



**HAL**  
open science

# Contrôle et caractérisation de la cohérence Raman induite par bruit quantique dans des fibres creuses remplies de gaz

Jim Ignacchiti

► **To cite this version:**

Jim Ignacchiti. Contrôle et caractérisation de la cohérence Raman induite par bruit quantique dans des fibres creuses remplies de gaz. Optique / photonique. Université de Limoges, 2024. Français. NNT : 2024LIMO0056 . tel-04808291

**HAL Id: tel-04808291**

**<https://theses.hal.science/tel-04808291v1>**

Submitted on 28 Nov 2024

**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.

## Université de Limoges

École Doctorale 653 – Sciences et Ingénierie (SI)

Faculté des Sciences et Techniques – Institut de Recherche XLIM

Thèse pour obtenir le grade de

Docteur de l'Université de Limoges

Électronique des Hautes Fréquences, Photonique et Systèmes

Présentée et soutenue par

**Jim IGNACCHITI**

Le 2 octobre 2024

### **Contrôle et caractérisation de la cohérence Raman induite par bruit quantique dans des fibres creuses remplies de gaz**

Thèse dirigée par Fetah BENABID et co-dirigée par Frédéric GÉRÔME

JURY :

Rapporteurs

M. Nicolas Joly, Professeur, Max Planck Institute for the Science of Light

Mme. Sophie Lebrun, Maître de conférence - HDR, Institut d'Optique Graduate School - Laboratoire Charles Fabry

Examineurs

M. Eric Cormier, Professeur, Institut d'Optique d'Aquitaine - Laboratoire Photonique Numérique et Nanosciences

M. Alexandro Tonello, Maître de conférence - HDR, Université de Limoges XLIM – Axe Photonique fibre et sources cohérentes - Equipe Biophotonique

M. Fetah Benabid, Directeur de Recherche CNRS, Université de Limoges XLIM – Axe Photonique fibre et sources cohérentes - Equipe GPPMM

M. Frédéric Gérôme, Directeur de Recherche CNRS, Université de Limoges XLIM – Axe Photonique fibre et sources cohérentes - Equipe GPPMM









## Droits d'auteurs

---

Cette création est mise à disposition selon le Contrat :

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

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



# Table des Matières

<b>1</b>	<b>Introduction à la synthèse d'onde par voie optique</b>	<b>20</b>
1.1	Contexte général autour de la synthèse d'onde	22
1.2	Cas particulier de la synthèse d'onde en optique	24
1.3	La diffusion Raman dans les fibres creuses	27
1.4	Objectifs de la thèse	35
<b>2</b>	<b>Diffusion Raman stimulée en régime impulsionnel</b>	<b>37</b>
2.1	Définition de la diffusion Raman	39
2.2	La diffusion Raman dans l'hydrogène	39
2.2.1	Le déphasage Raman	41
2.2.2	Le Coefficient de gain Raman	43
2.2.3	Extraction du coefficient de gain Raman à partir des données expérimentales	46
2.3	Approche théorique de la diffusion Raman stimulée	47
2.4	La diffusion Raman stimulée en régime non déplété	49
2.5	La diffusion Raman stimulée en régime déplété	55
2.6	Conclusion	64
<b>3</b>	<b>Fibres creuses à couplage inhibé à faibles pertes et à contenu unimodal</b>	<b>65</b>
3.1	Introduction historique aux fibres optiques à coeur creux	67
3.2	Le mécanisme de guidage par couplage inhibé	69
3.2.1	Approche analytique simplifiée	71
3.2.2	Approche numérique approfondie	77
3.3	Évolution des performances des fibres creuses à couplage inhibé	83
3.3.1	La problématique du contenu modal	86
3.4	Développement d'une fibre creuse monomode et à faibles pertes	87
3.4.1	Conception d'une fibre creuse à maille hybride	87
3.4.2	Fabrications et caractérisations de la fibre creuse hybride	92
3.5	Conclusion	95

<b>4</b>	<b>Étude de la cohérence Raman intra-impulsionnel</b>	<b>97</b>
4.1	Introduction	99
4.2	Génération du peigne Raman dans le régime DRS	99
4.2.1	Réalisation et caractérisation du peigne Raman	99
4.2.2	Régime de DRS et ses limitations	104
4.3	Réalisation d'un interféromètre à somme de fréquence	109
4.4	Analyse de la cohérence entre la pompe et la première raies Stokes	113
4.5	Analyse de la cohérence des autres raies Stokes et anti-Stokes	118
4.6	Mesures sous configuration complète du peigne Raman	121
4.7	Conclusion	124
<b>5</b>	<b>Étude de la cohérence Raman inter-impulsionnel</b>	<b>125</b>
5.1	Introduction	127
5.2	Analyse des franges d'interférence de la pompe, la première raies Stokes et la première raies anti-Stokes	129
5.3	Analyse de la cohérence inter-impulsionnelle entre la pompe et la première raies Stokes	137
5.4	Conclusion	142
<b>6</b>	<b>Conclusions et perspectives</b>	<b>143</b>
<b>A</b>	<b>Annexes</b>	<b>149</b>
A.1	Résolution numérique des équations différentielles de Maxwell-Block avec RK4	150
A.2	Codes numériques	155
A.2.1	Code utilisé pour obtenir les STM	155
A.2.2	Code principale utilisé pour résoudre Maxwell-Bloch	157
A.2.3	Code numérique utilisé pour la prise et l'analyse des données expérimentales	160
<b>B</b>	<b>Bibliographie</b>	<b>165</b>
	Références	166
	Liste des travaux	176



# Table des Figures

1.1	(a) À gauche : Peigne de fréquences dans le domaine spectral. À droite : son train d'impulsions correspondant dans le domaine temporel. (b) À gauche : intensité et phase des différentes lignes d'un peigne de fréquences dans le domaine spectral. À droite : forme du signal correspondant dans le domaine temporel. . . . .	23
1.2	Généralité sur les gammes de fréquence. . . . .	24
1.3	(a) Comparaison schématique de l'interaction lumière-gaz dans une configuration en espace libre et dans une configuration utilisant une fibre creuse. (b) Facteur de mérite pour plusieurs types de fibres creuses en fonction du diamètre de coeur et des pertes de propagation. . . . .	28
1.4	(a) Coupe transverse de la première fibre à maille Kagomé fabriquée, ainsi que les images des champs lointains des raies Stokes générés [35] . (b) Montage expérimental et génération en régime continu du premier Stokes rotationnel (ligne de cercles) avec un seuil de génération Raman inférieur à 1 watt [36]. . .	29
1.5	Génération d'un peigne Raman sur 3 octaves en régime d'impulsion ns pour une polarisation incidente linéaire et rotationnelle [27]. . . . .	30
1.6	Peigne Raman généré sur plus de 5 octaves en régime ps [37], (a) dans le cas d'une polarisation de pompe linéaire et (b) avec une polarisation de pompe circulaire. . . . .	31
1.7	Montage expérimental utilisé pour démontrer des peignes Raman dans l'UV à forte efficacité de conversion pompé au moyen de deux faisceaux dans une fibre creuse remplie d'hydrogène [39]. . . . .	32
1.8	Montage expérimental utilisé pour étendre les peignes dans l'UV (jusqu'à 141 nm) grâce à une double pompe injectée dans la fibre creuse [41]. . . . .	33
1.9	Modulation moléculaire Raman à base de fibres creuses pour les applications quantiques [42]. . . . .	34
1.10	Démonstration expérimentale de la cohérence intra-impulsionnelle par diffusion Raman stimulé [28] . . . . .	35

2.1	Représentation schématique des transitions Raman $Q_{01}(0), S_{00}(0), Q_{01}(1)$ et $Q_{00}(1)$ dans le dihydrogène. . . . .	40
2.2	Évolution du déphasage Raman de la transition rotationnelle $\Gamma_{rot}$ et vibrationnelle $\Gamma_{vib}$ en fonction de la pression à 22 °C et pour un laser incident à 1030 nm . . . . .	42
2.3	Évolution du gain Raman de la transition rotationnelle $\alpha_{rot}$ et vibrationnelle $\alpha_{vib}$ en fonction de la pression à 22 °C et pour un laser incident à 1030 nm. . . . .	44
2.4	Gain Raman de la transition rotationnelle $\alpha_{rot}$ et vibrationnelle $\alpha_{vib}$ en fonction de la longueur d'onde du laser incident. . . . .	45
2.5	(a) Configuration expérimental pour enregistrer les spectres Raman en fonction de leur énergie. (b) Spectres Raman à la sortie de la fibre remplie de $H_2$ pour des énergies laser d'entrée variables et pour $\tau_L = 3$ ps. (c) Proportion de la puissance optique de plusieurs raies du peigne Raman (pompe, premier Stokes, deuxième Stokes, anti-Stokes) pour des énergies laser d'entrée variables. Les lignes rouges et bleues représentent un ajustement des données expérimentales conduisant à un coefficient de gain Raman $g_R = 1,3 \times 10^{-11}$ m/W, $g_R$ étant le seul paramètre libre de l'ajustement. La partie solide des lignes correspond aux données utilisées pour effectuer l'ajustement, et la ligne en pointillés représente la prolongation de l'ajustement. . . . .	47
2.6	(a) Illustration schématique de la géométrie de la diffusion Raman. Le volume d'interaction, contenant le milieu Raman actif, est ici un cylindre uniformément pompé de longueur $L$ et de rayon $r$ . Une impulsion laser de fréquence $\omega_L$ est incidente sur la face gauche du cylindre. Le rayonnement à la fréquence de Stokes $\omega_s$ est généré par diffusion spontanée et s'amplifie par diffusion stimulée lors de la propagation à travers la région d'interaction. L'impulsion de Stokes sort de la région de gain par la face droite à $z = L$ . (b) Schéma des niveaux d'énergie pour la diffusion Raman stimulée à partir, par exemple, de la transition vibrationnelle $Q_{01}(1)$ dans l'hydrogène. La molécule est initialement dans l'état fondamental $ 1\rangle$ lorsque l'impulsion laser intense, avec une fréquence $\omega_L$ , l'excite vers un niveau virtuel avec un grand désaccord par rapport au groupe d'états $ m\rangle$ . Des photons dispersés avec la fréquence $\omega_s$ sont générés, laissant la molécule dans l'état excité $ 3\rangle$ . . . . .	48

2.7	Tracé des 3 régimes de diffusion Raman stimulée dans l'espace $\tau_L$ et $\epsilon_L$ déterminés pour les paramètres expérimentaux $L = 3\text{ m}$ , $R = 19,5\ \mu\text{m}$ , $g_R = 1,3 \times 10^{-11}\ \text{m/W}$ et $\Gamma = 2\ \text{GHz}$ . La ligne noire solide montre la transition entre les régimes de diffusion Raman spontanée et stimulée ( $G_{net}^0 = 1$ ). La ligne noire en pointillées met en évidence, dans le régime stimulé, la transition entre les régimes transitoire et permanent ( $G_{net}^0 = \Gamma\tau_L$ ) . . . . .	51
2.8	(Haut) Les quatre premiers modes cohérents temporels calculés en tant que fonctions propres de l'équation 2.13. (Bas) Carré des quatre premières fonctions propres. Fonctions propres calculées avec une impulsion de pompe de forme gaussienne, d'une durée de $3\ \text{ns}$ , d'énergie $2,5\ \mu\text{J}$ et est centrée autour de $\tau = 0$ .	54
2.9	(a) Coupe transversale de la fibre creuse à cristal photonique qui sera utilisée dans ce travail (voir le chapitre 3). (b) Poids de chaque mode dans l'expansion du champ de Stokes en STM pour $\tau_L = 3\ \text{ps}$ et $\epsilon_L = 2,5\ \mu\text{m}$ . Ici les paramètres géométriques de la fibre sont $L = 3\ \text{m}$ et $R = 19,5\ \mu\text{m}$ . (c) Rapport $r$ en décibels révélant le poids du premier mode STM par rapport aux suivants. La zone rouge correspond aux situations où le premier mode STM domine fortement. La ligne solide noire montre la transition entre les régimes de diffusion Raman spontanée et stimulée. La ligne en pointillées noires met en évidence, dans le régime stimulé, la transition entre les régimes transitoire et permanent. . . . .	55
2.10	Distribution spatio-temporelle de la population de l'état excité (a), de la cohérence (b), du champ de pompage (c) et du champ de Stokes (d). Dans ces graphiques, $z$ caractérise la position le long de la fibre et $\tau = t - \frac{z}{c}$ est la variable de temps locale du laser. Enfin, (e) et (f) montrent respectivement les profils temporels du champ de la pompe et du champ de Stokes à la sortie de la fibre. . . . .	57
2.11	Résultats numériques obtenus pour une impulsion pompe à l'entrée de la fibre de $3\ \text{ps}$ et de $3,5\ \mu\text{J}$ . (a) Profils temporels de l'intensité de la pompe (en bleu), de l'intensité du Stokes (en rouge) à la sortie de la fibre, de l'intensité de la pompe (en pointillé bleu) à l'entrée de la fibre et de l'intensité du Stokes après application d'un délai de $0,83\ \text{ps}$ entre le Stokes et la pompe. (b-c) Traces temporelles simulées d'un interféromètre à somme de fréquences (SFI) : (b) Contributions à $2\omega_0$ et $2\omega_{-1}$ . (c) Contribution à $\omega_0 + \omega_{-1}$ lorsqu'aucune fluctuation de phase n'est prise en compte. . . . .	58

2.12	Distribution spatio-temporelle de l'intensité de la pompe (a), de l'intensité de Stokes (b), de la cohérence (c) et de la population de l'état excité (d) pour la première impulsion (haut) et pour la deuxième impulsion (milieu) après un délai de 1 ns pour des impulsions de 3 ps et de 2 μJ. Dans ces graphiques, z caractérise la position le long de la fibre et $\tau = t - \frac{z}{c}$ est la variable de temps locale du laser. Les figures (e,f) montrent respectivement les intensités de la pompe et du Stokes, la distribution de la population de l'état excité et de la cohérence à la sortie de la fibre pour la première impulsion (e) et pour la deuxième impulsion (f).	60
2.13	Résultats numériques obtenus pour deux impulsions pompe à l'entrée de la fibre de largeur d'impulsion 3 ps, d'énergie 2 μJ et séparées d'un délai de 1 ns. (a-b) Profils temporels de l'intensité de la pompe (en bleu) et de l'intensité du Stokes (en rouge) à la sortie de la fibre, profils temporels de l'intensité de la pompe (en pointillé bleu) à l'entrée de la fibre et profils temporels de l'intensité du Stokes après application d'un délai de 0,83 ps entre le Stokes et la pompe pour la première impulsion (gauche) et pour la deuxième impulsion (droite). (c-d) Traces temporelles simulées d'un interféromètre à somme de fréquences (SFI) croisées entre la première et la deuxième impulsion : (c) Contributions croisées à $2\omega_0$ et $2\omega_{-1}$ . (d) Contributions croisées à $\omega_0 + \omega_{-1}$ lorsque aucune fluctuation de phase n'est prise en compte.	62
2.14	Distribution spatio-temporelle de l'intensité de la pompe (a), de l'intensité de Stokes (b), de l'intensité de l'anti-Stokes (c), de l'intensité du deuxième Stokes (d), de la population de l'état excité (e) et de la cohérence (f) de pour une impulsion pompe de 3 ps et de 5 μJ en entrée de fibre.	63
2.15	Intensités de la pompe, du Stokes, de l'anti-Stokes, du deuxième Stokes et distribution de la population de l'état excité et de la cohérence à la sortie de la fibre.	63
3.1	Frise historique de l'évolution des fibres à cœur creux. (Au centre) Arborescence du développement plus général des fibres à cœur cristal photonique.	69
3.2	Panorama de différents exemples de structures de fibres creuses à couplage inhibé rapportées dans la littérature : (a) [35],(b) [27] ,(c) [76],(d) [78],(e) [78],(f) [77],(g) [79],(h) [80],(i) [81],(j) [82],(k) [83],(l) [84] ,(m) [85],(n) [86],(o) [87],(p) [88].	70

3.3	Représentation de l'approche simplifiée utilisée pour étudier la dispersion d'une fibre creuse à couplage inhibé. Seuls deux paramètres géométriques sont nécessaires : le rayon de la fibre $R$ et l'épaisseur des ponts de silice $t$ . . . . .	71
3.4	Evolution de l'indice effectif $n_{eff}$ pour le mode fondamental $HE_{11}$ dans le cas d'une fibre creuse avec un rayon $R$ de $20 \mu\text{m}$ et d'épaisseur $t$ de $1, 30 \mu\text{m}$ remplie avec de l'air (en bleu) et 20 bars d'hydrogène (en rouge) avec $\lambda_m$ la position de la $m$ -ième longueurs d'onde des résonances. . . . .	74
3.5	Délais relatif par rapport à la longueur d'onde de $1030 \text{ nm}$ pour le mode fondamental $HE_{11}$ dans le cas d'une fibre creuse avec un rayon $R$ de $20 \mu\text{m}$ et d'épaisseur $t$ de $1, 30 \mu\text{m}$ remplie avec de l'air (en bleu) et 20 bars d'hydrogène (en rouge). . . . .	76
3.6	Dispersion de vitesse de groupe (GVD) autour de $1030 \text{ nm}$ pour le mode fondamental $HE_{11}$ dans le cas d'une fibre creuse avec un rayon $R$ de $20 \mu\text{m}$ et d'épaisseur $t$ de $1, 30 \mu\text{m}$ remplie avec de l'air (en bleu) et 20 bars d'hydrogène (en rouge). . . . .	77
3.7	Diagramme schématique montrant comment la constante de propagation $\beta$ est liée à l'indice effectif $n_{eff}$ , ainsi qu'au nombre d'onde dans l'air $k_{air}$ et le verre $k_{verre}$ . . . . .	78
3.8	Densité d'états photoniques représentatives d'une fibre PBG (a) et d'une fibre IC Kagomé (b) avec en encart la structure de la maille élémentaire de la gaine. . . . .	80
3.9	Exemples de modes de tube désignés par leur nombre radial ( $l$ ) et azimutal ( $m$ ). . . . .	82
3.10	Représentation schématique des nœuds de silice dans différente configuration géométrique : (a) Fibre Kagomé à couplage IC, (b) Fibre Kagomé à couplage IC à courbure négative et (c) Fibre tubulaire. Les fibres avec le moins de et/ou avec les noeuds de silice les plus éloignes présentent un meilleur confinement. . . . .	83
3.11	Évolution des pertes linéiques au cours des années pour les fibres creuses à CI, les fibres creuses à PBG et les fibres à cœur silice SMF (Telecom). . . . .	85
3.12	(a) Accord de phase entre le mode $LP_{11}$ du coeur d'air et $LP_{01}$ des tubes [82] . (insert) Illustration schématique du couplage de ces modes . (b) Représentation de l'insertion d'une maille tubulaire dans une maille Kagomé donnant une fibre dite hybride. . . . .	88
3.13	Étude sur l'ajout de façon séquentielle de la gaine de Kagomé autour de la structure tubulaire dans la conception d'une fibre hybride. (a) Résultats de simulation CL pour des conceptions de fibres avec différentes valeurs de $\xi$ (voir texte pour la définition). (b) Valeurs CL pour deux valeurs de fréquence normalisée choisies ( $F = 1,66$ et $2,58$ ) . . . . .	90

3.14	Résultats des simulations des pertes par confinement du mode fondamental pour les conceptions de fibres (I) gaine à 6 tubes, (II) gaine à 6 tubes avec une barre, (III) gaine nested circulaire avec une connexion rod, (IV) gaine de tubes conjoints, (V) gaine nested, (VI) gaine hybrides avec tube de support et (VII) gaine hybrides idéales. . . . .	91
3.15	HOMER calculé en fonction de la longueur d'onde pour les différentes conceptions de fibres étudiées. . . . .	92
3.16	(a) Schéma du principe de "stack and draw", (b) photo d'une préforme "primaire", (c) photo de préforme étirée. . . . .	93
3.17	(a) Section transversale de la fibre HCPCF hybride Kagomé-tubulaire fabriquée, avec une vue agrandie sur l'attache reliant les tubes et la gaine Kagomé. (b) Résultats de la mesure expérimentale (courbe noire), CL simulée et TL pour le mode fondamental (ligne pointillée rouge et lignes rouges respectivement), et pour les deux premiers HOMs (lignes bleue et verte). (c) Représentation théorique des raies spectrales Stokes et anti-Stokes générées par un laser pompe centré à 1030 nm pour la transition Raman rotationnelle $S_{00}(1)$ de la molécule $H_2$ . . . . .	94
3.18	(a) Résultats de mesure $S^2$ pour une fibre longue de 10 mètres. (b) Profils de puissance normalisée et de champ proche à la sortie de la fibre à 1064 nm en fonction du décalage d'entrée de la fibre. . . . .	95
4.1	(a) Configuration expérimentale utilisée pour caractériser le peigne Raman généré par DRS. (b) Photographie du set-up expérimental centrée sur la partie intégrant la fibre creuse. (c) Rapport $r$ en décibels révélant le poids du premier mode STM par rapport aux suivants. La zone jaune correspond aux situations où le premier mode STM domine fortement. En gris, la zone de travail atteignable par notre banc expérimental est rajoutée. . . . .	100
4.2	Spectres Raman mesurés à la sortie de la fibre remplie de $H_2$ à 20 bars en fonction de l'énergie du laser pompe et pour des durées d'impulsion variables de $\tau_L = 2$ ps, $\tau_L = 3$ ps, $\tau_L = 5$ ps et $\tau_L = 10$ ps. . . . .	102
4.3	Évolution de la puissance optique des différentes raies du peigne Raman (pompe, 1 <sup>er</sup> Stokes, 2 <sup>ème</sup> Stokes, 1 <sup>er</sup> anti-Stokes) en fonction de l'énergie du laser d'entrée et pour des durées d'impulsion variables de $\tau_L = 2$ ps, $\tau_L = 3$ ps, $\tau_L = 5$ ps et $\tau_L = 10$ ps. . . . .	103
4.4	Image du champ proche obtenue à la caméra infrarouge aux longueurs d'onde de la pompe (a), du premier Stokes (b) et du premier anti-Stokes (c). . . . .	103

4.5	(–) Traces d'autocorrélation mesurées en sortie de la fibre remplie de 20 bars d' $H_2$ pour différentes énergies laser d'entrée et durées d'impulsions $\tau_L = 2$ ps, $\tau_L = 3$ ps, $\tau_L = 5$ ps et $\tau_L = 10$ ps. (– –) Le fit utilisé correspond à une sécante hyperbolique au carré où $\sigma_{\text{deconv}}$ représente la largeur à mi-hauteur de cet ajustement déconvolué. . . . .	104
4.6	(a) Rappel du schéma du dispositif expérimental et spectre Raman généré dans la HCPCF à CI envoyé vers un écran noir positionné après un réseau de diffraction. (b) La structure spectrale passe d'un peigne de fréquences à un supercontinuum, ici pour une puissance fixe de la pompe de 10 W. (c) Graphiques montrant la puissance spectrale mesurée en fonction de la puissance moyenne de la pompe à l'entrée de la fibre, pour des durées d'impulsion de pompe de 1 ps, 2 ps et 10 ps. (d) Graphiques montrant la puissance spectrale en fonction de la durée de l'impulsion de la pompe, avec une puissance moyenne de 280 mW, 2 W et 15 W à l'entrée de la fibre. . . . .	105
4.7	Ratio entre la puissance optique induite par Kerr (SPM) et la DRS, en fonction à la fois de la puissance d'entrée moyenne (en Watts) et de la durée de l'impulsion de pompe (en picosecondes). La ligne grise solide correspond à un ratio de $-30$ dB, où la DRS domine la lumière Kerr de trois ordres de grandeur. Les marqueurs noirs représentent les points expérimentaux correspondant au même ratio. . . . .	108
4.8	(a) Spectres Raman enregistré en sortie de fibre remplie de 20 bars d' $H_2$ pour des fréquences de répétition du laser variables à énergie et durée fixes ( $E_L = 8 \mu\text{J}$ et $\tau_L = 3$ ps). (b) Images prises au niveau de la fibre montrant un changement de couleur avec la cadence du laser. . . . .	109
4.9	Configuration expérimentale utilisée pour caractériser la structure temporelle et la cohérence des peignes Raman. (Photo) Photographie de l'interféromètre à somme de fréquences. (En bas) Représentation schématique du spectre Raman en sortie de fibre (1), après le filtre (2) et après le cristal BBO (3) dans la configuration où le filtre passe-bande sélectionne uniquement la pompe $\omega_0$ et le Stokes $\omega_{-1}$ . . . . .	110

