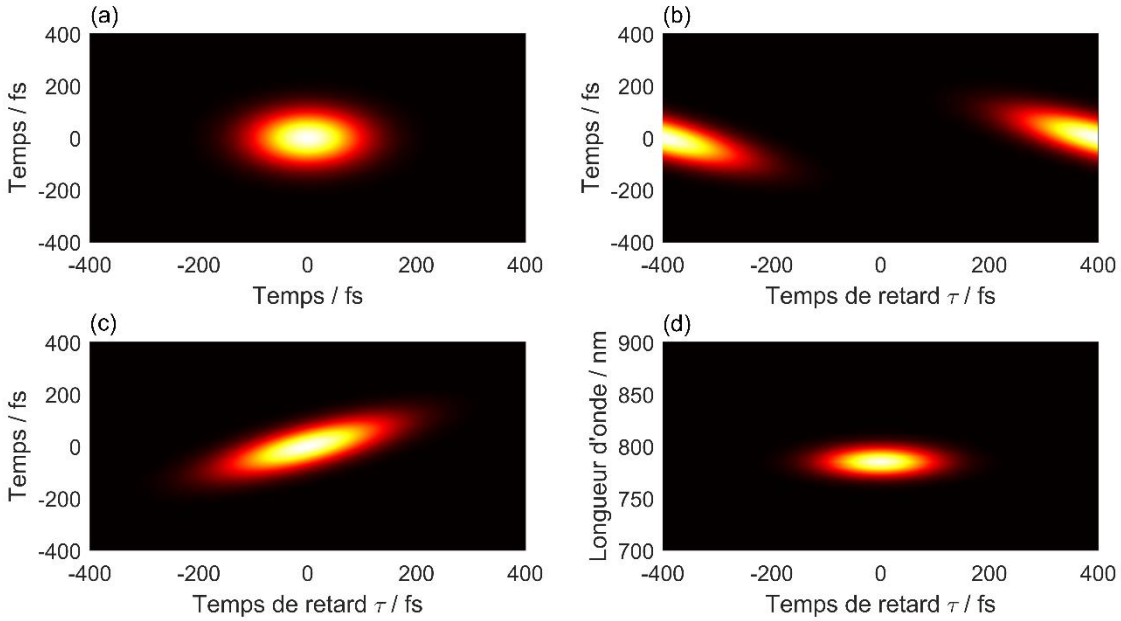


Figure 4 : Les étapes de génération numérique d'une trace SHG-FROG. (a) Produit matriciel du signal et de la porte. (b) Produit matriciel après cartographie terme à terme. (c) Trace SHG-FROG dans le domaine temporel. (d) Trace SHG-FROG dans le domaine des fréquences

La reconstruction d'une trace SHG-FROG passe par ces quatre étapes suivies par des étapes semblables à celles de l'algorithme de base. Une fois la trace SHG-FROG construite à partir du champ théorique, on lui applique la contrainte physique **(5)**. On remplace l'intensité de la trace numérique par l'intensité de la trace mesurée tout en gardant sa phase numérique. Ensuite en prend le chemin inverse de celui de la figure 4. On applique la transformée de Fourier inverse à la nouvelle trace **(6)**, suivi d'une manipulation de colonnes puis de lignes pour remonter à la matrice du produit matriciel **(7)**. Une fois la nouvelle matrice O' obtenue, on lui applique ce qu'on appelle « la décomposition en valeurs singulières » **(8)**. Ceci nous permet de trouver la nouvelle expression du champ $\tilde{E}(t)$ avec la relation suivante:

$$\tilde{E}^{i+1} = \widetilde{O}'\widetilde{O}'^{T}\tilde{E}^{i} \qquad \text{(A-11)}$$

L'expression Eq. A-11 est suffisante pour la topologie SHG-FROG. Dans le cas du X-FROG, par exemple, une estimation de la nouvelle expression du champ-porte est aussi nécessaire et peut être calculée par :

$$\tilde{G}^{i+1} = \widetilde{O}'^{T}\widetilde{O}'\tilde{G}^{i} \qquad \text{(A-12)}$$