4.10	Impact des fluctuations de phase de la ligne de Stokes sur les mesures SFI. (a) et (b) montrent en lignes rouges continues les contributions à $2\Omega_0$ et $2\Omega_{-1}$ . À titre de comparaison, les lignes noires en pointillés présentent les profils d'intensité des impulsions de pompe et de Stokes. (c) Contribution à $\Omega_0 + \Omega_{-1}$ lorsque aucune fluctuation de phase n'est prise en compte. La réduction du contraste autour de $\pm 1,6$ ps est due au délai de 1 ps choisi entre les impulsions de pompe et de Stokes. (d) Contribution à $\Omega_0 + \Omega_{-1}$ à de courts retards pour différentes valeurs de l'écart type des fluctuations de phase de la ligne de Stokes (de $\sigma_{-1} = 0$ à $\sigma_{-1} = \frac{3\pi}{4}$ ). (e) Contraste attendu des oscillations en fonction de l'écart type des fluctuations de phase de la ligne de Stokes. . . . .	113
4.11	:(Gauche) Spectre optique mesuré après le filtrage de l'ensemble des raies du peigne pour ne garder que les contributions de la pompe et du Stokes. (Droite) Spectre optique correspondant enregistré en sortie du cristal non linéaire BBO.	114
4.12	(a-c) Traces temporelles SFI des raies à $2\Omega_0$ et $2\Omega_{-1}$ , ainsi que $\Omega_0 + \Omega_{-1}$ pour $\epsilon_L = 1,8 \mu\text{J}$ , $\tau_L = 3$ ps. Dans (a), la ligne pointillée verte montre les auto-corrélations de l'impulsion de pompe avant la fibre creuse, mettant en évidence la réduction de sa largeur temporelle après propagation dans le milieu Raman actif. Dans (a) et (b), la ligne noire présente les profils temporels d'intensité des raies de pompe et de Stokes. (d), Zoom de la trace temporelle (c) autour du délai zéro, démontrant un contraste proche de l'unité. La ligne noire est un ajustement sinusoïdal. . . . .	115
4.13	Contraste du battement pompe-Stokes pour des puissances et des largeurs temporelles d'impulsion laser variables. (insert) Traces temporelles SFI pour la raie pompe-Stokes pour $\epsilon_L = 2 \mu\text{J}$ , $\epsilon_L = 2,5 \mu\text{J}$ , $\epsilon_L = 3 \mu\text{J}$ , $\epsilon_L = 4 \mu\text{J}$ et $\epsilon_L = 5 \mu\text{J}$ , et pour les largeurs d'impulsion $\tau_L = 3$ ps et $\tau_L = 5$ ps. . . . .	116
4.14	(b-c) Trace temporelle expérimentale de l'interféromètre à somme de fréquences (SFI) pour la raie de pompe-Stokes pour $\epsilon_L = 1,5 \mu\text{J}$ , $\epsilon_L = 2,5 \mu\text{J}$ , $\epsilon_L = 4 \mu\text{J}$ et $\epsilon_L = 6 \mu\text{J}$ à $\tau_L = 3$ ps. (d-f) Traces temporelles attendues de l'interféromètre SFI calculées à partir de la connaissance des champs de Stokes et de pompe à la sortie des fibres. Ces champs sont obtenus par la résolution numérique des équations de Maxwell-Bloch. . . . .	117



4.15	Traces temporelles expérimentales de l'interféromètre à somme de fréquences (SFI) pour les raies de pompe-pompe (a), pompe-Stokes (b) et Stokes-Stokes (c) fait avec $\epsilon_L = 2,5 \mu\text{J}$ (1), $\epsilon_L = 2,5 \mu\text{J}$ (2), $\epsilon_L = 4 \mu\text{J}$ (2) et $\epsilon_L = 6 \mu\text{J}$ (4) à $\tau_L = 3 \text{ ps}$ . (d-f) Traces temporelles attendues de l'interféromètre SFI calculées à partir de la connaissance des champs de Stokes et de pompe à la sortie des fibres. Ces champs sont obtenus par la résolution numérique des équations de Maxwell-Bloch. . . . .	118
4.16	(a) Trace temporelle de la raie Stokes / anti-Stokes à $\Omega_{-1} - \Omega_1$ pour $\tau_L = 3 \text{ ps}$ et $\epsilon_L = 2,5 \mu\text{J}$ . (b), Zoom de la trace temporelle autour du délai zéro, démontrant un contraste proche de l'unité. La ligne noire est un ajustement sinusoïdal. (c) Spectre optique envoyé dans l'interféromètre à somme de fréquences (SFI) après filtrage. (d) Contrastes mesurés pour plusieurs puissances de pompage, pour $\tau_L = 3 \text{ ps}$ et $\epsilon_L = 5 \mu\text{J}$ . . . . .	119
4.17	Traces temporelles SFI pour la raie Stokes / anti-Stokes pour $\epsilon_L = 2 \mu\text{J}$ , $\epsilon_L = 2,5 \mu\text{J}$ , $\epsilon_L = 3 \mu\text{J}$ , $\epsilon_L = 4 \mu\text{J}$ et $\epsilon_L = 5 \mu\text{J}$ , et pour les largeurs d'impulsion $\tau_L = 3 \text{ ps}$ et $\tau_L = 5 \text{ ps}$ . . . . .	120
4.18	(a) Trace temporelle de la 1ère raie de Stokes / 2ème raie de Stokes à $\Omega_{-1} - \Omega_{-2}$ pour $\tau_L = 3 \text{ ps}$ et $\epsilon_L = 3,3 \mu\text{J}$ . (b) Spectre optique envoyé dans l'interféromètre à somme de fréquences (SFI) après filtrage. (c), Zoom de la trace temporelle autour du délai zéro, démontrant un contraste proche de l'unité. La ligne noire est un ajustement sinusoïdal. . . . .	121
4.19	(Gauche) Spectre optique à la sortie de la fibre à cristaux photoniques à cœur creux (HCPCF) pour $\epsilon_L = 37,4 \mu\text{J}$ et $\tau_L = 3 \text{ ps}$ . (Droite) Spectre optique après le cristal non linéaire BBO à délais nul. . . . .	122
4.20	Traces temporelles SFI des raies associées au spectre de la figure 4.19. . . . .	123
4.21	Zoom de la trace temporelle (figure 4.20) autour du délai zéro. . . . .	124

5.1	Résultats numériques obtenus pour deux impulsions pompe à l'entrée de la fibre de durée d'impulsion 3 ps, d'énergie 2 μJ et séparées d'un délai de 1 ns (a), 2 ns (b), 4 ns (c) et 6 ns (d) dans le cas où aucune fluctuation de phase n'est prise en compte. (haut) Profils temporels de l'intensité de la pompe (en bleu) et de l'intensité du Stokes (en rouge) à la sortie de la fibre, profils temporels de l'intensité de la pompe (en pointillé bleu) à l'entrée de la fibre et profils temporels de l'intensité du Stokes après application d'un délai de 0, 83 ps entre le Stokes et la pompe pour la première impulsion (haut, gauche) et pour la deuxième impulsion (haut, droite). (bas) Traces temporelles simulées d'un interféromètre à somme de fréquences (SFI) croisées entre la première et la deuxième impulsion : (bas, gauche) Contributions croisées à $2\omega_0$ et $2\omega_{-1}$ . (bas, droite) Contributions croisées à $\omega_0 + \omega_{-1}$ . . . . .	129
5.2	Configuration expérimentale utilisée pour caractériser la cohérence inter-impulsionnelle des peignes Raman. (Photo) Photographie du set-up expérimental centrée sur la première ligne à retard amont de la fibre. . . . .	130
5.3	(a-b) Visibilité et phase relative extraite des franges d'interférence à délais nul (référence) obtenue en fonction de l'énergie des deux impulsions de 3 ps. (c) Spectres Raman utilisé pour faire les mesures sur la visibilité (première raie Stokes $\omega_{-1}$ , première raie anti-Stokes $\omega_1$ et la pompe $\omega_0$ ). (d) Exemples de Franges d'interférence obtenues à la caméra infrarouge. . . . .	131
5.4	Procédure utilisée pour extraire la visibilité et la phase à partir du motif d'interférence. (a) Franges d'interférence brutes observées à la caméra. (b) Franges d'interférence traitées avec Matlab (suppression du bruit et orientation des franges). (c) Ajustements gaussiens modulé par une fonction sinusoïdale (rouge) et données expérimentales normalisées (noir). (Ajustements) Équation utilisée pour extraire la visibilité et les informations sur les phases. . . . .	132
5.5	Visibilité et phase relative extraite des franges d'interférence de la pompe, du premier Stokes et du premier anti-Stokes pour des énergies allant de 0, 25 à 3 μJ en fonction du délais. . . . .	133
5.6	Visibilité extraite des franges d'interférence de la pompe, du premier Stokes et du premier anti-Stokes pour des délais compris entre 0 à 2 ns en fonction de l'énergie. . . . .	134
5.7	Exemples de Franges d'interférence obtenues pour une énergie de 2 μJ en fonction du délai. (A droite) Coupe (en bleu) obtenue au centre des franges d'interférence et ajustement (en rouge) utilisé pour en extraire la visibilité et la phase. . . . .	135

5.8	Phase relative extraite des franges d'interférence de la pompe, du premier Stokes et du premier anti-Stokes pour des délais compris entre 0 à 2 ns en fonction de l'énergie. . . . .	137
5.9	Configuration expérimentale utilisée pour caractériser la cohérence inter-impulsionnelle des peignes Raman. (Photo) Photographie du set-up expérimental centrée autour du spectromètre qui collecte le signal SFI. . . . .	138
5.10	Exemple de trace temporelle expérimentale obtenue avec la configuration utilisée pour caractériser la cohérence inter-impulsionnelle des peignes Raman. (a) Trace Frog. (b) Spectre à somme de fréquence. (c) Trace temporelle pour la raie pompe-pompe . (d) Trace temporelle pour la raie pompe-Stokes. (e) Trace temporelle pour la raie Stokes-Stokes. . . . .	139
5.11	Traces temporelles expérimentales de l'interféromètre à somme de fréquences pour les raies pompe-Stokes fait avec $E_L = 2,6 \mu\text{J}$ à $\tau_L = 3 \text{ps}$ et pour des délais entre les 2 impulsions compris entre 0 et 2 ns. . . . .	140
5.12	Zoom sur les traces temporelles expérimentales de l'interféromètre à somme de fréquences centrée autour de 0 pour la raies pompe-Stokes fait avec $E_L = 2,3 \mu\text{J}$ (bleu) , $E_L = 2,6 \mu\text{J}$ (vert) et $E_L = 3 \mu\text{J}$ (rouge) à $\tau_L = 3 \text{ps}$ et pour des délais entre les 2 impulsions compris entre 0 et 2 ns. (En noir) Ajustement avec une fonction gaussienne modulée par une sinusoïde. . . . .	141
5.13	(a) Contraste extrait des ajustements pour les énergies $E_L = 2,3 \mu\text{J}$ , $E_L = 2,6 \mu\text{J}$ et $E_L = 3 \mu\text{J}$ en fonction du délai entre les deux impulsions. (b) Valeurs de l'écart type des fluctuations de phase associées aux mesures de contraste (Voir figure 4.10) . . . . .	142
6.1	(a) Montage expérimental intégrant un modulateur acousto-optique (Dazzler) utilisé pour moduler en amplitude et/ou en phase les lignes du peigne Raman. (b) Modulation de la puissance de la pompe à l'aide du Dazzler. (c) Atténuation complète du premier Stokes et du premier anti-Stokes. (d) Chirp a ajouté à la pompe à l'aide du Dazzler. . . . .	147



# 1

## Introduction à la synthèse d'onde par voie optique

**Résumé :** *Ce premier chapitre introduira les éléments de base nécessaires à la compréhension du contexte général de cette thèse dont l'objectif à long terme est la réalisation de synthèses d'onde. Ainsi, nous aborderons tout d'abord brièvement les différents types de synthèse d'onde possibles ainsi que leurs applications. Ensuite, nous détaillerons plus spécifiquement la synthèse d'onde en optique et l'état de l'art concernant la génération de peigne de fréquence. Puis, nous développerons l'approche de la diffusion Raman stimulée en régime transitoire dans des fibres creuses, voie qui sera retenue et étudiée tout au long de mes travaux de thèse pour à terme réaliser la synthèse d'onde optique. Enfin, la dernière section présentera les objectifs et les chapitres du manuscrit.*

## Sommaire

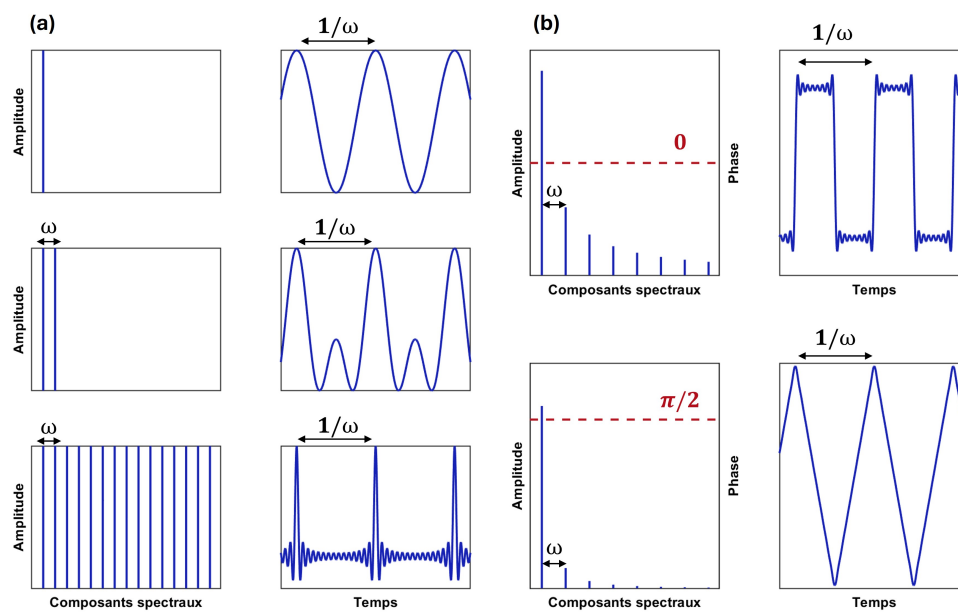
---

1.1	Contexte général autour de la synthèse d'onde . . . . .	<b>22</b>
1.2	Cas particulier de la synthèse d'onde en optique . . . . .	<b>24</b>
1.3	La diffusion Raman dans les fibres creuses . . . . .	<b>27</b>
1.4	Objectifs de la thèse . . . . .	<b>35</b>

---

## 1.1 Contexte général autour de la synthèse d'onde

La synthèse d'onde fait référence à la création contrôlée d'ondes électriques [1], mécaniques [2] ou optiques [3] qui reproduisent des caractéristiques spécifiques. Cette technique est utilisée dans divers domaines allant de l'électronique et des télécommunications en passant par la physique des lasers. La combinaison de plusieurs ondes simples est ainsi mise en oeuvre pour générer la forme d'onde souhaitée. Pour cela, un contrôle précis de la phase et de l'amplitude de chaque onde élémentaire est nécessaire. La manière la plus efficace de générer une telle forme d'onde arbitraire est de travailler sur un peigne spectral le plus large possible. En effet, la théorie de Fourier donne les relations qui existent entre les composantes spectrales de l'onde et de sa forme temporelle. Ainsi, une onde temporelle complexe peut se décomposer en une somme de fréquences simples. Avec un tel spectre, qui est par définition composé de lignes spectrales discrètes également espacées en fréquence (c'est-à-dire que chaque ligne a sa fréquence sous la forme de  $\omega_0 \pm n\omega$ , où  $n$  est un entier,  $\omega$  est la fréquence de modulation, et  $\omega_0$  est la fréquence fondamentale du peigne), une forme d'onde peut être générée en contrôlant indépendamment la phase et l'amplitude de chaque ligne spectrale. Un tel peigne cohérent et large signifie que le profil temporel de l'onde peut être synthétisé pour pratiquement n'importe quelle forme d'onde. La figure 1.1(a) montre un exemple de la manière dont un peigne simple composé de composants spectraux nous permet d'obtenir une forme d'onde différente en changeant le nombre d'harmoniques générées. La figure 1.1(b) illustre simplement la génération de différentes formes de signaux en contrôlant l'amplitude et la phase pour différentes composantes spectrales.



**Figure 1.1** – (a) À gauche : Peigne de fréquences dans le domaine spectral. À droite : son train d'impulsions correspondant dans le domaine temporel. (b) À gauche : intensité et phase des différentes lignes d'un peigne de fréquences dans le domaine spectral. À droite : forme du signal correspondant dans le domaine temporel.

Historiquement les premières démonstrations de synthèses d'onde ont été obtenues à partir d'ondes acoustiques pour créer des sons à l'aide d'instrument de musique [4]. Ces ondes acoustiques se réfèrent aux vibrations mécaniques qui se propagent à travers un milieu, généralement l'air mais aussi dans des matériaux comme l'eau ou les solides. Les principales gammes de fréquence associées aux ondes acoustiques sont les infrasons (inférieurs à 20 Hz), les sons audibles (compris entre 20 Hz et 20 kHz) et les ultrasons (supérieures à 20 kHz). Ensuite on retrouve les ondes électriques qui reposent sur le déplacement des électrons dans un matériau. En électronique, la synthèse d'onde est couramment utilisée pour générer des signaux de forme d'onde variées, tels que des signaux sinusoïdaux, carrés, triangulaires, etc et ayant des fréquences qui peuvent atteindre plusieurs dizaines de GHz. Ces signaux sont alors utilisés dans diverses applications principalement organisées autour des ordinateurs et des télécommunications pour faire de la modulation de fréquence, de la transmission d'information, de la mesure fréquentielle ou encore du calcul informatique [5-7]. Il est à noter que dans ce contexte, améliorer les performances se traduit par le besoin d'augmenter les fréquences des ondes. Une idée a alors été d'utiliser le photon comme support. En effet, les ondes optiques possèdent des fréquences de l'ordre de la centaine de THz soit jusqu'à cinq ordres de grandeur plus élevés que les fréquences atteignables en électronique. Les solutions technologiques qui vont permettre de mettre en œuvre



cette approche sont actuellement au cœur des développements de la communauté scientifique et s'inscrivent pleinement dans le contexte de mes travaux de thèse. La figure 1.2 résume les fréquences atteignables par les différentes technologies pour faire de la synthèse d'onde.

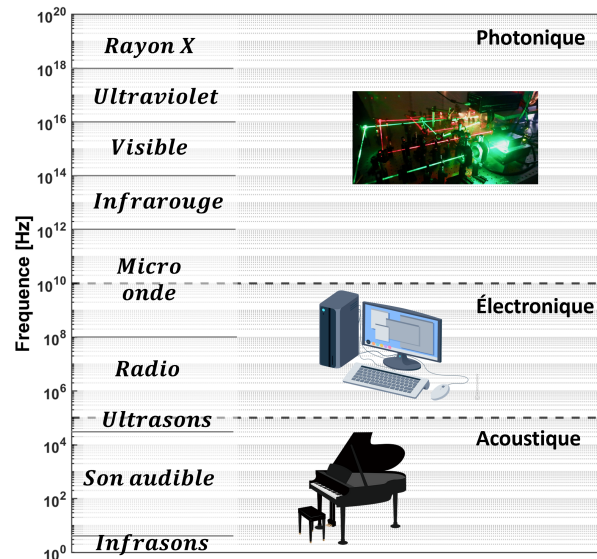
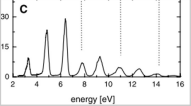
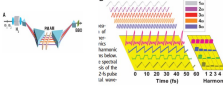
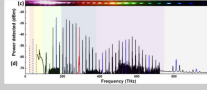
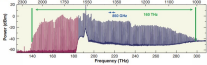


Figure 1.2 – Généralité sur les gammes de fréquence.

## 1.2 Cas particulier de la synthèse d'onde en optique

Dans le domaine de l'optique ou de la photonique, la capacité à générer une forme d'onde arbitraire est un enjeu majeur pour la communauté scientifique. Cela implique la mise au point de peignes multi-octaves comprenant des composants spectraux en onde continue (CW), permettant un contrôle précis de l'amplitude et de la phase de manière similaire à l'électronique. Jusqu'à très récemment, cette réalisation était considérée comme hors de portée. C'est pourquoi le terme de synthèse de forme d'onde en optique est synonyme de mise en forme d'impulsions, car la synthèse de la forme d'onde est encore limitée aux régimes impulsionsnels. Dans ce contexte, un effort important a été concentré sur la génération d'impulsions de plus en plus courtes, ce qui nécessite par la suite des techniques pour générer des peignes optiques sur plusieurs octaves. Cet effort est motivé à la fois par des quêtes scientifiques et technologiques. Par exemple, la capacité de générer des lasers à impulsions ultracourtes avec une résolution temporelle adéquate a ouvert de nouveaux domaines d'intérêt tels que la femtochimie [8] et l'émergence d'un domaine appelé l'attoscience [9, 10], comme en témoigne le prix Nobel obtenue par F. Krausz en 2023 [11]. Les récents développements dans le domaine de l'attoseconde ont

démonstré la possibilité d'étudier la dynamique électronique dans les atomes [12]. Cela est réalisé via la méthode de génération d'harmoniques élevées (HHG) à l'aide de lasers femtosecondes [13, 14] où des impulsions dans les régions de l'ultraviolet extrême (XUV) et des rayons X mous sont générées, ce qui conduit à la mise en forme d'impulsions. Bien que ces impulsions agissent comme des outils uniques, elles sont difficiles à contrôler en raison de préoccupations intrinsèques liées à la transmission des rayons X à travers les optiques. De plus, une limitation majeure de la HHG est l'efficacité de conversion photonique faible (typiquement  $10^{-6}$ ). Aussi, la nécessité d'utiliser des impulsions ultra-courtes avec une puissance de crête élevée ( $10^{15}$  W/cm<sup>2</sup>) pour l'excitation des gaz nobles et les difficultés techniques de cette méthode ont conduit à l'exploration de nouvelles méthodes alternatives pour surmonter l'ensemble de ces contraintes. Plusieurs techniques ont alors été proposées et démontrées au cours des 15 dernières années. Le Tableau 1.1 résume des techniques qui peuvent être de bon candidat pour faire de la synthèse de forme d'onde. Elles sont comparées en fonction de différents critères comme le type d'excitation (continue ou impulsionnelle), la largeur du spectre, la couverture spectrale, la tenue en puissance, le pas spectral ou encore le type de plate-forme utilisé.

	Plate-forme	Largeur du spectre	Couverture spectrale	Tenue en puissance	Pas spectral	Excitation	Etat de l'art
<b>Génération d'harmoniques élevées</b> [14] 	Espace libre	> 6 octaves	DUV-X	Elevées	700 THz	fs	Impulsion attoseconde
<b>Modulation moléculaire</b> [15] 	Espace libre	> 3 octaves	UV-IR	Elevées	10-200 THz	ns	Synthèse d'onde
<b>Peigne Raman dans une fibre creuse remplie de gaz</b> [16] 	Fibre à cœur creux	> 5 octaves	UV-IR	Elevées	10-200 THz	ps-ns/continue	Démonstration en cours
<b>Peigne Kerr</b> [17] 	Micro-résonateur	> 2 octaves	IR	Faible	GHz-THz	continue	-

**Table 1.1** – Méthodes possibles de synthèse d'onde et leurs propriétés distinctives : la génération d'harmoniques élevées, la modulation moléculaire, le peigne Raman dans les fibres creuses et le peigne Kerr .

Parmi les techniques pulsées, nous comptons la diffusion Raman stimulée (DRS) d'ordre élevé dans l'hydrogène ou le deutérium comme une méthode alternative prometteuse pour la génération d'un spectre lumineux ultra-large ayant une efficacité de conversion photonique élevée et un seuil non linéaire relativement bas [18-21]. Jusqu'à présent, il existe trois méthodes pour cette voie Raman : la méthode Raman en régime impulsionnel, la méthode de modulation moléculaire et la méthode Raman transitoire.

La première technique a été proposée par Nazarkin *et al.* [19], où ils ont démontré expérimentalement la génération d'ordres élevés de bandes secondaires Stokes et anti-Stokes dans un milieu excité en régime impulsif. Cela a été réalisé en exposant le milieu à une impulsion laser femtoseconde intense d'une durée plus courte que le temps de déphasage  $T_2$ . Ensuite, une deuxième impulsion de plus faible intensité et retardée se propageant dans le milieu excité subit une diffusion due à la modulation de son indice de réfraction par la vibration moléculaire. Cette technique a été capable de produire des impulsions aussi courtes que 3,8 fs dans la région proche de l'UV [22]. Cependant, son principal inconvénient est que la cohérence Raman générée est très faible.

La deuxième méthode est la méthode de modulation moléculaire. Dans ce régime, la durée des impulsions laser est beaucoup plus longue que le temps de déphasage  $T_2$ . Cette technique est considérée comme la plus prometteuse pour générer un spectre ultra-large avec une efficacité de conversion photonique élevée. Elle a été initialement suggérée et démontrée par Harris et ses collègues [23], où ils "préparent" adiabatiquement le milieu moléculaire cohérent en le stimulant avec deux lasers de haute puissance (pour une durée d'impulsion de l'ordre de la nanoseconde) dont la fréquence est légèrement désaccordée par rapport à la transition Raman  $\omega_R$ . Ensuite, l'indice de réfraction du matériau est modulé, ce qui génère des peignes colinéaires et mutuellement cohérents [23, 24]. Cependant, ce schéma présente certaines limitations, telles que la nécessité d'une paire de lasers de haute intensité et une longueur d'interaction faible en raison de la configuration en espace libre.

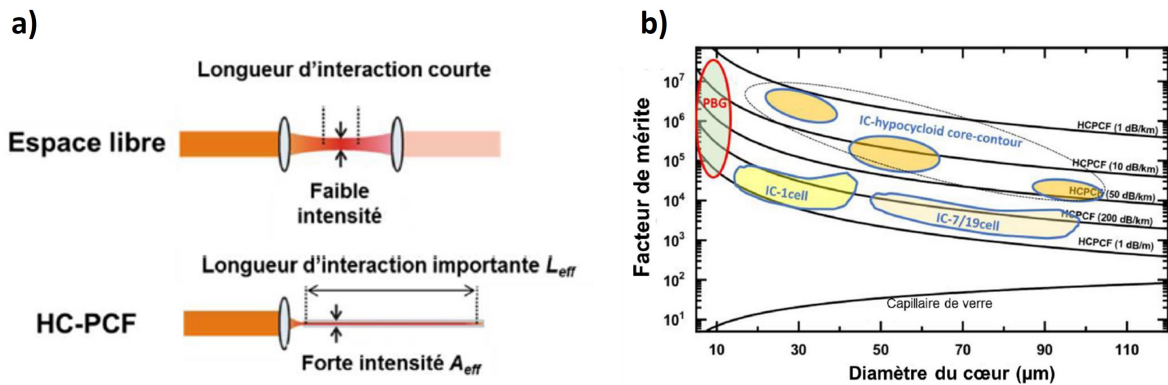
Enfin, la troisième méthode repose sur la méthode de la diffusion Raman stimulée dans le régime transitoire. C'est cette technique qui sera retenue et utilisée dans le cadre de mes travaux de thèse. Elle est généralement applicable lorsque la durée de l'impulsion laser est comparable ou plus courte que le temps de déphasage ( $T_2$ ) du milieu Raman [20, 21, 25]. Cela est à l'origine expérimentalement réalisé à l'aide d'un laser mégawatt délivrant des impulsions limitées par la transformée de Fourier (Fourier transform-limited pulse) sous-picoseconde. En parallèle à cela, et grâce au développement des fibres à cristal photonique (HC-PCF), il a été démontré dans [26] que la génération de peignes Raman avec une largeur de bande d'environ 70 THz dans ces fibres creuses guidant par bande interdite pouvait être réalisée en SRS transitoire avec des impulsions relativement longues ( $> 10$  ns). Cela a été suivi peu de temps après par cette fois si la génération de peignes Raman sur plusieurs octaves à l'aide de HC-PCF Kagome guidant par couplage inhibé qui offre une transmission spectrale non limitée [27]. Une autre avancée dans ce régime a été réalisée par Wang *et al.* en 2010 [28], où il a été démontré une cohérence mutuelle élevée obtenue à partir d'un peigne généré par des photons

Stokes émis spontanément depuis le bruit quantique. Ces techniques seront détaillées dans la prochaine section 1.3. Bien que cette approche basée sur la diffusion Raman stimulée dans le régime transitoire soit très prometteuse, elle reste relativement récente (initiée et développée historiquement au sein de notre groupe). Par la suite un des objectifs de cette thèse sera de poursuivre ces études et continuer à explorer davantage la SRS en régime transitoire en mettant en place des bancs expérimentaux pour caractériser la cohérence intra et inter-impulsionnelles avec des lasers ultra-courts qui peuvent aujourd'hui être accordés simplement en énergie, en cadence et en durée d'impulsion.

La dernière partie du Tableau 1.1 concerne la génération de peigne en régime continu (CW), où un peigne cohérent en fréquence et un large spectre ( $\sim 1000 \text{ THz}$ ) sont l'une des exigences clés pour la réalisation d'un synthétiseur d'ondes optiques. Une des méthodes de génération de peigne en régime continu repose sur l'utilisation de micro-dispositifs pour venir exacerber les non-linéarités de type Kerr [29]. Le générateur de peigne est dans ce cas basé sur un micro-résonateur sur silicium via un oscillateur paramétrique optique [30]. Cependant, cette méthode reste actuellement trop limitée en termes de manipulation de puissance et de bande passante.

### 1.3 La diffusion Raman dans les fibres creuses

Grâce au développement des fibres optiques à cœur creux, il est désormais possible de générer plus aisément des peignes de fréquence durant la propagation guidée de la lumière. Aujourd'hui nous comptons deux familles de HC-PCF : la HC-PCF à bande interdite photonique (PBG) et la HC-PCF à couplage inhibé (IC). Dans le premier cas, la structure de la gaine crée une bande interdite photonique favorisant le confinement des modes de cœur, tandis que dans le second type, le gaine est "peuplé" d'un continuum de modes fortement déphasés par rapport aux modes du cœur. Plus de détails sur les mécanismes de guidage et performances associés seront donnés dans la chapitre 3 dédié aux développements de ces fibres creuses. Ainsi, ces deux types de fibres présentent la capacité de confiner microscopiquement la lumière dans un gaz sur de longues distances. Ces attributs ont conduit à une large gamme d'applications novatrices, notamment sur les effets non linéaires exacerbés dans les gaz [31] et le guidage de particules [32]. En raison de la taille du cœur à l'échelle micrométrique et de la longueur d'interaction de plusieurs mètres, la lumière et les gaz peuvent interagir dans ces fibres avec une très grande efficacité, ce qui en fait un outil idéal pour l'optique non linéaire en phase gazeuse (voir la figure 1.3(a) et en particulier pour la diffusion Raman stimulée qui nous intéresse pour mes travaux à venir.



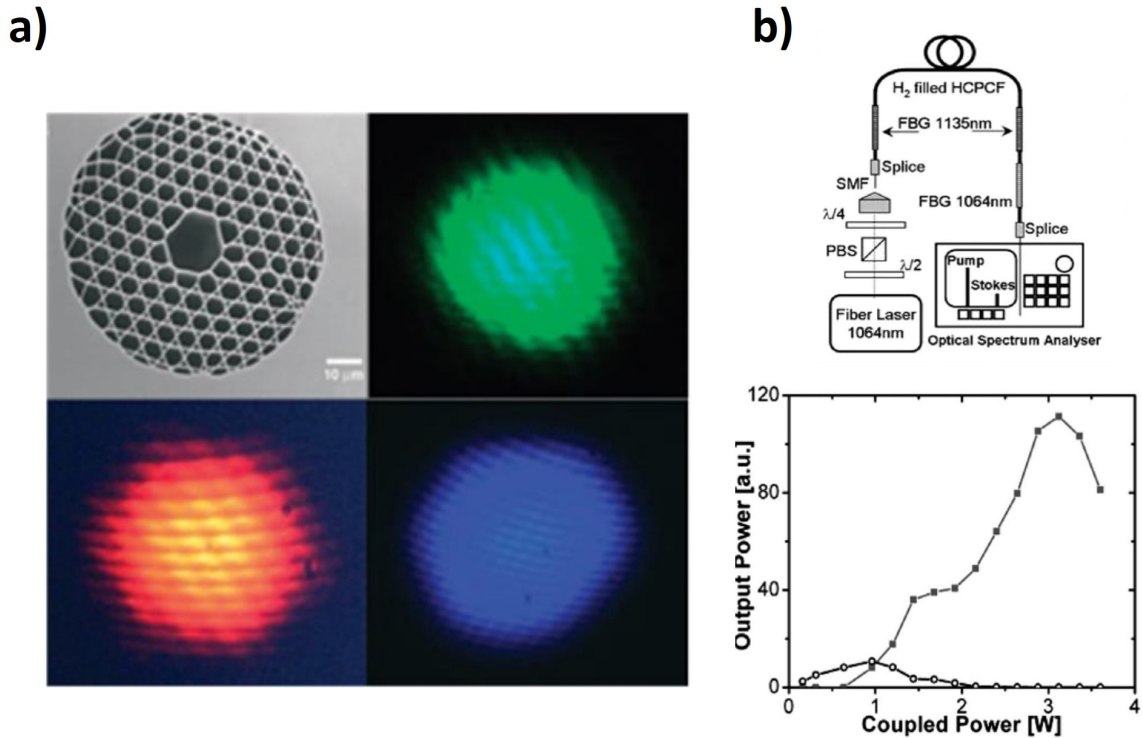
**Figure 1.3** – (a) Comparaison schématique de l'interaction lumière-gaz dans une configuration en espace libre et dans une configuration utilisant une fibre creuse. (b) Facteur de mérite pour plusieurs types de fibres creuses en fonction du diamètre de cœur et des pertes de propagation.

Ce point est illustré par la figure de mérite (FOM - *Figure Of Merit*) qui reflète le gain d'une utilisation fibrée par rapport au cas d'une configuration en espace libre limitée par la longueur de Rayleigh. Ce facteur est défini comme étant proportionnel à la longueur d'interaction  $L_{int}$  divisée par sa surface effective  $A_{eff}$  :

$$\text{FOM} = \lambda \frac{L_{int}}{A_{eff}} \quad (1.1)$$

Dans le cas des fibres creuses ce facteur peut atteindre des valeurs extrêmement élevées jusqu'au million du fait que les dimensions transverses du cœur de ces fibres sont de quelques dizaines de micromètres et leur longueur d'interaction n'est plus limitée (figure 1.3(b)). De tels facteurs de mérite permettant d'exacerber les effets non linéaires (tels que l'effet Raman) synonyme de seuils en énergie beaucoup plus bas (micro-joules) que pour une configuration en espace libre (milli-joules), les rendant particulièrement attrayante pour les applications qui sont ici envisagées. En effet, historiquement dans les années 1990 les premiers travaux de diffusion Raman stimulée ont été menés dans des cellules hermétiques contenant du gaz sous haute pression combinées à une excitation laser faite par des faisceaux hautement focalisés en espace libre [33]. Par la suite pour augmenter la longueur de l'interaction avec le milieu gazeux, d'autres expériences ont été menées sur des capillaires [34]. Cependant ces guides creux sont limités par leurs pertes de propagation très élevées, de l'ordre de plusieurs dB/m et des pertes de courbure rédibitoires. Il fallut ensuite attendre l'apparition des premières fibres creuses pour réellement disposer d'une plateforme performante capable d'associer la propagation d'intensité élevée avec des atténuations faibles.

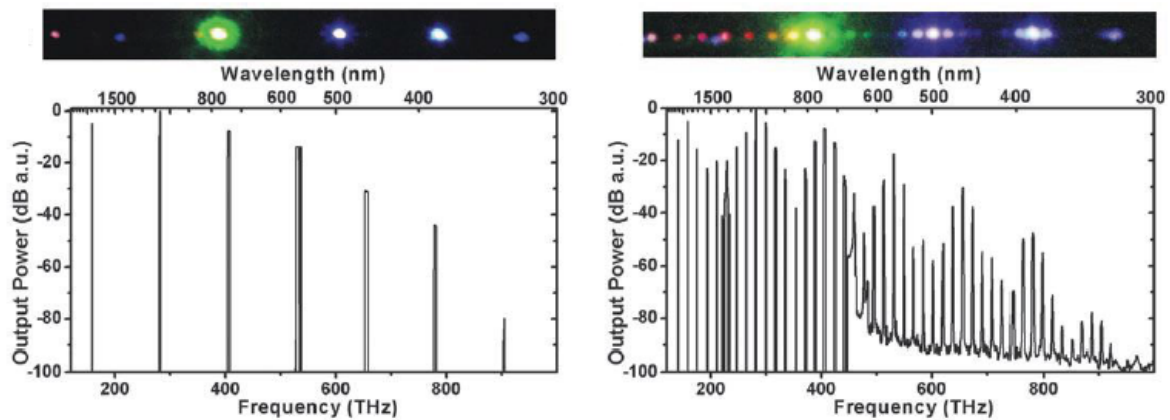
En 2002, Benabid *et al.* ont réalisés la première démonstration de diffusion Raman stimulée à bas seuil en utilisant une fibre creuse à maille Kagomé (figure 1.4(a)) [35].



**Figure 1.4** – (a) Coupe transverse de la première fibre à maille Kagomé fabriquée, ainsi que les images des champs lointains des raies Stokes générés [35]. (b) Montage expérimental et génération en régime continu du premier Stokes rotationnel (ligne de cercles) avec un seuil de génération Raman inférieur à 1 watt [36].

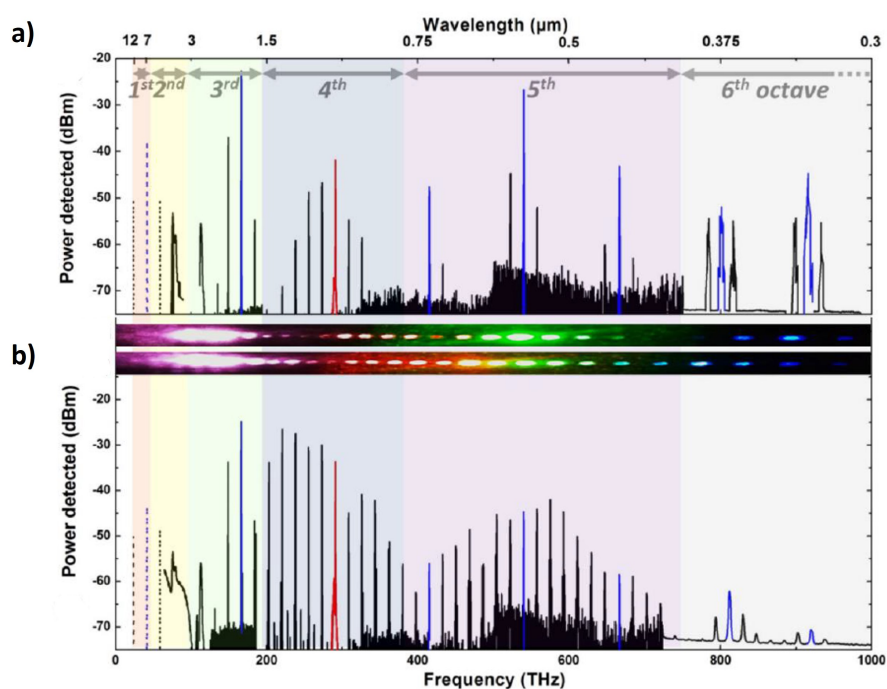
Le laser de pompe émettait des impulsions de 6 ns à 532 nm et la fibre était remplie d'hydrogène à 17 bars. Le seuil de génération de Stokes était inférieur au microjoule et l'efficacité de conversion autour de 30%. En 2004, avec une source émettant des impulsions de 800 ps à 1064 nm, cette efficacité a pu être augmentée à des valeurs de plus de 90% [31]. L'année suivante, le passage du régime Raman de l'état transitoire à l'état permanent a été observé à l'aide d'impulsions de durée 14 ns. Une fibre PBG remplie d'hydrogène, d'une longueur de 10 m et d'un diamètre de cœur égal à 7 μm a été utilisée dans ces travaux. La valeur seuil était alors de 150 nJ [26]. Enfin, en 2007, toujours en utilisant une fibre PBG remplie d'hydrogène, mais avec cette fois-ci un laser d'excitation continu, un seuil de génération Raman inférieur à 1 watt seulement a été démontré avec une efficacité de conversion à la limite quantique (99,99%, figure 1.4(b)) [36]. Cette même année un peigne Raman sur 3 octaves généré par

effet Raman stimulé dans une fibre creuse a pu être généré [27] (figure 1.5).



**Figure 1.5** – Génération d'un peigne Raman sur 3 octaves en régime d'impulsion ns pour une polarisation incidente linéaire et rotationnelle [27].

Ainsi, comme on vient de la voir, la diffusion Raman stimulée dans les fibres creuses remplies de gaz est un moyen très efficace pour générer des peignes de fréquence très large. En effet elle permet de générer des ordres supérieurs de raies Stokes et d'anti-Stokes, chaque nouvelle raie Raman devenant à son tour une pompe pour la raie Raman d'ordre supérieur suivante. Le record de largeur a été obtenu en générant un peigne sur 5 octaves (figure 1.6), de 321 nm à 12,5  $\mu\text{m}$  avec des écarts fréquentiels de 17,6 THz et 124,8 THz correspondant à la résonance Raman rotationnelle et vibrationnelle de la molécule d'hydrogène respectivement [37].

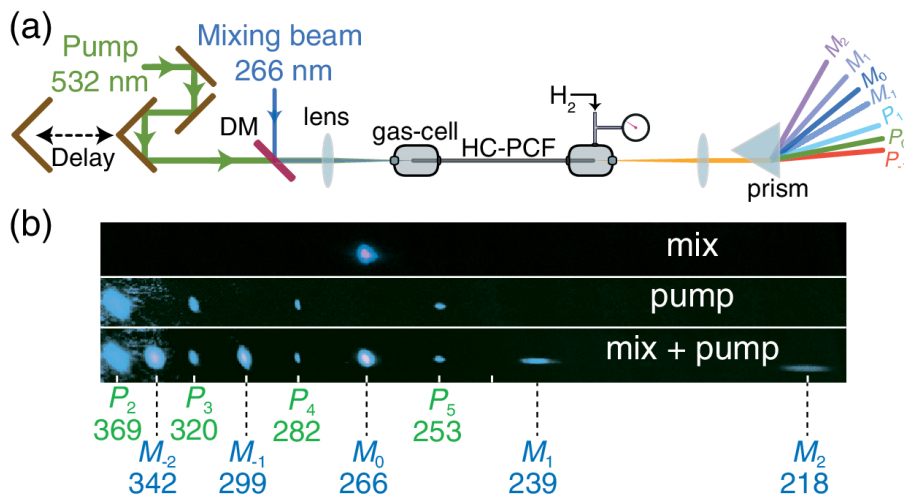


**Figure 1.6** – Peigne Raman généré sur plus de 5 octaves en régime ps [37], (a) dans le cas d'une polarisation de pompe linéaire et (b) avec une polarisation de pompe circulaire.

Le laser utilisé fournissait des impulsions de 27 ps à 1030 nm avec une énergie par impulsion de 22,7  $\mu\text{J}$ . Dans cet exemple, le milieu Raman était constitué d'une fibre Kagomé de 3 m de long et d'un coeur de 48  $\mu\text{m}$  de diamètre, remplie d'hydrogène à une pression de 24 bars. Des peignes moins larges mais plus denses ont également pu être générés avec des lignes spectrales séparées de quelque dizaine voir centaines de THz. Ainsi, en utilisant un mélange gazeux d'hydrogène, de deutérium et de xénon, Hosseini *et al.* ont pu générer un peigne s'étendant de 280 nm à 1  $\mu\text{m}$ , avec un espacement de 2,2 THz (soit 135 raies) en utilisant un laser nanoseconde à 532 nm et avec des impulsions de 5  $\mu\text{J}$  [38]. De même au sein de notre groupe, nous avons pu obtenir un peigne présentant plus de 100 lignes spectrales s'étendant sur plus de 220 THz de 800 nm à 1710 nm et avec des écarts fréquentiels de 1,75 THz dans une fibre creuse remplie de 40 bars de deutérium et excité par un laser picoseconde de haute puissance ( $> 14\text{ W}$ )[16].

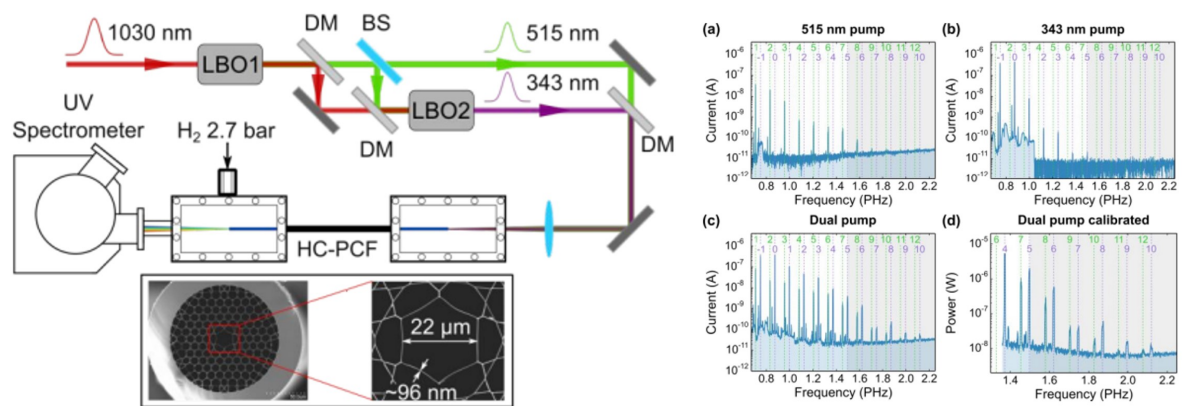
Des résultats plus récents ont permis également de réaliser des avancées importantes dans le domaine de l'UV, qui présente un intérêt applicatif fort par exemple en biologie et en chimie. Les travaux de Mridha *et al.* [39] ont ainsi démontré un large peigne Raman dans l'UV en pompant avec un laser à 532 nm combiné à un laser UV à 266 nm dans une fibre creuse remplie d'hydrogène, le tout avec une efficacité de conversion proche de 60% (figure 1.7).





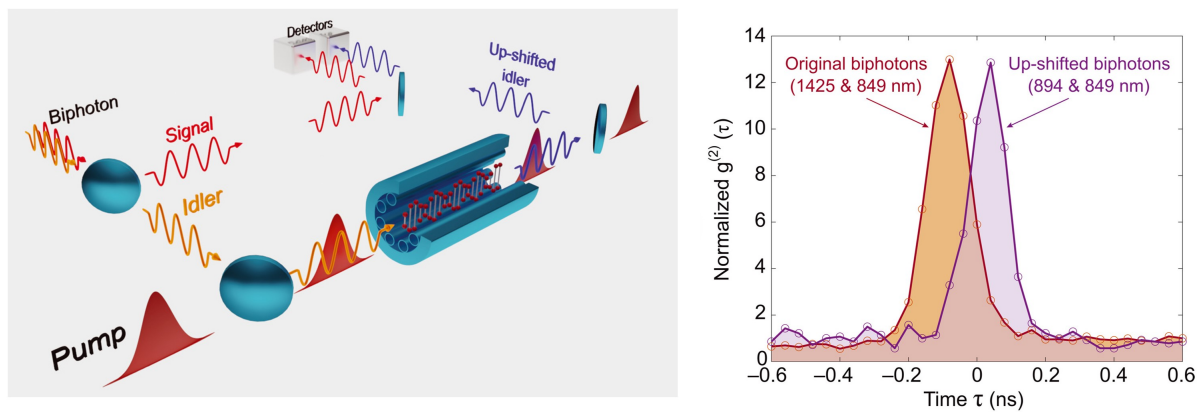
**Figure 1.7** – Montage expérimental utilisé pour démontrer des peignes Raman dans l’UV à forte efficacité de conversion pompé au moyen de deux faisceaux dans une fibre creuse remplie d’hydrogène [39].