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Licence CC BY-NC-ND 3.0

Élaboration de lasers few-cycle à fibres optiques dans le moyen-infrarouge

La propagation d'impulsions sub-picosecondes issues des lasers à haute énergie dans des fibres optiques passives déclenche, sous certaines conditions, un régime de propagation unique connu sous le nom de « régime solitonique ». Ce régime particulier, émanant de l'interaction entre l'automodulation de phase et la dispersion chromatique, permet de produire des solitons fondamentaux de quelques dizaines de femtosecondes grâce à la fission multi-solitonique de l'impulsion-source. Le large spectre des solitons fondamentaux leur permet de subir la diffusion Raman intra-impulsionnelle qui a pour conséquence un auto-décalage spectral de l'impulsion vers les hautes longueurs d'onde lors de sa propagation dans la fibre optique. La fission multi-solitonique et l'auto-décalage fréquentiel des solitons permettent de générer des impulsions accordables en longueur d'onde dans l'IR moyen. Cette thèse a pour but de développer une source laser à haute puissance crête à de hautes longueurs d'onde. La région spectrale entre 2,5 et 5 µm est peu couverte par l'émission directe des lasers solides ou fibrés. La transparence des fibres en silice étant limitée à 2,4 µm, l'exploration d'un autre type de fibres optiques a été nécessaire. Les fibres optiques en verre fluoré, transparentes jusqu'à 4,8 µm, se présentent comme une plateforme idéale pour ce genre d'applications. L'utilisation de fibres à grande surface modale permet la génération d'impulsions de forte puissance crête. Dans ces travaux, l'exploitation du régime solitonique dans une cascade de fibres optiques en silice et en verre fluoré a permis de produire des impulsions de forte puissance crête dans la bande de fréquence moyen infrarouge : 1,2 MW à 2,27 µm, 0,5 MW à 3,03 µm et 35 kW à 4,5 µm. Ces sources permettent la génération de supercontinuum dans l'IR moyen dans des fibres en verres de chalcogénure. La génération d'un SC couvrant deux octaves, de 2 à 8 µm, a été obtenue dans une fibre microstructurée air-chalcogénure. La large bande spectrale des supercontinuum couvre les raies d'absorption de plusieurs gaz polluants dont le méthane et le dioxyde carbone. La dernière partie de cette thèse présente une étude spectroscopique de l'absorption du gaz méthane CH_4 dans l'air à l'aide de cette source supercontinuum fibrée.

Mots-clés : Moyen infrarouge, soliton, puissance crête, fibre optique, supercontinuum, spectroscopie des gaz à effet de serre

Development of few-cycle fiber lasers in the mid-infrared

The propagation of sub-picosecond pulses from high-energy lasers in passive optical fibers might trigger a unique propagation regime known as the "solitonic regime". This particular regime, emanating from the interaction between self-phase modulation and chromatic dispersion, makes it possible to produce fundamental solitons of few tens of femtoseconds by the multi-soliton fission of the source pulse. The wide spectrum of fundamental solitons allows them to undergo intra-pulse Raman scattering, which results in a self-frequency shift of the pulse towards longer wavelengths during its propagation in the optical fiber. Multi-soliton fission and soliton self-frequency shift allow for the generation of wavelength-tunable pulses in the mid-IR. This thesis aims to develop a laser source with high peak power at long wavelengths via the exaltation of these nonlinear effects in dedicated optical fibers. The spectral region, between 2.5 and 5 µm, is not fully covered by the direct emission of solid or fiber lasers. The transparency of silica fibers being limited to 2.4 µm, the exploration of another type of optical fiber was necessary. Fluoride fibers, transparent up to 4.8 µm, are an ideal platform for this type of application. The use of large mode area fibers allows the generation of high peak power pulses. In this work, the exploitation of the solitonic regime in a chain of silica and fluoride fibers made the generation of high peak power pulses in the mid-infrared frequency band possible: 1.2 MW at 2.27 µm, 0.5 MW at 3.03 µm and 35 kW at 4.5 µm. These sources allow for the generation of a supercontinuum in chalcogenide fibers, covering two octaves from 2 to 8 µm. The wide spectral band of the source developed covers the absorption lines of several greenhouse gases. The last chapter of this thesis presents a spectroscopic study of the absorption of methane gas CH_4 using this supercontinuum source.

Keywords : Mid-infrared, soliton, peak power, optical fiber, supercontinuum, spectroscopy of greenhouse gases