Ces mêmes auteurs ont aussi étudié la diffusion Raman stimulée de l’onde rétrodiffusée dans les gaz [40], qui offre une méthode prometteuse pour comprimer et amplifier des impulsions laser. Ils ont observé pour la première fois ce phénomène dans une fibre creuse de type Kagomé remplie d’hydrogène quand des pressions élevées avoisinant les 100 bars sont mises en jeu. Aussi, des efficacités de conversion de plus de 40% ont été atteintes pour la génération de lumière rétrodiffusée à partir d’une pompe à 532 nm. L’efficacité a même atteint 65% lorsque ce processus a été amplifié par l’onde Stokes générée co-propageante qui est réinjectée en sortie de fibre par l’ajout d’un miroir réfléchissant. À des puissances de pompe élevées, ce signal rétrodiffusé s’est avéré plus fort que son homologue guidé dans le sens de l’axe de propagation. Dans la même optique, les travaux de Tyumenev *et al.* [41] ont permis d’obtenir un peigne dans l’UV pouvant descendre jusqu’à des longueurs d’onde de 141 nm. Leur approche consiste ici à utiliser deux pompes, une dans le vert et une dans l’UV, dans une fibre creuse remplie d’hydrogène pour étendre ce peigne (figure 1.8).



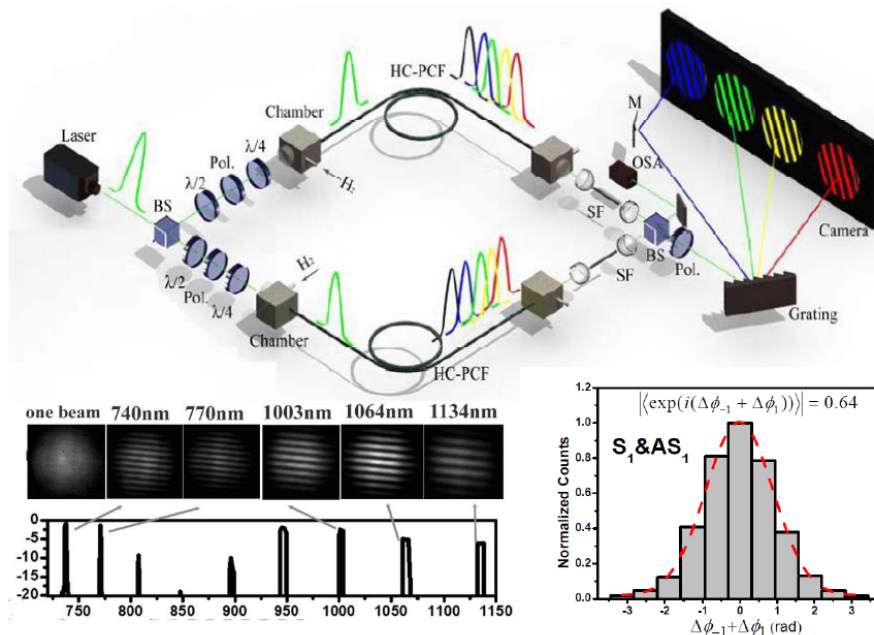
**Figure 1.8** – Montage expérimental utilisé pour étendre les peignes dans l'UV (jusqu'à 141 nm) grâce à une double pompe injectée dans la fibre creuse [41].

Il est à noter, que ces travaux sur les peignes de fréquence peuvent également trouver de nouvelles applications comme en optique quantique. En effet, les peignes Raman peuvent être une voie pour réaliser la conversion de fréquence tout en préservant la corrélation quantique. Les travaux de Tyumenev *et al.* [42] ont rapporté en 2022 un premier résultat dans ce sens en démontrant une préservation efficace (jusqu'à 70%) de l'état quantique des photons obtenue par up-conversion et par modulation moléculaire dans des fibres creuses remplies de gaz d'hydrogène. En combinant une impulsion de pompe cohérente (de haute intensité) avec une source quantique (de faible intensité) basée sur la down-conversion paramétrique (générant des paires de photons signal/idler), les auteurs ont montré que les photons d'idler peuvent être convertis de 125 THz à l'aide du processus de diffusion Raman. Ce processus présente l'avantage de générer des photons tout en préservant leur état quantique sur une large gamme spectrale et ce, facilement ajustable à d'autres sources quantiques (figure 1.9).



**Figure 1.9** – Modulation moléculaire Raman à base de fibres creuses pour les applications quantiques [42].

Enfin, il reste à noter que pour pouvoir manipuler les peignes de fréquence Raman dans l'optique de réaliser la synthèse d'onde, il est nécessaire d'étudier la cohérence des différentes raies générées. Les travaux Wang *et al* [28] ont démontré en 2010 l'autocohérence des raies Raman dans le cas d'un laser pompe de 12 ns à 1064 nm cadencé à 50 Hz. Ces résultats ont été obtenus avec un interféromètre de Mach-Zender (voir figure 1.10) où le faisceau initial a été divisé en deux parties de puissance identique (30 mW) pour être focalisé vers deux fibres Kagomé ayant un cœur de diamètre de 30  $\mu\text{m}$  et de 70 cm de longueur remplie avec 15 bars d'hydrogène. Les faisceaux ont ensuite été recombinés sur une caméra CCD pour observer les figures d'interférences. Ainsi la cohérence intra-impulsionnelle des raies Stokes générées par DRS a été démontrée dans des fibres creuses dans le cas du régime nanoseconde.



**Figure 1.10** – Démonstration expérimentale de la cohérence intra-impulsionnelle par diffusion Raman stimulé [28] .

Cependant, il reste à démontrer qu'il est possible, du moins dans certaines conditions, d'atteindre une cohérence inter-impulsionnelle. En effet, à ce stade, bien que des impulsions Stokes peuvent être obtenues de façon cohérente, il demeure que les impulsions ainsi générées consécutivement par le processus décrit ici sont toutes différentes et ne partagent pas de relation de phase. Une analyse plus approfondie de la cohérence intra-impulsionnelle et inter-impulsionnelle est donc nécessaire et sera menée dans les chapitres 4 et 5. Aussi, l'impact d'une durée de l'impulsion pompe plus courte (régime picoseconde) sera considéré.

## 1.4 Objectifs de la thèse

Dans ce cadre, le sujet de ma thèse consiste à développer et à utiliser une plateforme permettant de produire des peignes de fréquence cohérents en exploitant la diffusion Raman stimulée dans le régime transitoire à l'intérieur de fibres creuses. Plus précisément, l'objectif est d'explorer, à l'aide d'un laser ultra-rapide polyvalent et d'une fibre creuse monomode spécialement fabriquée, la cohérence intra-impulsionnelle et inter-impulsionnelle d'un peigne Raman, puis d'étudier les possibilités offertes pour réaliser une synthèse d'onde optique.

Ainsi, le chapitre 2 abordera le cadre théorique de mes travaux en décrivant la diffusion Raman stimulée en régime impulsionnel. Les équations de Maxwell-Bloch seront exposées en

détail, explorant les divers régimes possibles de la DRS et fournissant une résolution modale du champ Stokes, ainsi que leurs implications sur la cohérence Raman. En mettant particulièrement en avant l'intérêt du régime transitoire pour générer des raies Raman cohérentes, on soulignera la nécessité d'utiliser une fibre creuse à contenu unimodal. Des simulations numériques seront également réalisées, dans le cadre d'une approche simplifiée, où une pompe non déplétée favorisera l'amplification du champ Stokes à partir du bruit quantique. Enfin, cette approche sera étendue à une pompe déplétée dans la dernière partie du chapitre.

Le chapitre 3 se concentrera sur le développement de fibres optiques à cœur creux adaptées aux applications non linéaires Raman. Après un bref rappel historique sur ces fibres creuses, la première partie portera sur le mécanisme de guidage par couplage inhibé et ses caractéristiques principales, ainsi que sur l'évolution des performances au fil du temps. Ensuite, dans une deuxième partie, nous aborderons la conception d'une nouvelle fibre creuse hybride permettant de démontrer, pour la première fois, des pertes linéiques réduites et un guidage unimodal. Enfin, une description détaillée de cette fibre fabriquée sera fournie. Elle sera utilisée par la suite pour la génération de peignes de fréquences.

Le chapitre 4 exposera les résultats expérimentaux obtenus concernant la cohérence des lignes du peigne Raman générées au sein d'une fibre creuse remplie de gaz, pour des impulsions d'une durée de quelques picosecondes et d'une énergie de quelques microjoules. Nous détaillerons la mise en place du montage expérimental dédié à la génération de ce peigne de fréquence Raman, ainsi qu'à l'exploration des différents régimes de la diffusion Raman stimulée et de ses principales limitations. Ensuite, nous décrirons le développement et l'installation d'un interféromètre de Mach-Zehnder, conçu spécifiquement pour déterminer la visibilité des franges d'interférence et ainsi remonter à la cohérence des raies Raman du peigne.

Le chapitre 5 se concentrera lui sur l'étude expérimentale de la cohérence inter-impulsionnelle. Les résultats obtenus seront comparés à ceux des simulations présentées dans le chapitre 2, puis les limitations du modèle numérique ainsi que les contraintes expérimentales seront abordées.

Enfin, un dernier volet proposera un résumé de la thèse et des suggestions pour les travaux futurs, notamment en ce qui concerne la manipulation des peignes de fréquences optiques et la synthèse de formes d'ondes optiques.

# 2

## Diffusion Raman stimulée en régime impulsionnel

**Résumé :** Ce chapitre théorique présentera le modèle utilisé pour décrire la diffusion Raman stimulée (DRS) en régime impulsionnel. Les équations de Maxwell-Bloch y seront détaillées. Nous étudierons les différents régimes possibles de la DRS et présenterons une résolution modale du champ Stokes, ainsi que leurs implications sur la cohérence Raman. Des simulations numériques seront menées dans le cas d'une approche simplifiée, où une pompe non déplétée permettra l'amplification du champ Stokes à partir du bruit quantique. Dans la dernière partie, cette approche sera étendue au cas d'une pompe déplétée. L'ensemble des résultats obtenus nous servira de comparaison pour les études expérimentales à venir.

## Sommaire

---

2.1	Définition de la diffusion Raman . . . . .	<b>39</b>
2.2	La diffusion Raman dans l'hydrogène . . . . .	<b>39</b>
2.2.1	Le déphasage Raman . . . . .	41
2.2.2	Le Coefficient de gain Raman . . . . .	43
2.2.3	Extraction du coefficient de gain Raman à partir des données expérimentales . . . . .	46
2.3	Approche théorique de la diffusion Raman stimulée . . . . .	<b>47</b>
2.4	La diffusion Raman stimulée en régime non déplété . . . . .	<b>49</b>
2.5	La diffusion Raman stimulée en régime déplété . . . . .	<b>55</b>
2.6	Conclusion . . . . .	<b>64</b>

---

## 2.1 Définition de la diffusion Raman

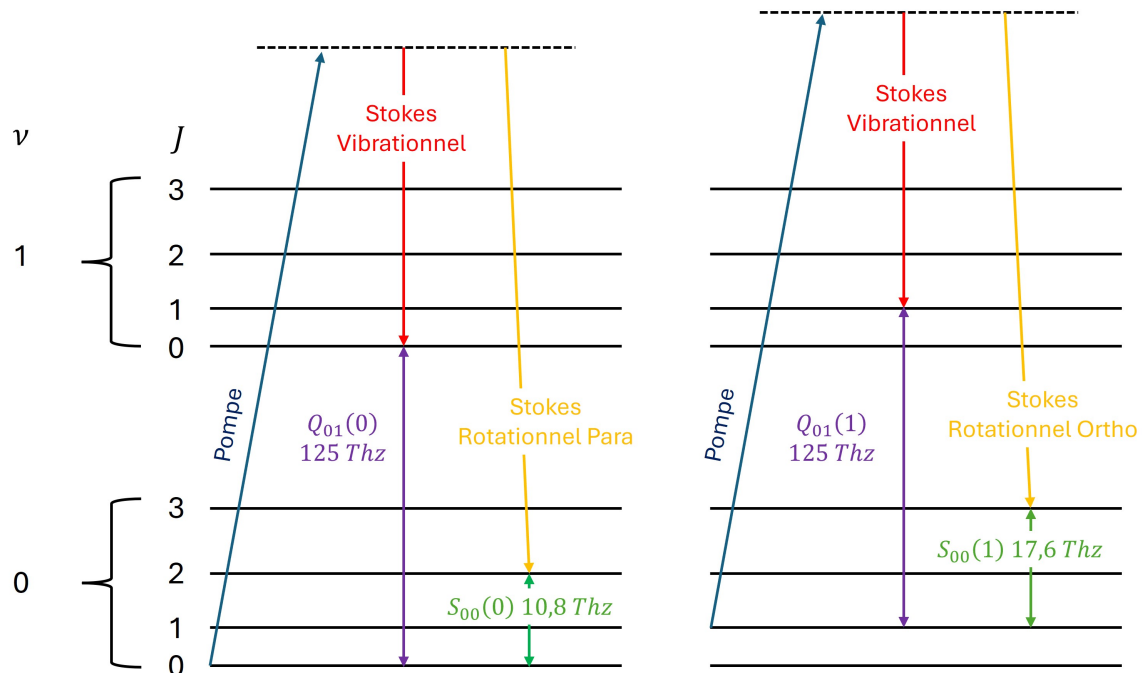
L'effet Raman, du nom de C.V. Raman, découvert expérimentalement en 1928 [43] mais théoriquement prédit dès 1923 par A. Smekal [44], repose sur la diffusion inélastique d'un photon à la fréquence  $\omega_0$  provenant d'un champ laser incident lors de son interaction avec un système moléculaire. Cette diffusion peut être qualifiée de Stokes lorsque la fréquence incidente est décalée vers le rouge, ou anti-Stokes lorsque le décalage est vers le bleu. Selon le principe de conservation de l'énergie, ce processus est exprimé par  $\omega_{s/as} = \omega_0 \pm \omega_R$ , où  $\omega_R$  représente la transition Raman du système moléculaire. L'excès ou la perte d'énergie entre le photon incident et celui émis est compensé par l'excitation ou la désexcitation du milieu, impliquant respectivement la création ou l'absorption d'un phonon optique. Deux types de diffusion Raman sont distingués : spontanée et stimulée. La première est généralement observée avec des sources de rayonnement de faible intensité (comme la lumière naturelle ou des lasers de faible puissance) et présente une faible efficacité de conversion, environ un photon pour un million. Dans ce cas, la diffusion est multidirectionnelle et non cohérente. En revanche, la diffusion Raman stimulée se produit lorsque l'intensité du rayonnement est suffisamment élevée, induisant un mouvement ordonné des molécules à la fréquence du décalage Raman. Les photons issus de cette diffusion sont émis dans la même direction que la lumière incidente et sont cohérents entre eux. Ce processus peut être amplifié pour générer des ordres supérieurs de fréquences Stokes et anti-Stokes si la puissance du rayonnement Stokes dépasse un seuil d'énergie.

## 2.2 La diffusion Raman dans l'hydrogène

La molécule d'hydrogène  $H_2$  est largement utilisée en diffusion Raman stimulée en raison de sa composition simple, composée de deux atomes d'hydrogène, l'élément le plus léger du tableau périodique. En tant que gaz facilement manipulable, elle présente le gain Raman le plus élevé parmi toutes les molécules gazeuses, en faisant ainsi le candidat idéal pour les applications de conversion de fréquence. Dans cette section, nous examinerons en détail les différentes propriétés de ce gaz qui sera au coeur de mes travaux par la suite. Les mouvements de la molécule d'hydrogène sont caractérisés par trois types de transitions : les transitions vibrationnelles, rotationnelles et ro-vibrationnelles. Les niveaux d'énergie des états vibrationnels sont définis par le nombre quantique  $\nu = 0, 1, 2, 3, \dots$ , où  $\nu = 0$  correspond à l'état fondamental. Chaque état vibrationnel comporte plusieurs états rotationnels, désignés par leur nombre quantique  $J = 0, 1, 2, \dots$ . Les transitions autorisées obéissent à des règles de sélection spécifiques :  $\Delta\nu = 0, \pm 1, \pm 2$  pour les transitions vibrationnelles et  $\Delta J = 0, \pm 2$  pour les transitions rotationnelles. On distingue deux types de molécules d'hydrogène en raison d'une isomérisation



des spins des protons : les molécules ortho-hydrogène lorsque les spins des protons sont identiques, où seul un état rotationnel impair est autorisé, et les molécules para-hydrogène lorsque les spins des protons sont opposés, avec seulement un état rotationnel pair autorisé. À température ambiante, la quasi-totalité des molécules se trouve dans l'état fondamental vibrationnel  $\nu = 0$ . De plus environ 25% des molécules sont para-hydrogène ( $J = 0$ ) et 75% sont ortho-hydrogène ( $J = 1$ ) [45, 46].



**Figure 2.1** – Représentation schématique des transitions Raman  $Q_{01}(0), S_{00}(0), Q_{01}(1)$  et  $Q_{00}(1)$  dans le dihydrogène.

La figure 2.1 met en lumière les transitions énergétiques impliquées dans les échanges d'énergie entre une onde incidente et un gaz d'hydrogène par diffusion Raman. Les lettres  $Q$  et  $S$  désignent respectivement les transitions pour lesquelles  $\Delta J = 0$  et  $\Delta J \pm 2$ . Les indices indiquent l'état quantique vibrationnel initial puis final, avec l'état quantique rotationnel initial entre parenthèses. Dans le cadre de cette étude, notre intérêt se porte principalement sur la transition vibrationnelle pure  $Q_{01}(1)$  à une fréquence de 125 THz et la transition rotationnelle  $S_{00}(1)$  à une fréquence de 17,6 THz.

### 2.2.1 Le déphasage Raman

Le déphasage Raman, ou la largeur de raie Raman  $\Gamma$ , est inversement proportionnel au temps de vie de l'état excité  $T_2$ , une grandeur qui intervient dans le calcul du gain Raman. Cette valeur dépend de divers phénomènes, notamment de la distribution des vitesses des molécules (élargissement Doppler) et des collisions entre les molécules. La pression et la température exercent une forte influence sur la valeur du déphasage Raman. L'impact de la température et de la pression sur le déphasage Raman a été mesuré et calculé empiriquement pour un gaz d'hydrogène en espace libre, en particulier pour les transitions  $Q_{01}(1)$  et  $S_{00}(1)$  par Bischel *et al* [47]. Le déphasage Raman  $\Gamma_{vib}$  pour la transition vibrationnelle  $Q_{01}(1)$  s'exprime empiriquement en fonction de la température  $T$  et de la pression  $P$  par :

$$\Gamma_{vib}(\rho, T) = \frac{309}{\rho + p} \frac{T^{0.92}}{298} + (51.8 + 0.152(T - 298) + 4.85e^{-4}(T - 298)^2)\rho \quad (2.1)$$

Dans cette expression,  $\Gamma_{vib}$  représente le déphasage Raman en MHz,  $\rho = \frac{T_0 P}{T P_0}$  désigne la densité moléculaire du gaz en amgat. Le modèle proposé par Bischel *et al.* [47] est applicable pour des densités supérieures à la limite de coupure  $\rho_c = \frac{3.33A}{\Delta\nu_D}$ . Dans ce contexte, un paramètre correctif  $p$  est introduit pour assurer une largeur correcte du pic Doppler dans la limite de pression nulle. Concernant le déphasage Raman  $\Gamma_{rot}$  de la transition rotationnelle  $S_{00}(1)$ , il n'existe pas de d'expression directe mais une un formule empirique de la forme :

$$\Gamma_{rot}(\rho, T) = \frac{A}{\rho} + B\rho \quad (2.2)$$

où  $B$  est un coefficient d'élargissement dû à la pression du gaz, dont la valeur est de 108, MHz/amg à 298 K. Le paramètre correctif  $p$  a une valeur de  $3,8 \times 10^{-2}$  amg, également à 298 K. Enfin, le coefficient  $A$  est proportionnel au coefficient d'auto-diffusion  $D_0$ , qui est donné par la formule :

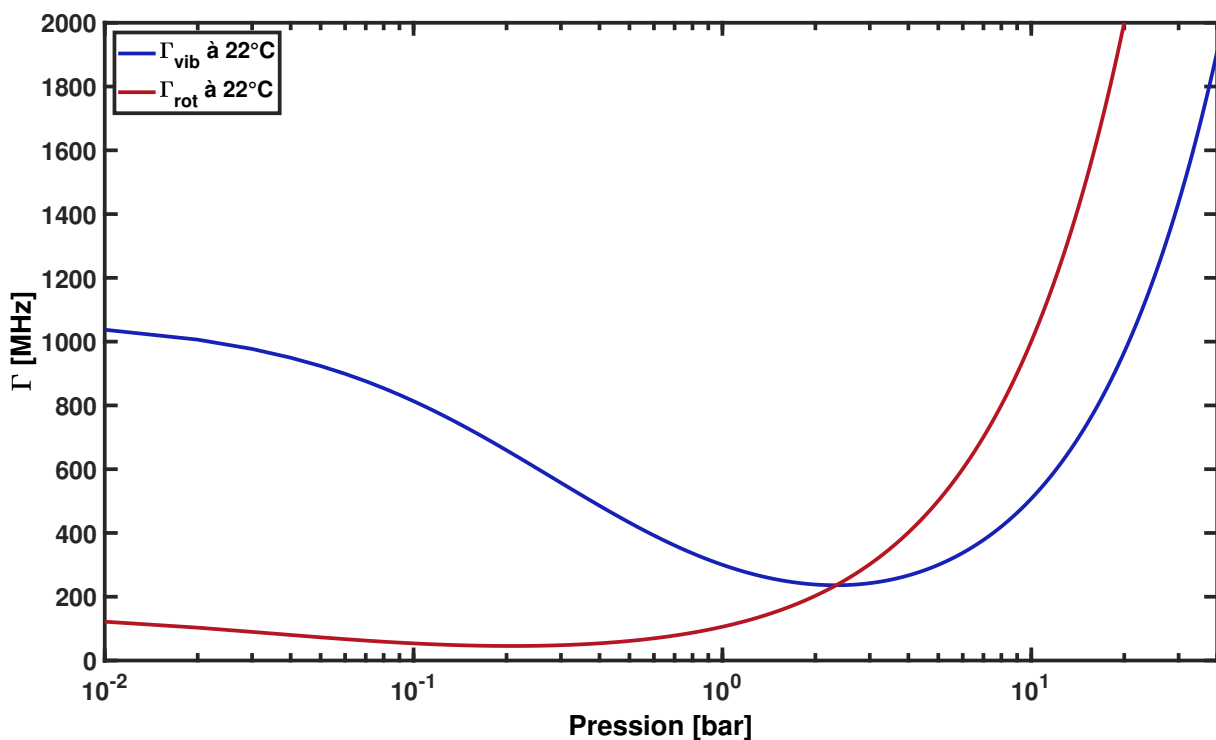
$$A = 4\pi^2 \nu_R^2 D_0 \quad (2.3)$$

avec  $k_r^2$  étant le nombre d'onde de la transition Raman. Quant à  $D_0$ , il est obtenu grâce à l'équation suivante :

$$D_0 = \frac{186 \cdot e^{-5T^{\frac{3}{2}}}}{1.273P\sigma^2} \sqrt{\frac{2}{MW}} \quad (2.4)$$

où  $\sigma$  représente la section efficace de la molécule d'hydrogène exprimée en angströms et ayant une valeur de 2,827 Å,  $MW$  désigne sa masse moléculaire, qui est de 2,02 uma, et  $D_0 = 1,42 \text{ cm}^2 \cdot \text{amg} \cdot \text{s}^{-1}$  pour une température de 298 K.

Les largeurs de raie Raman vibrationnelles et rotationnelles sont toutes deux représentées dans la figure 2.2 en fonction de la pression, à une température de 22 °C (295 K). Le déphasage Raman des deux transitions Raman se compose de trois plages de pression. À basse pression, l'élargissement Doppler domine, entraînant une largeur de raie vibrationnelle plus importante que la rotationnelle. À mesure que la pression augmente, un rétrécissement collisionnel (également appelé rétrécissement de Dicke) est observé [48]. Cela se produit lorsque le libre parcours moyen des molécules est du même ordre de grandeur que la longueur d'onde Raman. Enfin, un élargissement collisionnel se produit à haute pression. Dans ce régime, le déphasage rotationnel devient plus important que la largeur de raie de la transition Raman vibrationnelle. La largeur totale de la raie Raman de  $H_2$  est la somme de la largeur naturelle de raie ( $\Gamma_{vib}$  ou  $\Gamma_{rot}$ ) et de la largeur de collision avec la paroi. Lorsque le gaz d'hydrogène est confiné dans un volume restreint, tel que le cœur d'une fibre à cœur creux, les collisions des molécules avec la paroi du cœur peuvent induire un élargissement du déphasage Raman, mais cet effet est négligeable pour des pressions de travail supérieures à un bar [49]. Il convient également de noter que, en plus de sa largeur de raie, la fréquence de la transition Raman dépend également linéairement de la pression et de la température [50], offrant ainsi un certain contrôle sur l'accord en longueur d'onde de la radiation Stokes générée.



**Figure 2.2** – Évolution du déphasage Raman de la transition rotationnelle  $\Gamma_{rot}$  et vibrationnelle  $\Gamma_{vib}$  en fonction de la pression à 22 °C et pour un laser incident à 1030 nm .

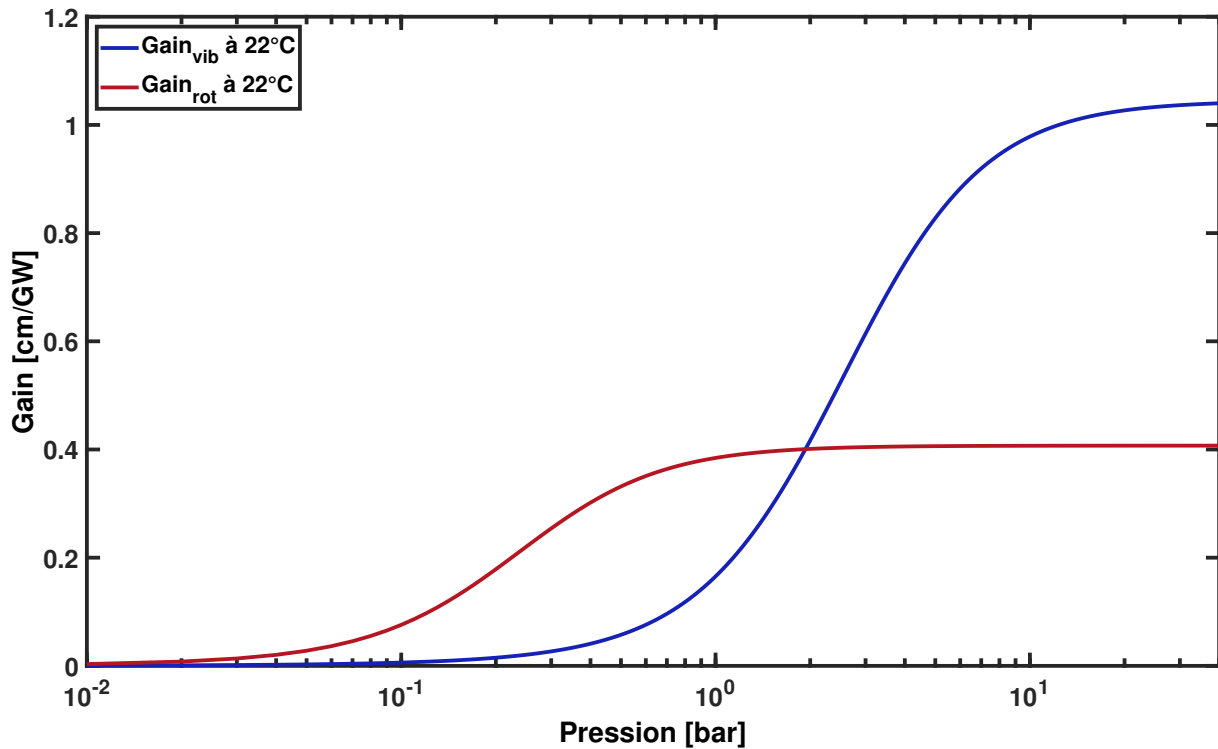
## 2.2.2 Le Coefficient de gain Raman

Le coefficient de gain Raman détermine directement l'efficacité de génération de l'effet Raman. Il dépend de divers facteurs, tels que la longueur d'onde du laser incident, sa polarisation, le déphasage Raman et les transitions considérées. Pour les transitions vibrationnelle et rotationnelle, les valeurs des gains  $\alpha_{rot}$  et  $\alpha_{vib}$  sont exprimées par :

$$\alpha_{vib} = 9,37e^6 \frac{52\rho}{\Gamma_{vib}} \frac{K_B}{0.658} (\nu_P - 4155)(7,19e^9 - \nu_P^2)^{-2} \quad (2.5)$$

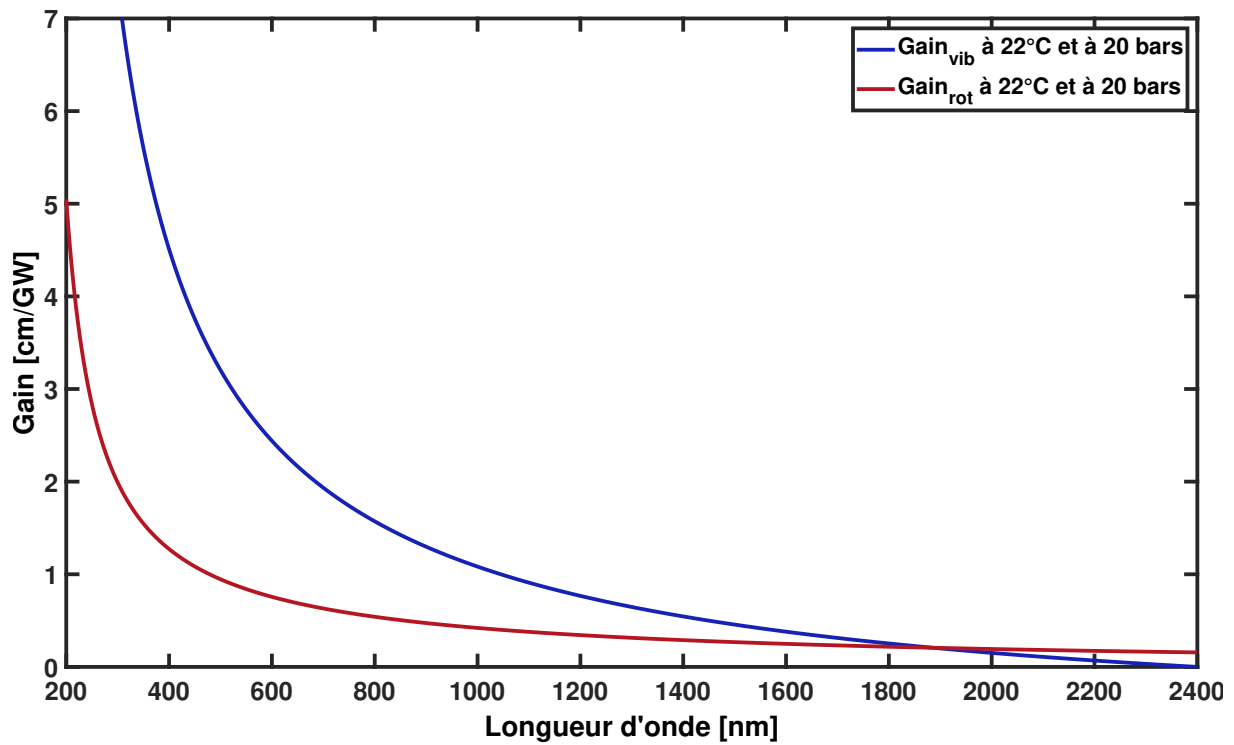
$$\alpha_{rot} = 2,427e^8 \frac{\rho}{\Gamma_{rot}} (\nu_P - 586,9)(7,19e^9 - \nu_P^2)^{-2} \quad (2.6)$$

où  $k_B = 0,658$  (à 295 K) représente le facteur de population de Boltzmann et  $\nu_L$  la fréquence du laser de pompe exprimée en  $\text{cm}^{-1}$ . La figure 2.3 illustre les valeurs des gains Raman  $\alpha_{rot}$  et  $\alpha_{vib}$  en fonction de la pression à 20 °C. On observe que les gains  $\alpha_{rot}$  et  $\alpha_{vib}$  tendent vers une valeur asymptotique à haute pression (1 cm/GW et 0,4 cm/GW respectivement). De plus, à haute pression, le gain  $\alpha_{vib}$  domine par rapport au gain  $\alpha_{rot}$ , ce qui signifie que les raies de Stokes vibrationnelles seront observables avant les raies rotationnelles. Cette tendance s'inverse à basse pression.



**Figure 2.3** – Évolution du gain Raman de la transition rotationnelle  $\alpha_{rot}$  et vibrationnelle  $\alpha_{vib}$  en fonction de la pression à 22 °C et pour un laser incident à 1030 nm.

On note également une forte dépendance du gain par rapport à la longueur d'onde, comme illustré dans la figure 2.4. Le gain augmente fortement lorsque la longueur d'onde est réduite. Un autre facteur influençant le gain est la polarisation du laser incident. Pour la diffusion Raman des transitions vibrationnelles, la diffusion est isotrope et ne dépend donc pas de la polarisation du laser incident. En revanche, pour la diffusion Raman des transitions rotationnelles, la diffusion est anisotrope. Le gain  $\alpha_{rot}$  est maximal lorsque les ondes du laser incident et du Stokes sont polarisées circulairement et dans des sens opposés [51]. Le tableau 2.1 résume la pondération du gain  $\alpha_{rot}$  en fonction de la polarisation du laser incident.



**Figure 2.4** – Gain Raman de la transition rotationnelle  $\alpha_{rot}$  et vibrationnelle  $\alpha_{vib}$  en fonction de la longueur d'onde du laser incident.

Polarisation	Pompe	Stokes	Gain Raman
Circulaire			$\alpha_{rot}$
			$\frac{\alpha_{rot}}{6}$
Rectiligne			$\frac{2\alpha_{rot}}{3}$
			$\frac{\alpha_{rot}}{2}$

**Table 2.1** – Dépendance du gain Raman de la transition rotationnelle  $\alpha_{rot}$  en fonction de la polarisation du laser incident.

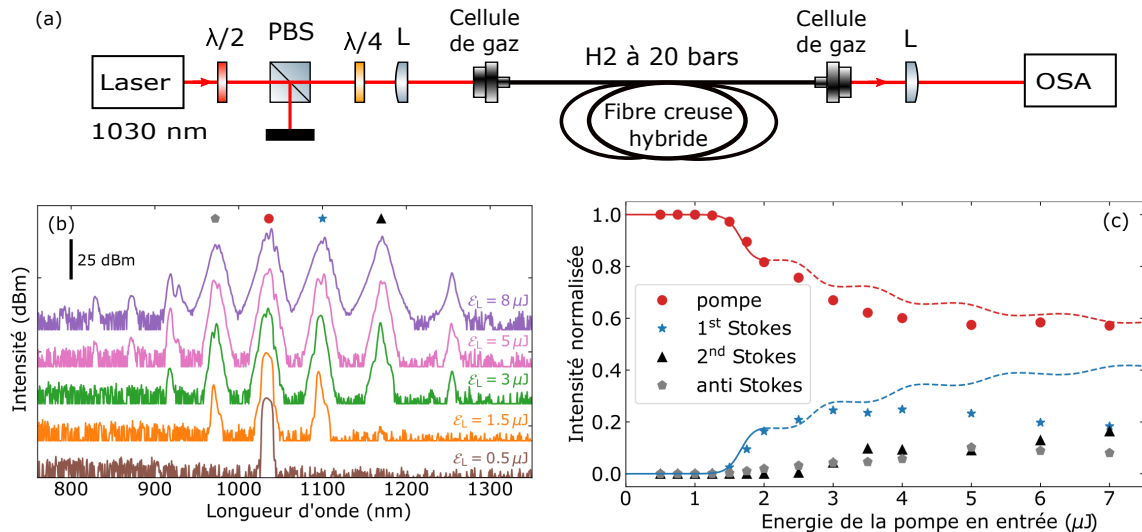
### 2.2.3 Extraction du coefficient de gain Raman à partir des données expérimentales

Pour obtenir une valeur plus précise du coefficient de gain Raman  $g_R$  (qui sera par la suite utilisé dans notre modèle théorique), nous avons mené une étude expérimentale permettant d'extraire directement cette valeur à partir des données mesurées. Pour cela, une comparaison a été faite entre la résolution numérique des équations de Maxwell-Bloch (voir la Section suivante 2.5) et la variation de la puissance des champs en sortie de la fibre en fonction de la puissance de la pompe. Dans ce paragraphe, nous présentons la méthodologie utilisée pour atteindre cet objectif. Nous commençons par considérer la situation expérimentale où une laser à 1030 nm de largeur d'impulsion  $\tau_L = 3$  ps vient générer un peigne Raman à travers une fibre creuse comme présenté sur la figure 2.5(a). Nous utilisons un analyseur de spectre optique (OSA - *Optical Spectrum Analyzer*) pour enregistrer les spectres Raman à la sortie de la fibre pour différentes énergies de l'impulsion laser  $E_L$  (voir figure 2.5(b)) et nous calculons la proportion de puissance optique dans chacune des raies spectrales. La figure 2.5(c) montre l'évolution des raies spectrales les plus significatives : pompe, première Stokes, deuxième Stokes et anti-Stokes, en fonction de  $E_L$ . Comme prévu en raison de la conservation de l'énergie, dès que l'interaction lumière-gaz devient suffisamment forte ( $\epsilon_L \approx 1,5 \mu\text{J}$ ), nous observons la diminution de la raie de pompe due à la diffusion Raman. Cela montre l'importance de l'approche numérique par rapport à l'approche analytique où la diminution de la pompe est négligée. Nous comparons ensuite ces résultats expérimentaux aux simulations. À cette fin, nous calculons numériquement la dépendance de  $E_L$  des champs de pompe et de Stokes à la sortie de la fibre pour différentes valeurs du coefficient de gain Raman  $g_R$ , qui est notre seul paramètre libre. La valeur de  $g_R$  est ensuite obtenue en ajustant simultanément les profils de pompe et de Stokes en utilisant la méthode des moindres carrés tel que :

$$f_{g_R} = \sum_i^N (I(x_i) - F(x_i, g_R))^2$$

où  $I(x_i)$  est le jeu de données expérimental comprenant les énergies du champ de la pompe et du champ de Stokes,  $F(x_i, g_R)$  les données des énergies du champ de la pompe et du champ de Stokes obtenues à partir des simulations, et  $f_{g_R}$  la fonction à minimiser en fonction de la valeur de  $g_R$ . Pour mettre en œuvre correctement cette procédure, il est important de se rappeler que l'équation de Maxwell-Bloch utilisée au cours de cette thèse (voir la Section 2.7) ne considère que les raies de pompe et de Stokes, ce qui signifie que la comparaison avec les données expérimentales ne sera valide que si les intensités des autres raies spectrales sont négligeables. C'est pourquoi nous effectuons l'ajustement uniquement pour  $E_L$  entre

0 et  $2 \mu\text{J}$ , car dans cette plage d'énergie, les autres raies restent négligeables. Le meilleur ajustement est représenté par les lignes rouges et bleues de la figure 2.5(c) et correspond à  $g_R = 1,3 \times 10^{-11} \text{ m/W}$  contre  $g_R = 0,4 \times 10^{-11} \text{ m/W}$  avec le modèle empirique utilisé dans la section précédant 2.2.2. Cette valeur sera utilisée par la suite dans nos simulations. A noter que sur le graphique, la ligne pleine représente la partie des données utilisées pour effectuer l'ajustement et la ligne en pointillés représente la prolongation de l'ajustement.

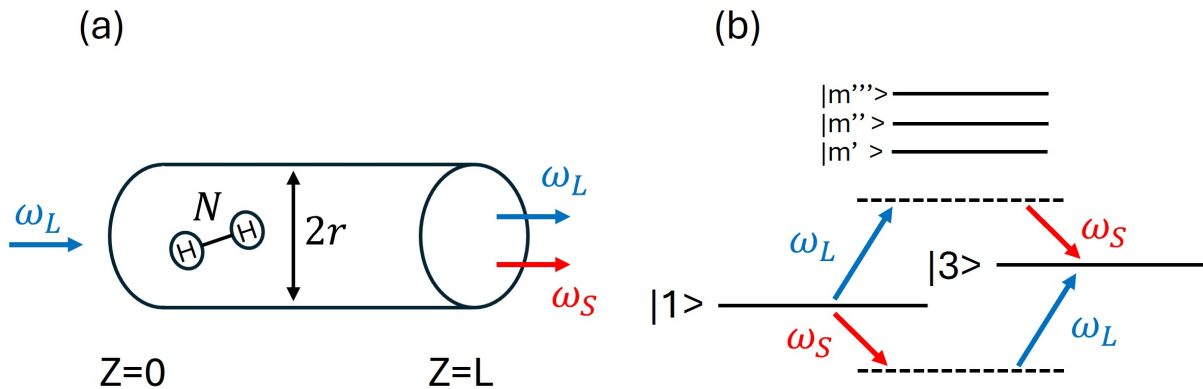


**Figure 2.5** – (a) Configuration expérimental pour enregistrer les spectres Raman en fonction de leur énergie. (b) Spectres Raman à la sortie de la fibre remplie de  $\text{H}_2$  pour des énergies laser d'entrée variables et pour  $\tau_L = 3 \text{ ps}$ . (c) Proportion de la puissance optique de plusieurs raies du peigne Raman (pompe, premier Stokes, deuxième Stokes, anti-Stokes) pour des énergies laser d'entrée variables. Les lignes rouges et bleues représentent un ajustement des données expérimentales conduisant à un coefficient de gain Raman  $g_R = 1,3 \times 10^{-11} \text{ m/W}$ ,  $g_R$  étant le seul paramètre libre de l'ajustement. La partie solide des lignes correspond aux données utilisées pour effectuer l'ajustement, et la ligne en pointillés représente la prolongation de l'ajustement.

## 2.3 Approche théorique de la diffusion Raman stimulée

Dans cette section, nous présentons la théorie de propagation semi-classique développée par Raymer et Walmsley [52] pour décrire l'interaction entre un champ de pompe et un champ de Stokes injectés dans un milieu actif Raman. Pour un champ optique suffisamment fort, les fluctuations quantiques de la lumière peuvent être négligées, ce qui conduit à une description classique des champs optiques. En revanche, les molécules sont traitées de manière quantique à l'aide de l'opérateur de matrice de densité  $\hat{\rho}$ .





**Figure 2.6** – (a) Illustration schématique de la géométrie de la diffusion Raman. Le volume d'interaction, contenant le milieu Raman actif, est ici un cylindre uniformément pompé de longueur  $L$  et de rayon  $r$ . Une impulsion laser de fréquence  $\omega_L$  est incidente sur la face gauche du cylindre. Le rayonnement à la fréquence de Stokes  $\omega_s$  est généré par diffusion spontanée et s'amplifie par diffusion stimulée lors de la propagation à travers la région d'interaction. L'impulsion de Stokes sort de la région de gain par la face droite à  $z = L$ . (b) Schéma des niveaux d'énergie pour la diffusion Raman stimulée à partir, par exemple, de la transition vibrationnelle  $Q_{01}(1)$  dans l'hydrogène. La molécule est initialement dans l'état fondamental  $|1\rangle$  lorsque l'impulsion laser intense, avec une fréquence  $\omega_L$ , l'excite vers un niveau virtuel avec un grand désaccord par rapport au groupe d'états  $|m\rangle$ . Des photons dispersés avec la fréquence  $\omega_s$  sont générés, laissant la molécule dans l'état excité  $|3\rangle$ .

Nous considérons que les molécules sont réparties de manière homogène le long d'un axe unidimensionnel entre  $z = 0$  et  $z = L$ , et nous notons  $N$  leur concentration par unité de volume (figure 2.6 (a)). Tout d'abord, l'évolution temporelle et spatiale de la population et de la cohérence du système moléculaire est dérivée de l'équation maîtresse dans l'approximation du dipôle. Dans ce formalisme, il est possible de montrer que chaque molécule active Raman peut être considérée comme un système à deux niveaux ( $|1\rangle$ ,  $|3\rangle$ ),  $|1\rangle$  étant l'état fondamental et  $|3\rangle$  le premier état rotationnel de la molécule, voir sur la figure 2.6 (b). Deuxièmement, l'évolution des champs de pompe et de Stokes est obtenue à partir de l'équation d'onde unidimensionnelle en supposant la même vitesse de propagation pour les deux champs et aucune dispersion. Dans cette équation, la dépendance spatio-temporelle de la polarisation non linéaire est déduite de la matrice de densité des molécules. Cette procédure conduit à l'équation de Maxwell-Bloch, également appelée équation de Bloch-Maxwell (pour plus de détails, voir [52]), qui, dans les unités gaussiennes, est donnée par :

$$\frac{\partial Q(z, \tau)}{\partial \tau} = -\frac{Q(z, \tau)}{T_2} + ik_1^* E_L(z, \tau) E_S^*(z, \tau) n(z, \tau), \quad (2.7a)$$

$$\frac{\partial n(z, \tau)}{\partial \tau} = -\frac{(n(z, \tau) - n_0)}{T_1} + 4\text{Im}(k_1^* E_L(z, \tau) E_S^*(z, \tau) Q^*(z, \tau)), \quad (2.7b)$$

$$\frac{\partial}{\partial z} E_L(z, \tau) = -ik_2 \left( \frac{\omega_L \nu_L}{\omega_S \nu_S} \right) E_S(z, \tau) Q(z, \tau), \quad (2.7c)$$

$$\frac{\partial}{\partial z} E_S(z, \tau) = -ik_2 E_L(z, \tau) Q^*(z, \tau). \quad (2.7d)$$

où \* représente la quantité conjuguée complexe et  $\text{Im}[\cdot]$  l'opérateur de partie imaginaire. Dans ces équations,  $E_L(z, \tau)$  et  $E_S(z, \tau)$  sont les enveloppes lentement variables des champs de pompe et de Stokes,  $\tau = t - \frac{z}{c}$  étant la variable locale de temps du laser. De plus,  $n(z, \tau) = \rho_{33}(z, \tau) - \rho_{11}(z, \tau)$  représente la différence de population de l'état moléculaire et  $Q(z, \tau)$  est une autre variable lente rendant compte de la cohérence du milieu Raman (liée à  $\rho_{13}(z, \tau) = \rho_{31}^*(z, \tau)$ ). Notons que l'effet de déplacement Stark, c'est-à-dire le déplacement d'énergie de la structure électronique moléculaire dû à la présence d'un champ électrique externe, a été négligé. L'expression exacte de la constante  $\kappa_1$  peut être trouvée dans la référence [52] et dépend des éléments de matrice de l'opérateur de dipôle. La deuxième constante est exprimée en fonction de la première, telle que  $\kappa_2 = \frac{2\pi N \hbar \omega_S \kappa_1^*}{c}$ , où  $\omega_S$  est la fréquence angulaire du champ de Stokes et  $N \approx 4.1026 \text{ m}^{-3}$  est le nombre de molécules par unité de volume obtenu à partir de la loi des gaz parfaits (pression  $P_{\text{H}_2} = 20$  bars et température ambiante  $T = 293$  K). Nous verrons par la suite (lors de la résolution numérique de l'équation de Maxwell-Bloch, voir la section II C) comment obtenir une valeur numérique pour  $\kappa_1$ . Enfin,  $T_1 = 440$  ns et  $T_2 = 0.5$  ns correspondent à la durée de vie de l'état excité et le temps de cohérence du système à deux niveaux pour la molécule d'hydrogène et la transition rotationnelle  $S_{00}(1)$ . Notez que le terme  $-\frac{1}{T_1}$  dans l'équation 2.7b garantit qu'une molécule en évolution libre ( $E_L E_S^* = 0$ ) termine dans l'état d'énergie basse pendant un temps plus long que  $T_1$ .

## 2.4 La diffusion Raman stimulée en régime non déplété

Dans cette section, nous examinons la situation où l'interaction entre le champ de pompe et le milieu actif Raman est suffisamment faible pour considérer que le champ de pompe n'est pas déplété par l'interaction : seule une petite proportion des photons de pompe est convertie en champ de Stokes. Dans ce cas, les équations de Maxwell-Bloch peuvent être résolues analytiquement en suivant la procédure décrite dans les références [53, 54]. Nous commençons par faire un bref résumé des différents régimes de diffusion Raman. Ensuite,

nous rappelons l'équation de la fonction de corrélation temporelle du champ de Stokes et comment elle peut être utilisée pour obtenir le développement en mode spatio-temporel (STM - *Spatio-Temporal Mode*) de ce champ.

### Les différents régimes de diffusion Raman

En suivant les résultats de la référence [47], nous commençons par définir le gain net Raman, qui pour une excitation pulsée est une fonction du temps, définie comme suit :

$$G_{net}(t) = g_R I_L(t) \quad (2.8)$$

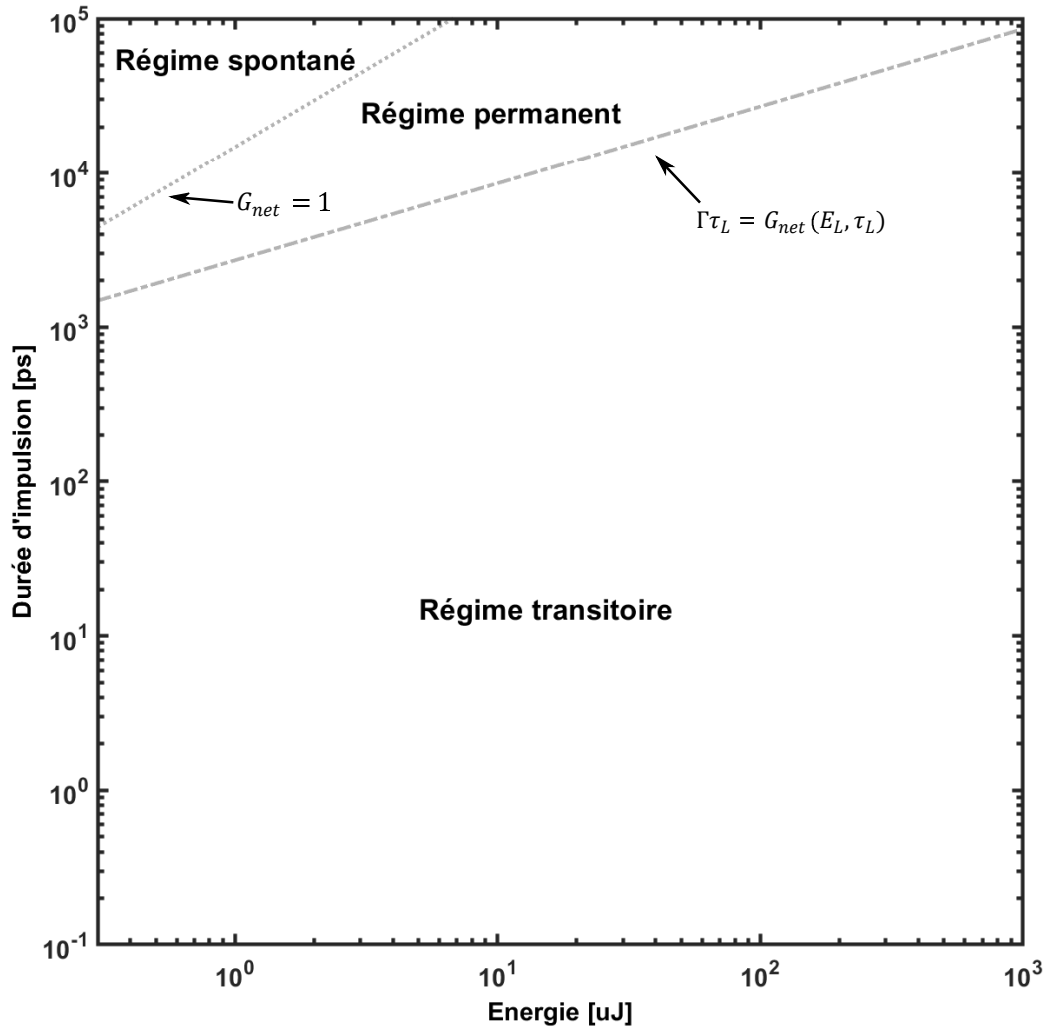
où  $g_R = 1.3 \times 10^{-11} \text{cm/W}$  est le coefficient de gain Raman caractérisant l'activité Raman du milieu qui a précédemment été déterminé expérimentalement,  $I_L(t)$  est l'intensité du laser de pompe, et  $L$  est la longueur d'interaction lumière-gaz (la longueur de la fibre optique ici). L'intensité peut être liée à la puissance du laser pulse à travers  $P_L(t) = I_L(t)A_{\text{eff}}$  où  $A_{\text{eff}}$  est la surface effective de l'interaction lumière-gaz. Pour la configuration fibrée de ce travail, la surface effective est donnée par  $A_{\text{eff}} = \pi R_{\text{eff}}^2$ , où  $R_{\text{eff}}$  est le rayon de mode effectif déduit du rayon de la fibre par  $R_{\text{eff}} \approx 0.79R$ . Il est également pratique de lier  $G_{net}(t)$  à l'énergie de l'impulsion en utilisant  $\int_{-\infty}^{\infty} P_L(t)dt = \epsilon_L$ . En supposant un profil gaussien de l'impulsion laser  $P_L(t) = P_0 e^{-4 \ln 2 \frac{t^2}{\tau_L^2}}$ , nous obtenons finalement :

$$G_{net}(t) = G_{net}^0 e^{-4 \ln 2 \left(\frac{t}{\tau_L}\right)^2} \quad (2.9)$$

où  $G_{net}^0 = \sqrt{\frac{4 \ln 2}{\pi}} \frac{g_R \epsilon_L L}{\tau_L A_{\text{eff}}}$ .

Dans le régime spontané de diffusion Raman, qui se produit lorsque l'intensité du laser est suffisamment faible, le gain net Raman est négligeable et les molécules diffusent la lumière indépendamment. En revanche, dans le régime de diffusion Raman stimulée (SRS) où le gain net Raman devient suffisamment élevé, le milieu Raman adopte un comportement collectif et les molécules diffusent la lumière de manière cohérente. La transition entre ces deux régimes dépend de la dynamique de l'interaction lumière-gaz [54] et se produit lorsque  $G_{net}^0 = 1$ . Elle est représentée par la ligne solide noire sur la figure 2.7. Le régime stimulé, qui se produit lorsque  $G_{net}^0 > 1$ , peut également être séparé en deux situations [52] en fonction des valeurs de  $\tau_L$  et  $\Gamma$ , où  $\Gamma$  est le taux de décohérence du milieu Raman (temps caractéristique  $T_2 = 1/\Gamma$ ). Si les processus de déphasage sont négligeables pendant la durée de l'impulsion de Stokes (ce qui dépend de la durée de l'impulsion laser), le système est dit être dans le régime transitoire. À l'inverse, nous sommes dans le régime permanent lorsque l'impulsion laser est suffisamment longue pour que les processus de déphasage se produisent pendant l'impulsion, ce qui conduit

à une intensité de Stokes constante dans le temps. La transition entre ces deux régimes se produit lorsque  $G_{net}^0 = \Gamma\tau_L$  et est représentée par la ligne pointillée noire dans la figure 2.7.



**Figure 2.7** – Tracé des 3 régimes de diffusion Raman stimulée dans l'espace  $\tau_L$  et  $\epsilon_L$  déterminés pour les paramètres expérimentaux  $L = 3$  m,  $R = 19,5 \mu\text{m}$ ,  $g_R = 1,3 \times 10^{-11}$  m/W et  $\Gamma = 2$  GHz. La ligne noire solide montre la transition entre les régimes de diffusion Raman spontanée et stimulée ( $G_{net}^0 = 1$ ). La ligne noire en pointillés met en évidence, dans le régime stimulé, la transition entre les régimes transitoire et permanent ( $G_{net}^0 = \Gamma\tau_L$ ).

De cette approche qualitative, il est clair que si l'on souhaite générer un peigne Raman cohérent, il est essentiel de travailler dans le régime transitoire où l'accumulation du champ Raman est plus rapide que les processus de décohérence. Cependant, si l'on souhaite également tirer parti de la cohérence de l'impulsion Raman sur toute sa durée temporelle, il est essentiel de travailler

avec un unique mode spatio-temporel (STM) du champ Raman, un concept développé par Raymer et ses collègues [53]. En considérant une propagation en une dimension (1D) et en supposant que seuls les champs de pompe et de Stokes sont présents, ces mêmes auteurs ont montré que l'évolution des champs dans le temps et dans l'espace peut être obtenue en résolvant les équations de Maxwell-Bloch du système [52], qui décrivent l'interaction entre ces deux champs et les molécules traitées comme des systèmes à deux niveaux. Par conséquent, le champ de Stokes  $E_S$  après une distance d'interaction  $L$  peut être développé sur la base des STM (Décomposition de Karhunen-Loève) de la manière suivante :

$$E_S(\rho, \tau) = \sum_n \sum_k c_k^n \phi_n(\rho) \psi_k(\tau) \quad (2.10)$$

avec  $\rho = (x, y)$  les coordonnées transversales dans le plan  $z = L$  où le champ est évalué, et  $\tau = t - L/c$ . Les modes propres  $\phi_n(\rho)$  et  $\psi_k(\tau)$  rendent compte de l'expansion spatiale et temporelle du champ respectivement, tandis que  $c_k^n$  caractérise le poids de chacun des modes dans l'expansion. Dans notre configuration expérimentale, l'utilisation d'une fibre hautement monomode permet de sélectionner un unique mode spatial tel que :

$$E_S(\rho, \tau) = \phi_0(\rho) \sum_k c_k^0 \psi_k(\tau) \quad (2.11)$$

où  $\phi_0(\rho)$  est le mode spatial fondamental. Le profil des modes temporels ainsi que les valeurs propres  $c_{0k}$  peuvent être obtenus en calculant la fonction de corrélation temporelle du champ de Stokes.

### Expansion spatio-temporelle du champ de Stokes

Nous présentons maintenant brièvement les résultats de la référence [52] utilisés dans cet article pour calculer l'expansion du champ de Stokes dans la base spatio-temporelle (STM). Nous partons de l'expression de la fonction de corrélation temporelle du champ de Stokes donnée

pour une propagation unidimensionnelle en mode unique et pour une pompe déplétée par :

$$G_{\tau}(\tau_1, \tau_2) = \frac{\Gamma_R \sqrt{G_{net}(\tau_1) G_{net}(\tau_2)}}{Lq(\tau_1, \tau_2)} e^{-\Gamma_R(\tau_1 + \tau_2)} \times \left[ f(\tau_1, \tau_2) + 2\Gamma_R \int_0^T e^{2\Gamma_R \tau'} g(\tau') d\tau' \right] \quad (2.12a)$$

$$q(\tau_a, \tau_b) = 2\Gamma_R \int_{\tau_a}^{\tau_b} G_{net}(\tau') d\tau', \quad (2.12b)$$

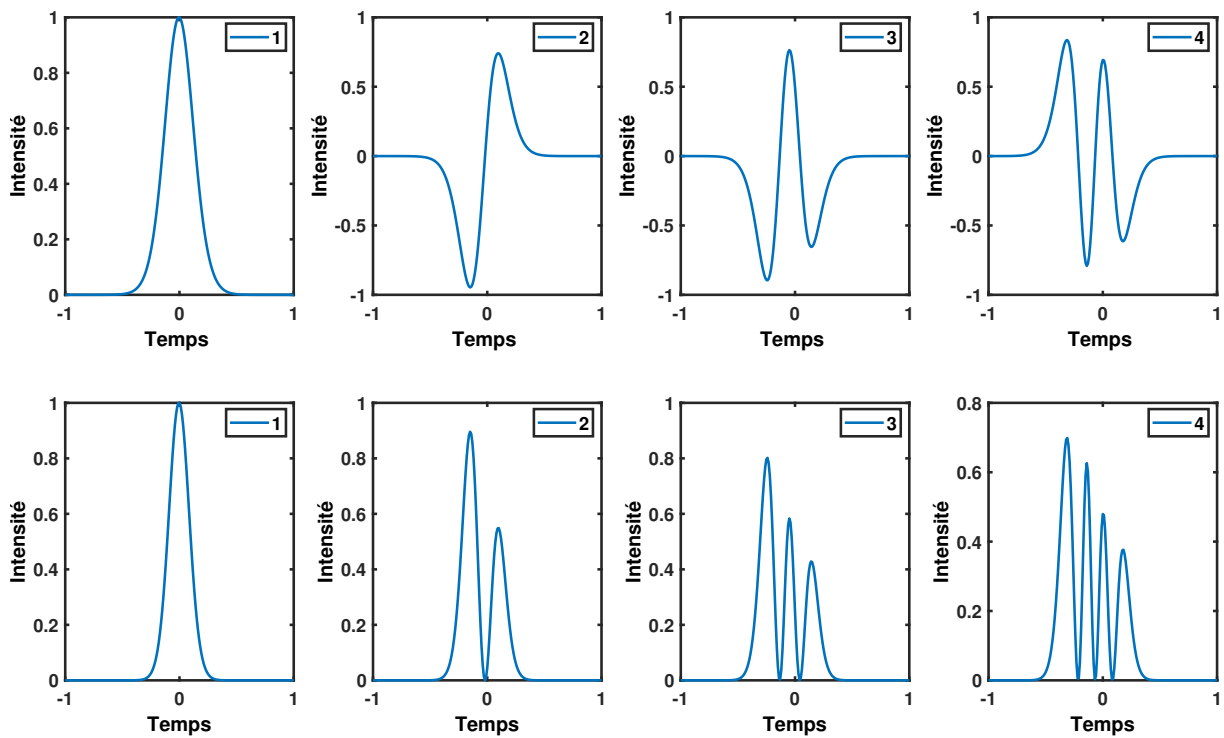
$$f(\tau_1, \tau_2) = \sqrt{q(\tau_1, 0)q(\tau_1, 0)} I_1 \left( \sqrt{q(\tau_1, 0)q(\tau_1, 0)} \right) \times I_0 \left( \sqrt{q(\tau_2, 0)q(\tau_2, 0)} \right) - (1 \leftrightarrow 2), \quad (2.12c)$$

$$g(\tau') = \sqrt{q(\tau_1, \tau')q(\tau_1, \tau')} I_1 \left( \sqrt{q(\tau_1, \tau')q(\tau_1, \tau')} \right) \times I_0 \left( \sqrt{q(\tau_2, \tau')q(\tau_2, \tau')} \right) - (1 \leftrightarrow 2). \quad (2.12d)$$

où  $(1 \leftrightarrow 2)$  indique l'interchangeabilité de  $\tau_1$  et  $\tau_2$ , et  $T$  est le plus petit entre  $\tau_1$  et  $\tau_2$ . Dans l'équation 2.12,  $I_0$  et  $I_1$  sont les fonctions de Bessel modifiées d'ordre zéro et un. Pour obtenir l'équation précédente, nous avons supposé que l'amplitude du champ laser lentement variable était réelle. Les valeurs propres  $c_k^0$  et les modes propres  $\psi_k(\tau)$  sont alors obtenus en résolvant numériquement l'équation intégrale aux valeurs propres :

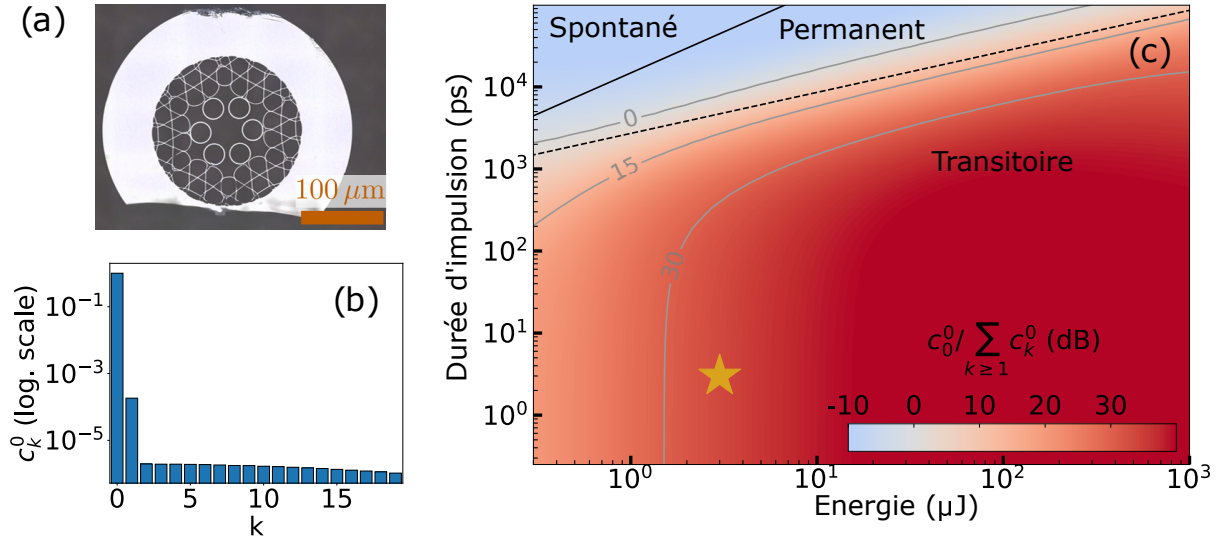
$$\int_{-\infty}^{\infty} G_{\tau}(\tau_1, \tau_2) \psi_k(\tau_2) d\tau_2 = c_{0k} \psi_k(\tau_1). \quad (2.13)$$

Le code correspondant numérique développé en Matlab est détaillé dans l'annexe A.2.1. Sur la figure 2.8 sont représentées les 4 fonctions propres typiques  $\psi_k(\tau)$  avec les plus grandes valeurs propres  $c_k^0$  ainsi que leurs carrés (intensités).



**Figure 2.8** – (Haut) Les quatre premiers modes cohérents temporels calculés en tant que fonctions propres de l'équation 2.13. (Bas) Carré des quatre premières fonctions propres. Fonctions propres calculées avec une impulsion de pompe de forme gaussienne, d'une durée de 3 ns, d'énergie 2,5  $\mu\text{J}$  et est centrée autour de  $\tau = 0$ .

Ensuite, nous montrons sur la figure 2.9 (c) les variations du rapport  $r = c_0^0 / \sum_{k \geq 1} c_k^0$  en fonction de l'énergie de l'impulsion laser  $\epsilon_L$  et de la largeur temporelle  $\tau_L$  pour les paramètres expérimentaux utilisés dans ce travail (voir ci-dessous). La zone rouge correspond à une situation où  $r$  est nettement supérieur à 1, ce qui indique qu'un unique STM est amplifié lors de l'interaction avec le gaz lumineux, comme le montrent clairement les valeurs propres  $c_k^0$  pour un point de travail expérimental typique ( $\tau_L = 3$  ps et  $\epsilon_L = 2,5$   $\mu\text{m}$ ) dans la figure 2.9 (b). Cela met clairement en évidence l'intérêt de travailler dans le régime SRS transitoire pour générer un unique STM. De plus, notez l'intérêt de la configuration de la fibre, qui permet d'améliorer l'interaction lumière-gaz, facilitant ainsi l'accès au régime SRS transitoire.



**Figure 2.9** – (a) Coupe transversale de la fibre creuse à cristal photonique qui sera utilisée dans ce travail (voir le chapitre 3). (b) Poids de chaque mode dans l’expansion du champ de Stokes en STM pour  $\tau_L = 3$  ps et  $\epsilon_L = 2,5 \mu\text{m}$ . Ici les paramètres géométriques de la fibre sont  $L = 3$  m et  $R = 19,5 \mu\text{m}$ . (c) Rapport  $r$  en décibels révélant le poids du premier mode STM par rapport aux suivants. La zone rouge correspond aux situations où le premier mode STM domine fortement. La ligne solide noire montre la transition entre les régimes de diffusion Raman spontanée et stimulée. La ligne en pointillées noires met en évidence, dans le régime stimulé, la transition entre les régimes transitoire et permanent.

## 2.5 La diffusion Raman stimulée en régime déplété

Dans le cas d’une interaction lumière-gaz suffisamment forte, il devient incorrect de négliger la perte d’énergie de l’impulsion de pompe lors de sa propagation à travers le milieu actif Raman. Cela se produit dès que la forme temporelle ou spectrale de la pompe est modifiée, ce qui est le cas pour presque toutes les configurations expérimentales fait au cours de cette thèse, comme on le verra plus loin dans le chapitre 4. Dans ce cas, l’approche analytique de la section précédente n’est pas suffisante, et les champs à la sortie de la fibre doivent être obtenus en résolvant numériquement les équations de Maxwell-Bloch. Pour cela j’ai développé un code numérique qui est présenté dans l’annexe A.2.2.

La résolution numérique de l’équation 2.7 nécessite la connaissance des constantes  $\kappa_1$  et  $\kappa_2$ . Dans le formalisme développé par Raymer *et al.* [53], ces constantes sont liées au coefficient de gain net Raman par l’intermédiaire de :

$$G_{\text{net}}(t) = \frac{2\kappa_1\kappa_2}{\Gamma|E_L(t)|^2L} \quad (2.14)$$



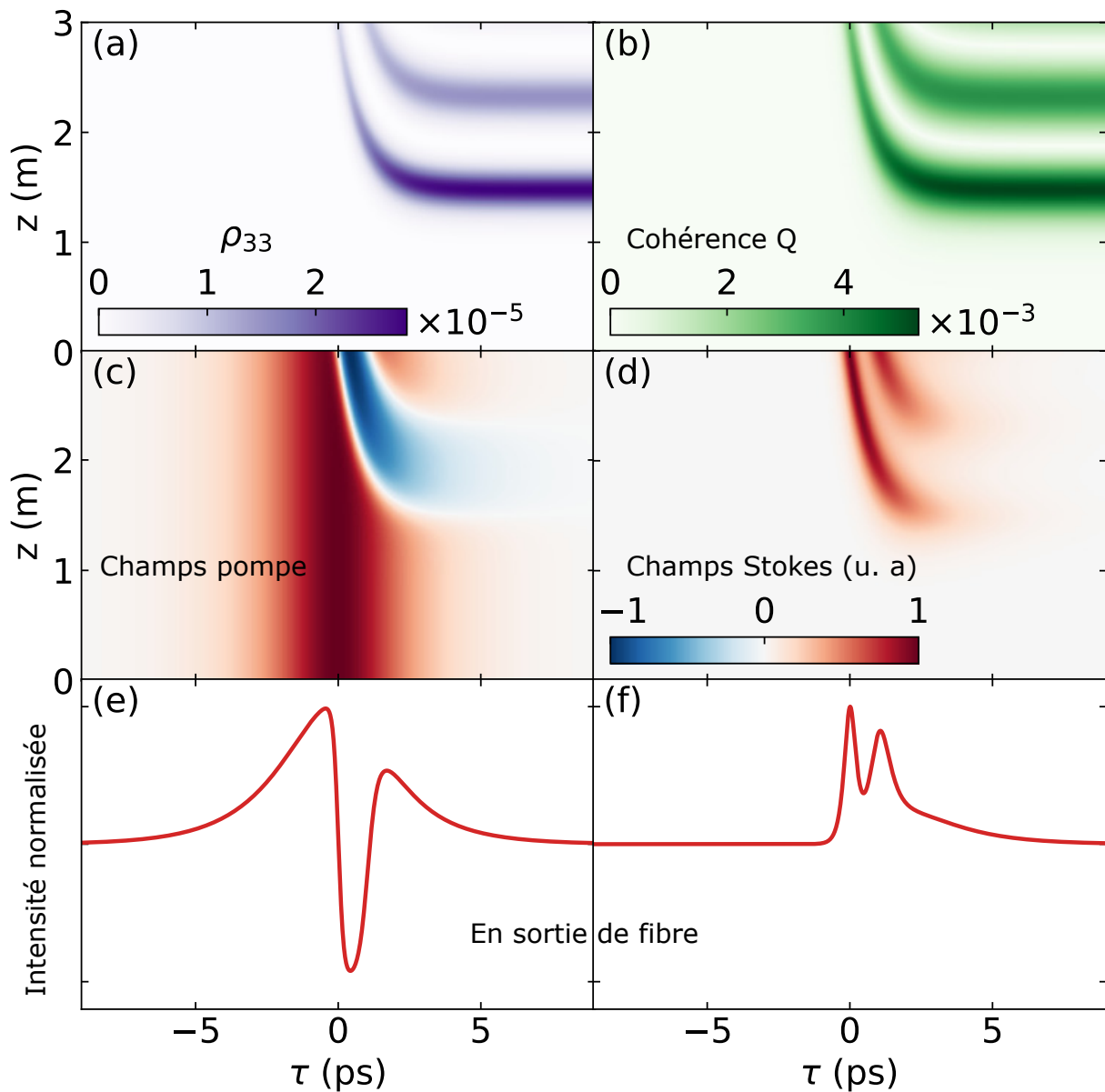
dans les unités gaussiennes. Dans ce système métrique, l'intensité optique est donnée par :

$$I(t) = \frac{c}{2\pi} |E_L(t)|^2 \quad (2.15)$$

de sorte que  $G_{\text{net}}(t) = \frac{4\pi\kappa_1\kappa_2}{\Gamma_c} I_L(t)L$ . En identifiant cette expression avec celle du gain net donnée dans l'équation 2.9, nous obtenons  $g_R = \frac{4\pi\kappa_1\kappa_2}{\Gamma_c}$ . En utilisant l'expression de  $\kappa_2$  rappelée dans la section 2.3, nous obtenons finalement :

$$|\kappa_1| = \sqrt{\frac{\Gamma c^2 g_R}{8\pi^2 N \hbar \omega_S}} \quad \text{et} \quad |\kappa_2| = \sqrt{\frac{1}{2} \Gamma N \hbar \omega_S g_R} \quad (2.16)$$

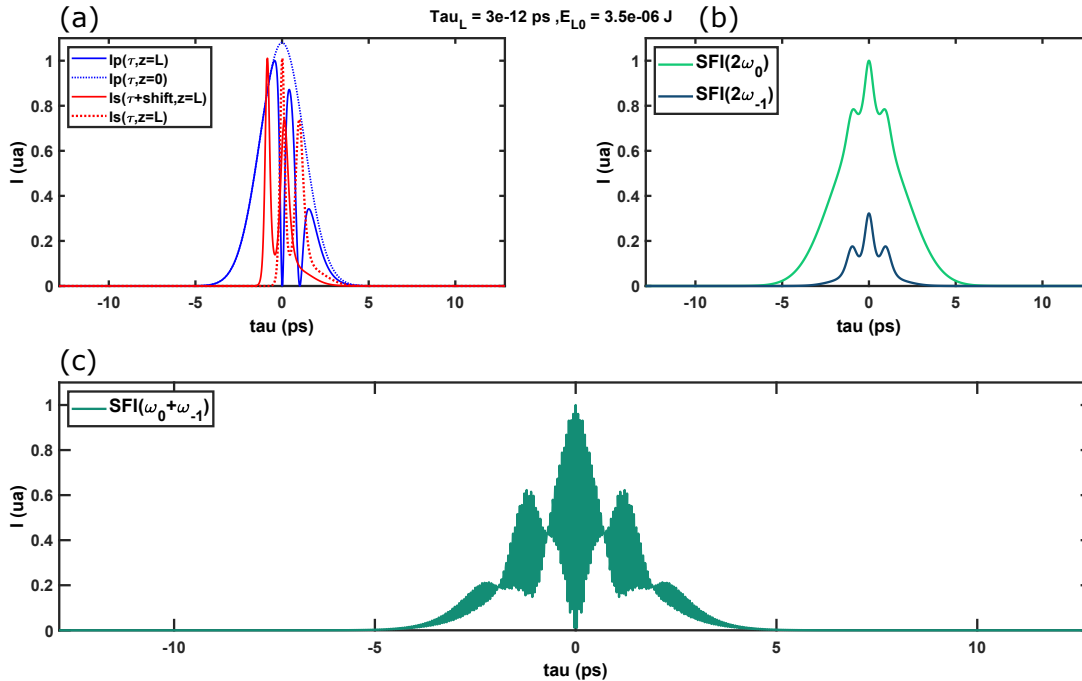
En supposant que ces constantes sont réelles et en utilisant le coefficient de gain Raman  $g_R = 1.3 \times 10^{-11} \text{cm/W}$ , les équations de Maxwell-Bloch peuvent être résolues numériquement en utilisant la méthode de Runge-Kutta d'ordre 4 (détaillée dans l'annexe A.1). Pour les conditions initiales du milieu Raman, nous avons supposé que toutes les molécules à deux niveaux (TLS) sont initialement dans leur état fondamental sans cohérence. D'autre part, on suppose que le champ de Stokes initial a la forme temporelle de l'impulsion de pompe avec une puissance optique équivalente à la moitié d'un photon, tenant compte du fait que le champ de Stokes dans le régime TSRS résulte de l'amplification des fluctuations du vide. Pour le système moléculaire, la résolution des équations de Maxwell-Bloch permet d'observer comment l'interaction lumière-matière structure le milieu à travers la dépendance spatiale et temporelle des termes de population et de cohérence. Nous montrons dans la figure 2.10 (a) la population de l'état excité  $\rho_{33} = (1 + n)/2$  et dans la figure 2.10 (b) le module du terme de cohérence  $Q$ , qui est un nombre imaginaire comme prévu par l'Eq. 2.7b pour  $E_L$  et  $E_S$  réels. En ce qui concerne les champs optiques, nous obtenons les champs de pompe et de Raman le long du milieu actif Raman à tout moment, comme présenté dans la figure 2.10 (c-d). Pour une énergie laser élevée considérée ici ( $E_L = 3.5 \mu\text{J}$ ), nous observons une forte structuration temporelle des champs de pompe et de Stokes dès que l'amplification du champ de Stokes devient suffisamment importante. En fin de compte, cette méthode permet d'obtenir les profils temporels des champs à la sortie de la fibre, comme le montre la figure 2.10 (e-f).



**Figure 2.10** – Distribution spatio-temporelle de la population de l'état excité (a), de la cohérence (b), du champ de pompage (c) et du champ de Stokes (d). Dans ces graphiques,  $z$  caractérise la position le long de la fibre et  $\tau = t - \frac{z}{c}$  est la variable de temps locale du laser. Enfin, (e) et (f) montrent respectivement les profils temporels du champ de la pompe et du champ de Stokes à la sortie de la fibre.

Notons que la combinaison de ces résultats avec le formalisme présenté dans la section 2.3 permet le calcul des traces temporelles attendues mesurées dans notre interféromètre à somme de fréquences (SFI). Les résultats de cette procédure complète sont présentés dans le chapitre expérimental 4 et nous verrons que les résultats numériques seront trouvés en très bon accord avec les résultats expérimentaux. La figure 2.11 présente un exemple de traces d'interféromètre

à somme de fréquences dans le cas où il n'y a pas de fluctuation de phase (voir Section 4.3) et dans le cas où le champ Stokes est retardé par rapport au champ de la pompe (voir Section 3.5).



**Figure 2.11** – Résultats numériques obtenus pour une impulsion pompe à l'entrée de la fibre de  $3$  ps et de  $3,5 \mu\text{J}$ . (a) Profils temporels de l'intensité de la pompe (en bleu), de l'intensité du Stokes (en rouge) à la sortie de la fibre, de l'intensité de la pompe (en pointillé bleu) à l'entrée de la fibre et de l'intensité du Stokes après application d'un délai de  $0,83$  ps entre le Stokes et la pompe. (b-c) Traces temporelles simulées d'un interféromètre à somme de fréquences (SFI) : (b) Contributions à  $2\omega_0$  et  $2\omega_{-1}$ . (c) Contribution à  $\omega_0 + \omega_{-1}$  lorsqu'aucune fluctuation de phase n'est prise en compte.

### Cas pour deux impulsions

Le même programme numérique a ensuite été étendu pour prendre en compte une deuxième impulsion. En effet, il est intéressant de voir comment la première impulsion modifie la cohérence du milieu et comment cette cohérence se répercute sur la deuxième impulsion en fonction du délai entre les deux impulsions. D'un point de vue numérique, pour gagner du temps de calcul, les équations 2.7 sont résolues trois fois. Une première fois pour récupérer les conditions finales de la cohérence et de la population de l'état excité après le passage de la première impulsion. Ces conditions finales sont utilisées comme conditions initiales ( $Q_{\tau_0}$  et  $n_{\tau_0}$ ) pour résoudre les équations 2.7, mais cette fois-ci en l'absence de champ électromagnétique pour prendre en compte la relaxation de la cohérence  $Q$  et de la population de l'état excité  $n$  entre les deux impulsions.  $Q$  et  $n$  sont obtenus analytiquement après simplification des

équations différentielles par :

$$Q(\tau) = Q_{\tau_0} e^{-\frac{\tau}{T_2}} \quad (2.17a)$$

$$n(\tau) = (n_{\tau_0} - n_0) e^{-\frac{\tau}{T_1}} + n_0 \quad (2.17b)$$

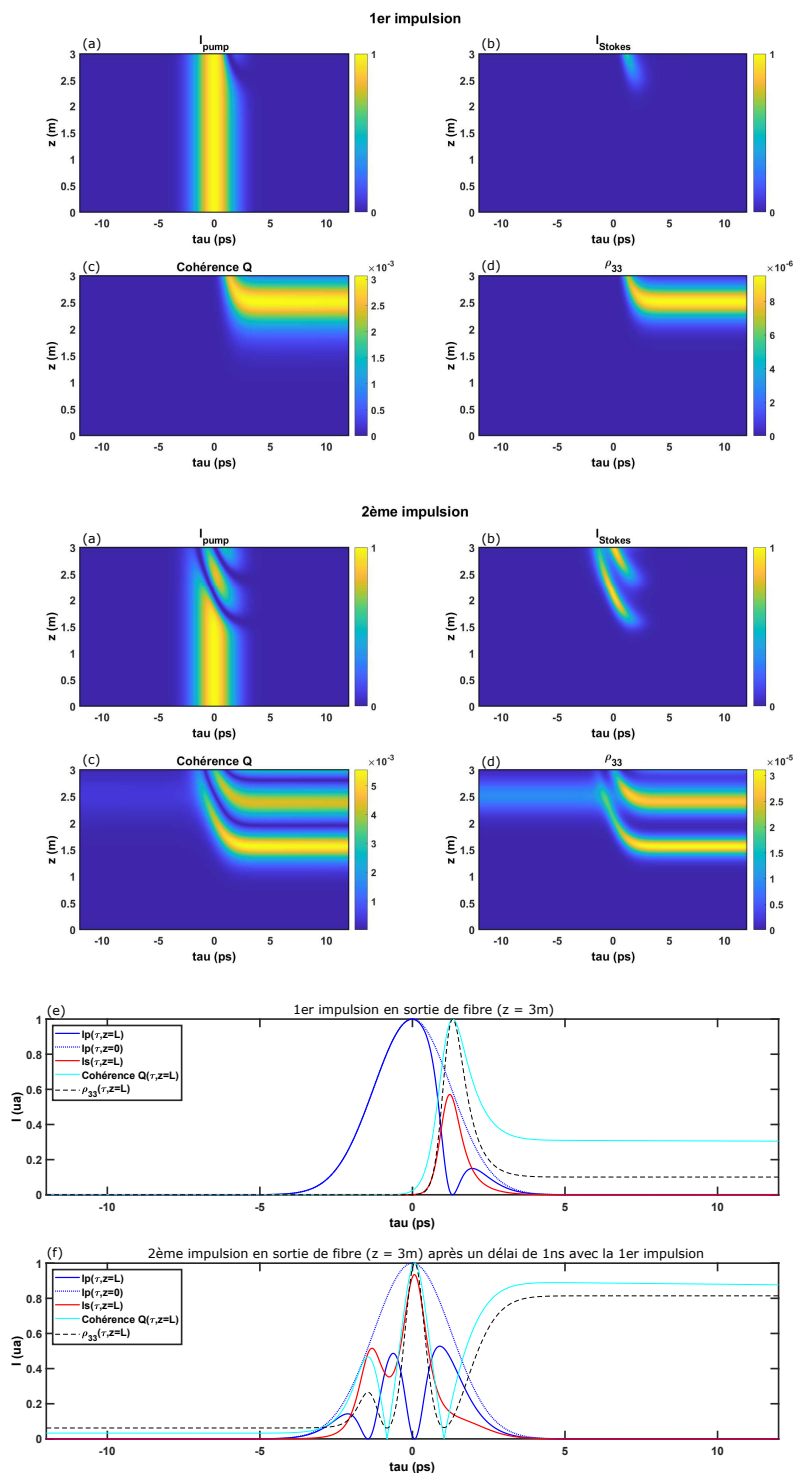
Les conditions finales des équations 2.17 sont utilisées comme conditions initiales des équations 2.7 pour le passage de la deuxième impulsion. On remarque que si le délai  $\tau$  entre les deux impulsions est suffisamment long,  $Q(\tau_0 \rightarrow +\infty) \rightarrow Q_{\tau_0}$  et  $n(\tau \rightarrow +\infty) \rightarrow n_{\tau_0}$ , c'est à dire que la deuxième impulsion interagit avec le milieu Raman indépendamment de l'impact de la première impulsion sur le milieu.

La figure 2.12 montre les résultats numériques des équations de Maxwell-Block pour deux impulsions espacées de 1 ns, soit deux fois plus petit que le temps de relaxation  $T_2$ .

Nous montrons sur la figure 2.12 (c) la population de l'état excité  $\rho_{33} = (1 + n)/2$  et sur la figure 2.12 (d) le module du terme de cohérence  $Q$ , qui est un nombre imaginaire comme prévu par l'équation 2.7b pour  $E_L$  et  $E_S$  réels ainsi que l'évolution spatiale et temporelle des intensités de la pompe (a) et du Stokes (b) pour les deux impulsions.

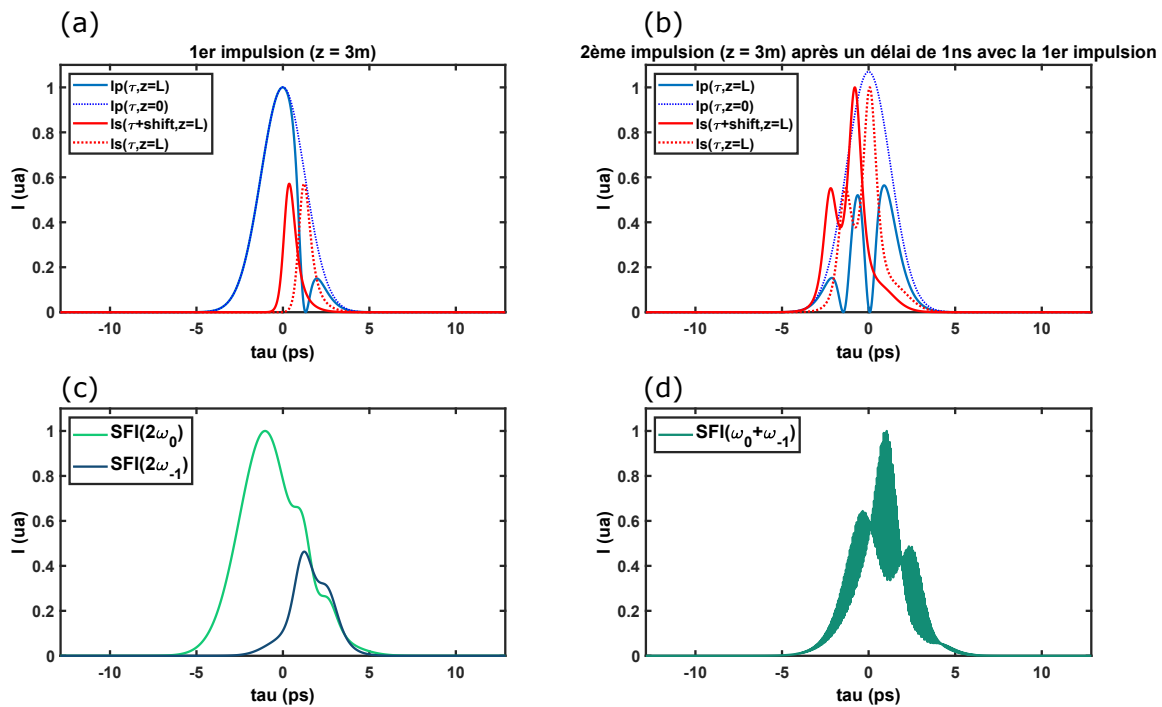
Pour une puissance laser de la pompe de  $2 \mu\text{J}$  par impulsion, la structure temporelle des intensités de la pompe et du Stokes des deux impulsions sont très différentes. Le passage de la première impulsion augmente la cohérence du milieu et celle-ci diminue progressivement dans le temps. La deuxième impulsion profite de la cohérence initiée par la première impulsion et amplifie plus fortement le champ Stokes. Ces résultats sont visibles sur la structure temporelle des impulsions en sortie de fibre (figure 2.12 3(a-b)).

## CHAPITRE 2. DIFFUSION RAMAN STIMULÉE EN RÉGIME IMPULSIONNEL



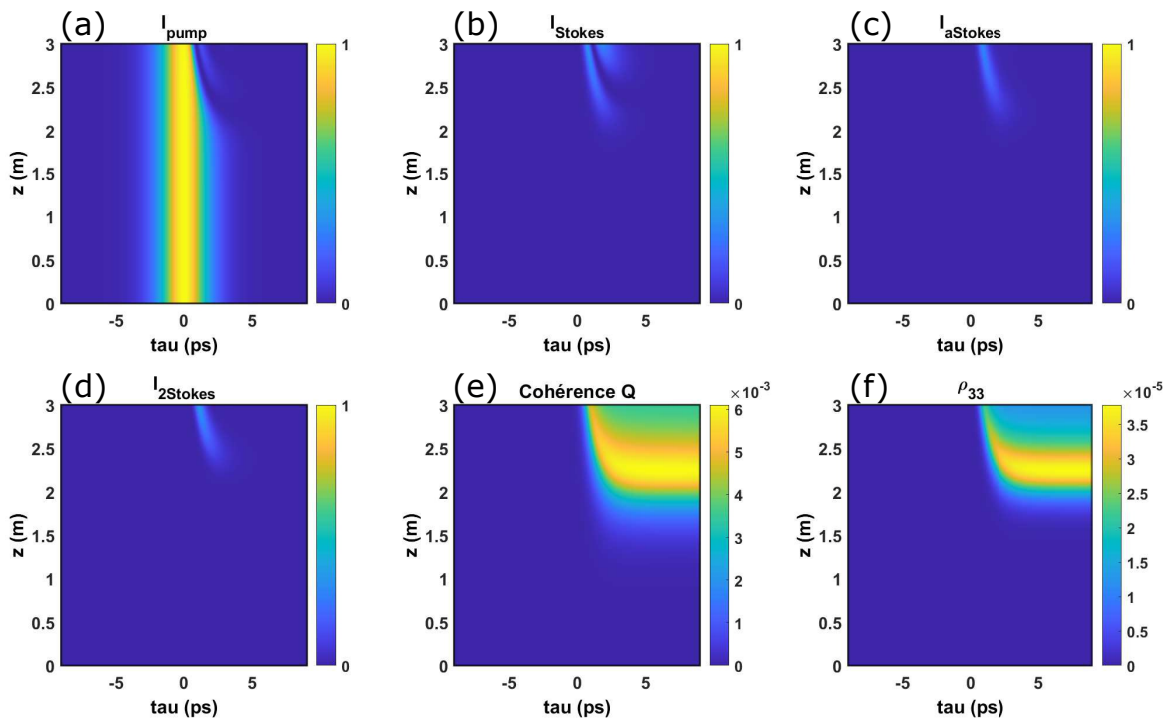
**Figure 2.12** – Distribution spatio-temporelle de l'intensité de la pompe (a), de l'intensité de Stokes (b), de la cohérence (c) et de la population de l'état excité (d) pour la première impulsion (haut) et pour la deuxième impulsion (milieu) après un délai de 1 ns pour des impulsions de 3 ps et de  $2 \mu\text{J}$ . Dans ces graphiques,  $z$  caractérise la position le long de la fibre et  $\tau = t - \frac{z}{c}$  est la variable de temps locale du laser. Les figures (e,f) montrent respectivement les intensités de la pompe et du Stokes, la distribution de la population de l'état excité et de la cohérence à la sortie de la fibre pour la première impulsion (e) et pour la deuxième impulsion (f).

De la même façon qu'avec le cas d'une impulsion, on peut remonter aux interférences de la somme de fréquences, mais cette fois-ci avec les impulsions croisés 1 et 2. On peut calculer les convolutions de la première impulsion et de la deuxième impulsion pour les termes de la pompe  $2\omega_0$  et du Stokes  $2\omega_{-1}$  ainsi que leur mélange  $\omega_0 + \omega_{-1}$ . Ces résultats pourront être comparés avec les résultats expérimentaux obtenus sur le système interpulse dans le chapitre 5. Nous montrons sur la figure 2.13 les profils d'intensité du Stokes et de la pompe pour la première impulsion (a) et la deuxième (b) après un délai de 1 ns en sortie de fibre. Un décalage de  $-0,83$  ps est appliqué à l'impulsion Stokes pour prendre en compte la différence de vitesse entre la pompe à 1030 nm et le Stokes à 1100 nm après une propagation dans 3 m de fibre creuse. Les résultats des interférences à somme de fréquences croisés sont présentés sur les figures 2.13(c-d). Sur la figure 2.13(c) sont tracées les contributions en  $2\omega_0$  et  $2\omega_{-1}$ . On remarque que les traces ne sont plus symétriques et centrées en zéro, cela est dû à la structure temporelle différente des champs de la première et de la deuxième impulsion. La contribution en  $\omega_0 + \omega_{-1}$  est représentée sur la figure 2.13(d), de la même manière la symétrie est perdue mais cette fois-ci on observe les oscillations dues au battement entre la pompe et le Stokes de période 57 fs. Il est important de noter que dans les simulations des équations de Maxwell-Block, les fluctuations de phase ne sont pas prises en compte et que la phase des impulsions 1 et 2 est identique. Nous verrons dans les chapitres expérimentaux 4 et 5 que cette condition n'est pas vérifiée et que les impulsions 1 et 2 ont leurs propres phases bien distinctes, résultant en une baisse du contraste en fonction du délai entre les deux impulsions lié au déphasage Raman  $\Gamma$ .

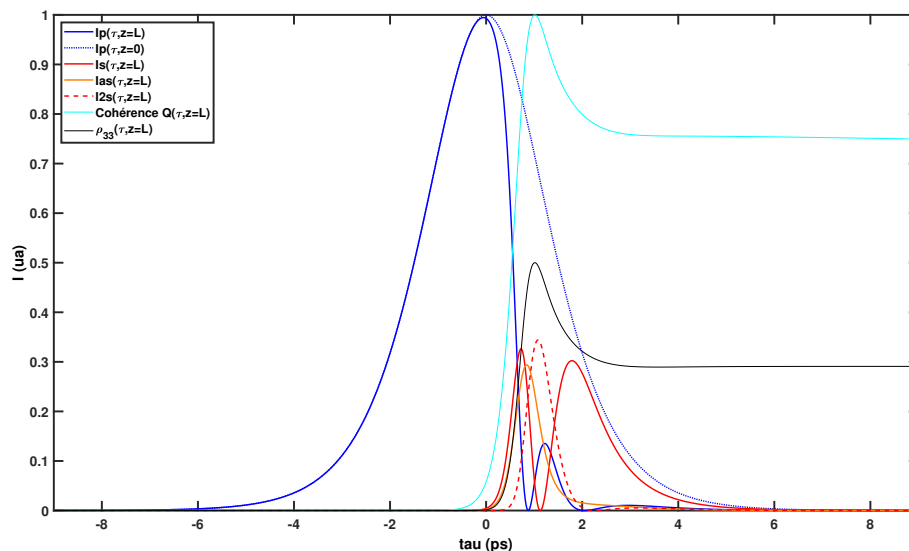


**Figure 2.13** – Résultats numériques obtenus pour deux impulsions pompe à l'entrée de la fibre de largeur d'impulsion  $3\text{ ps}$ , d'énergie  $2\text{ }\mu\text{J}$  et séparées d'un délai de  $1\text{ ns}$ . (a-b) Profils temporels de l'intensité de la pompe (en bleu) et de l'intensité du Stokes (en rouge) à la sortie de la fibre, profils temporels de l'intensité de la pompe (en pointillé bleu) à l'entrée de la fibre et profils temporels de l'intensité du Stokes après application d'un délai de  $0,83\text{ ps}$  entre le Stokes et la pompe pour la première impulsion (gauche) et pour la deuxième impulsion (droite). (c-d) Traces temporelles simulées d'un interféromètre à somme de fréquences (SFI) croisées entre la première et la deuxième impulsion : (c) Contributions croisées à  $2\omega_0$  et  $2\omega_{-1}$ . (d) Contributions croisées à  $\omega_0 + \omega_{-1}$  lorsque aucune fluctuation de phase n'est prise en compte.

Quelques perspectives sont à envisager pour améliorer le programme numérique, en particulier la prise en compte des autres raies Raman. Des premières simulations ont été réalisées (voir figure 2.14 et 2.15), mais elles nécessitent une confirmation théorique qui est actuellement en cours. De plus, il sera nécessaire d'intégrer les fluctuations de phase du champ Stokes provenant de l'amplification du bruit du milieu Raman, pour une compréhension plus exhaustive de la cohérence d'une peigne Raman générée à travers une fibre creuse.



**Figure 2.14** – Distribution spatio-temporelle de l'intensité de la pompe (a), de l'intensité de Stokes (b), de l'intensité de l'anti-Stokes (c), de l'intensité du deuxième Stokes (d), de la population de l'état excité (e) et de la cohérence (f) de pour une impulsion pompe de 3 ps et de 5  $\mu\text{J}$  en entrée de fibre.



**Figure 2.15** – Intensités de la pompe, du Stokes, de l'anti-Stokes, du deuxième Stokes et distribution de la population de l'état excité et de la cohérence à la sortie de la fibre.



## 2.6 Conclusion

Pour conclure ce chapitre théorique, nous avons exposé le modèle utilisé pour décrire la diffusion Raman stimulée (DRS) en régime impulsionnel. Nous avons examiné en détail les équations de Maxwell-Bloch et exploré les différents régimes possibles de la DRS, tout en présentant une résolution modale du champ Stokes et leurs implications sur la cohérence Raman. Des simulations numériques ont été réalisées dans le cadre d'une approche simplifiée, où une pompe non déplétée a permis l'amplification du champ Stokes à partir du bruit quantique. Enfin, nous avons étendu cette approche à une pompe déplétée, élargissant ainsi la portée de notre analyse. Ces développements théoriques et ces simulations offrent un aperçu approfondi des mécanismes sous-jacents à la DRS en régime impulsionnel et permettront de faire des comparaisons avec les données expérimentales issues des chapitres à venir.

# 3

## Fibres creuses à couplage inhibé à faibles pertes et à contenu unimodal

**Résumé :** Ce chapitre se concentrera sur le développement de fibres optiques à cœur creux pour les applications nonlinéaires Raman. Ainsi, après avoir dressé un rapide rappel historique de ces fibres creuses, nous décrirons dans une première partie le mécanisme de guidage par couplage inhibé et ses grandeurs caractéristiques associées ainsi que l'évolution des performances obtenues au fil du temps. Puis dans un second temps, nous présenterons la conception d'une nouvelle fibre creuse dite hybride permettant de démontrer pour la première fois de faibles pertes linéiques et un guidage unimodal. Enfin, nous fournirons une description détaillée d'une telle fibre fabriquée qui sera utilisée par la suite pour la génération de peigne de fréquence.

## Sommaire

---

3.1	Introduction historique aux fibres optiques à coeur creux . . . . .	<b>67</b>
3.2	Le mécanisme de guidage par couplage inhibé . . . . .	<b>69</b>
3.2.1	Approche analytique simplifiée . . . . .	71
3.2.2	Approche numérique approfondie . . . . .	77
3.3	Évolution des performances des fibres creuses à couplage inhibé . . . . .	<b>83</b>
3.3.1	La problématique du contenu modal . . . . .	86
3.4	Développement d'une fibre creuse monomode et à faibles pertes . . . . .	<b>87</b>
3.4.1	Conception d'une fibre creuse à maille hybride . . . . .	87
3.4.2	Fabrications et caractérisations de la fibre creuse hybride . . . . .	92
3.5	Conclusion . . . . .	<b>95</b>

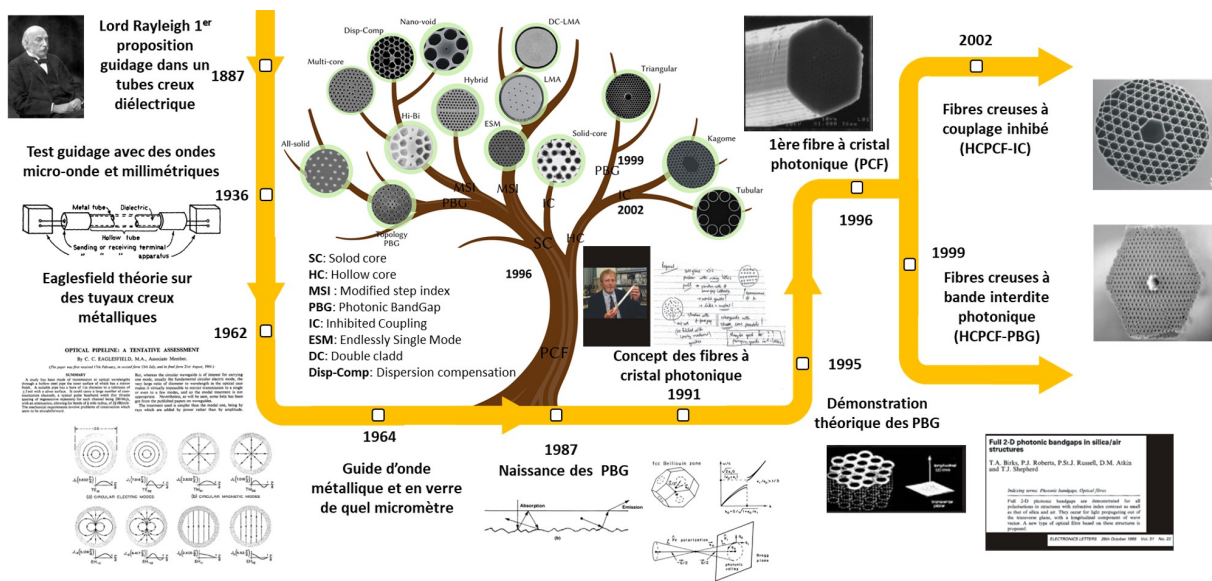
---

### 3.1 Introduction historique aux fibres optiques à cœur creux

Le guidage des ondes électromagnétiques à l'intérieur de tubes creux a été proposé pour la première fois par Lord Rayleigh en 1887 [55] suivi de tests expérimentaux notamment en 1936 avec des travaux qui se concentraient autour des ondes millimétriques et micro-ondes [56-58]. En parallèle, l'idée d'utiliser de tels guides pour piéger la lumière aux longueurs d'onde de l'optique a été étudiée théoriquement en 1962 par Eaglesfield sur la base de « tuyaux » métalliques creux de diamètre 25 mm à des fins de communications optiques [59]. Cependant, les pertes de transmission et de courbure étaient trop élevées en pratique pour être vue comme une solution viable. Les fibres capillaires creuses en verre ainsi que les guides d'ondes métalliques creux de diamètres réduits à quelques centaines de micromètre ont alors été proposés et étudiés en détail par Marcatili et Schmeltzer dès 1964 [60]. A l'époque, les auteurs s'intéressaient aux applications de communications optiques mais aussi aux amplificateurs lasers à gaz. Une fois de plus, les pertes suivant une loi proportionnelle à  $\frac{\lambda}{R^2}$  (avec  $R$  le rayon du cœur d'air) et ayant une forte dépendance à la courbure en  $\frac{R^3}{\lambda^2 R_c^2}$  (avec  $R_c$  le rayon de courbure) eurent pour conséquence de limiter leurs utilisations à des longueurs métriques et en configuration purement rectiligne. Il a alors fallu attendre la fin des années 1980 pour qu'une nouvelle ère puisse être lancée avec la découverte de la bande interdite photonique par les travaux de Yablonovitch [61] et John [62] et qui, par extension, ont inspiré Pr. Philipp Russell à proposer le concept des fibres à cristal photonique (PCF - *Photonic Crystal Fiber*) en 1991 [63]. En effet, ces fibres d'un nouveau genre se distinguent par la présence d'une gaine micro-structurée qui est constituée d'un assemblage périodique de trous d'air au sein d'une matrice diélectrique de silice dont la période est comparable à celle de la longueur d'onde. Comme l'illustre la Fig. 3.1 cette rupture technologique a ouvert la voie à la conception de multiples fibres originales qui se distinguent par divers paramètres tels que leur mécanisme de guidage, l'architecture de leur gaine et de leur cœur, les matériaux utilisés, des propriétés optiques spécifiques, ainsi que les applications visées. A titre d'exemple on y trouve des fibres infiniment monomode (ESM - *Endlessly Single Mode*) [64], des fibres à grande aire modale (LMA - *Large Mode Area*) pour les applications laser de puissance [65] ou à l'inverse à petite aire modale pour les applications de supercontinuum [66], des fibres à deux cœurs concentriques pour la compensation de la dispersion chromatique dans les télécommunications optiques [67] ou encore des fibres dont le cœur est creux [68]. Ces dernières, connues tout d'abord sous le nom de fibres creuses à bande interdite photonique (PBG-HCPCF - *Photonic Bandgap Hollow-Core Photonic Crystal Fiber*) se démarquent des autres types de fibres en raison de leur capacité à guider la lumière dans l'air à des échelles micrométriques. Un tel guidage a été réalisé pour la première fois en 1999 [68] pour permettre

d'atteindre quelques années plus tard des atténuations aussi faibles que 1,2 dB/km à 1620 nm en 2005 [69]. Il convient de noter qu'une distinction doit être faite entre les fibres à bande interdite photonique à cœur creux, qui ont une bande interdite 2D hors plan complète, et les fibres de Bragg [70], ou Omniguide [71] qui elles sont constituées d'un réseau annulaire périodique 1D d'indice de réfraction élevé et faible, disposés de manière concentrique autour du cœur d'air. Ces fibres à bande interdite ont ainsi introduit un nouveau paradigme car pour la première fois, une fibre optique creuse à petit cœur (d'une dizaine de micromètres) pouvait être courbée tout en offrant de faibles pertes de propagation et un guidage quasi unimodale, contrairement aux fibres capillaires citées précédemment. Très rapidement elles furent alors utilisées pour de nombreuses applications dont les générations nonlinéaires parmi lesquelles on compte le mélange à quatre ondes [72], l'élargissement spectral par automodulation de phase [73], la génération solitonique [74] ou encore la diffusion Raman stimulée dans les gaz [31]. Cependant, il est à noter que les performances linéaires en terme d'atténuation n'ont elles jamais pu atteindre le potentiel envisagé pour les télécommunications optiques en raison de pertes additionnelles introduits par la structure de la gaine lors de leur fabrication avec en particulier les pertes par diffusion de surface [69]. De plus, les limitations de bande passante, de longueurs d'onde accessibles (notamment la région de l'ultraviolet) et de pente de dispersion inhérentes aux fibres à bande interdite photonique ont été un frein supplémentaire à l'établissement de cette technologie, jusqu'à l'arrivée d'une nouvelle génération de fibres creuses apparues pour la première fois en 2002 [35], basées sur un principe de guidage différent connu aujourd'hui sous le nom de « couplage inhibé ». Ces fibres étant au cœur de mes travaux de recherche, je vais maintenant décrire en détail leur mécanisme de guidage ainsi que l'évolution des performances qui a été obtenue au fil du temps.

## CHAPITRE 3. FIBRES CREUSES À COUPLAGE INHIBÉ À FAIBLES PERTES ET À CONTENU UNIMODAL



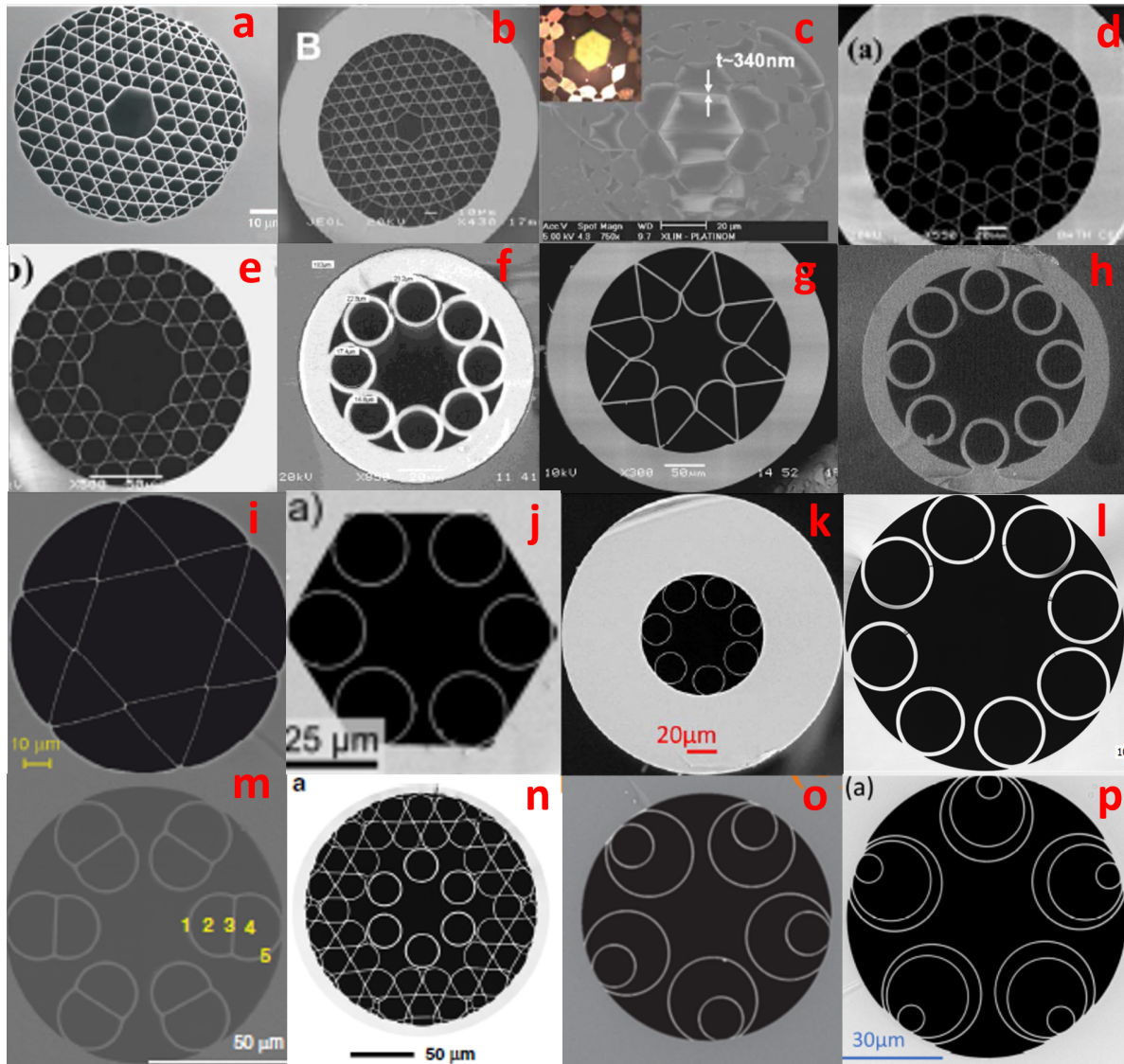
**Figure 3.1** – Frise historique de l'évolution des fibres à cœur creux. (Au centre) Arborescence du développement plus général des fibres à cœur cristal photonique.

### 3.2 Le mécanisme de guidage par couplage inhibé

La famille de fibre à cœur creux guidant par couplage inhibé (CI) a été introduite pour la première fois par Benabid *et al.* en 2002 [35]. A cette date, contrairement à ce qui était attendu avec le principe de bande interdite photonique, la transmission optique de ces fibres a montré avec surprise la présence de multiples bandes passantes spectrales s'étendant sur plusieurs octaves avec des pertes de l'ordre du dB/m. Il apparaîtra quelques années plus tard que le principe de guidage sous-jacent reposait en fait sur une combinaison de deux phénomènes : une inhibition du couplage entre les modes du cœur d'air et ceux de la gaine (d'où le terme de couplage inhibé) et un effet d'antirésonance dû aux fines membranes de verre entourant le cœur d'air [27]. De plus, une autre différence marquée avec les PBG-HCPCF repose sur l'ajout de couronnes supplémentaires de trous d'air à la structure de la gaine qui, pour ces fibres, ne semble que peu impacter la réduction des pertes [75]. Cette prise de conscience a alors conduit à l'apparition de nombreux designs de fibres y compris à une simplification des structures passant de la maille originelle Kagomé à progressivement un seul anneau de trous d'air composant la gaine [76]. De plus, l'absence de jonction (ou nœud de silice) entre les différentes membranes des alvéoles de la gaine [77] et la présence d'une courbure négative entourant le cœur d'air [78] sont vite apparus comme deux éléments clés pour démontrer un guidage efficace dans ces structures. Un panorama de ces différentes fibres est présenté en figure 3.2. Plus de détails sur

### CHAPITRE 3. FIBRES CREUSES À COUPLAGE INHIBÉ À FAIBLES PERTES ET À CONTENU UNIMODAL

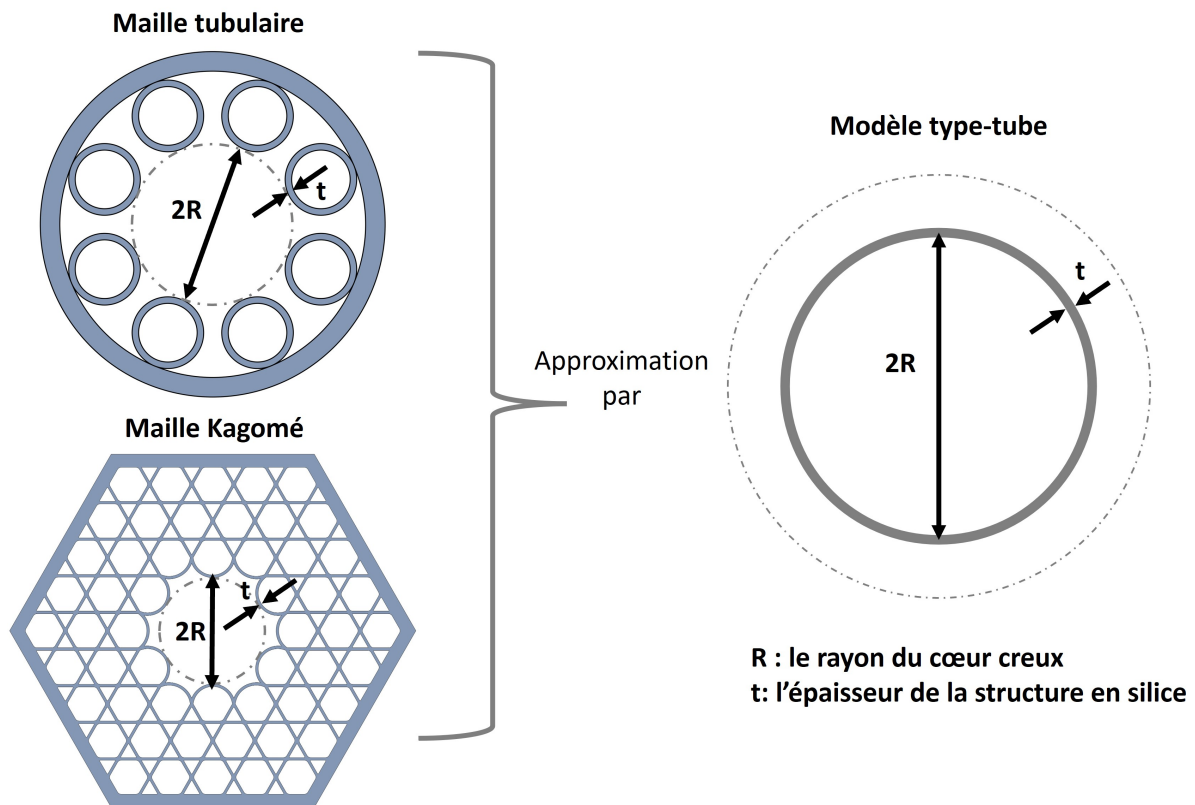
l'évolution associée en termes d'atténuation linéique sera donnée dans la suite de ce chapitre. Dans ce contexte, il est aujourd'hui admis que pour mieux comprendre les subtilités du guidage par CI et concevoir de nouvelles fibres, il est nécessaire de s'intéresser à la structure géométrique de la gaine et à la forme du cœur d'air mais aussi d'étudier leur contenu modal respectif.



**Figure 3.2** – Panorama de différents exemples de structures de fibres creuses à couplage inhibé rapportées dans la littérature : (a) [35],(b) [27] ,(c) [76],(d) [78],(e) [78],(f) [77],(g) [79],(h) [80],(i) [81],(j) [82],(k) [83],(l) [84] ,(m) [85],(n) [86],(o) [87],(p) [88].

### 3.2.1 Approche analytique simplifiée

Dans un premier temps, nous allons aborder le principe du CI par une approche simplifiée. Pour cela on considère ces fibres comme étant uniquement la somme d'un cœur creux (rempli d'air ou d'un gaz particulier) entouré d'un tube en silice suivi par une couche d'un milieu gazeux (voir figure 3.3).



**Figure 3.3** – Représentation de l'approche simplifiée utilisée pour étudier la dispersion d'une fibre creuse à couplage inhibé. Seuls deux paramètres géométriques sont nécessaires : le rayon de la fibre  $R$  et l'épaisseur des ponts de silice  $t$ .

Malgré cette simplification par rapport à la structure complexe de la gaine, la méthode permet de remonter avec une grande précision à la dispersion et aux différentes résonances spectrales qui apparaissent au sein de ces fibres en ne considérant que le rayon de cœur  $R$  et l'épaisseur des ponts de silice  $t$  [89]. En effet, le champ guidé par CI étant localisé essentiellement dans la région du cœur (recouvrement avec la silice de l'ordre du ppm), l'évolution de l'indice effectif et de la dispersion est donc en première approximation indépendante de la structure géométrique de la gaine.



### Équation de l'indice effectif des modes guidés

Récemment un modèle analytique [90] a été développé permettant d'extraire les valeurs de l'indice effectif  $n_{eff}$  et les valeurs de la constant de propagation  $\beta$  des différents modes  $HE_{m,n}$  pouvant se propager dans une telle fibre creuse à CI. Cette constant de propagation  $\beta$  est relié à l'indice effectif  $n_{eff}$  par :  $\beta = n_{eff}k_z$ , avec  $k_z$  le vecteur d'onde projeté sur l'axe de propagation de la fibre optique. L'indice effectif prend alors pour expression :

$$n_{neff} = n_{gas} - \frac{j_{m-1,n}^2}{2k_0^2 n_{gas} R^2} - \frac{j_{m-1,n}^2}{k_0^3 n_{gas}^2 R^3} \frac{\cot(\Psi(t)) \epsilon + 1}{\sqrt{\epsilon - 1} \cdot 2}, \quad (3.1)$$

avec  $\Psi(t) = k_0 t \sqrt{n_{silice}^2 - n_{gas}^2}$ ,  $R$  le rayon de la fibre,  $\epsilon = \frac{n_{silice}^2}{n_{gas}^2}$ ,  $j_{m,n}$  la  $n$ -ième racine de la  $m$ -ième fonction de Bessel (selon les modes guidés,  $j_{m,n} = 2, 4048, 3, 8317, 5, 1356, 5, 5201, \dots$ ),  $t$  l'épaisseur du tube de silice,  $n_{gas}$  l'indice de réfraction du gaz et  $n_{silice}$  l'indice de réfraction de la silice.

Cette équation peut être vue comme la somme de deux termes, à savoir un premier évoluant lentement noté  $n_{mean}$  et un second noté  $n_{discont}$  qui lui sera lié aux résonances. On peut alors écrire que :

$$n_{neff} = n_{mean} + n_{discont} \quad (3.2)$$

avec

$$n_{mean} = n_{gas} - \frac{j_{m-1,n}^2}{2k_0^2 n_{gas} R^2} \quad (3.3a)$$

$$n_{discont} = - \frac{j_{m-1,n}^2}{k_0^3 n_{gas}^2 R^3} \frac{\cot(\Psi(t)) \epsilon + 1}{\sqrt{\epsilon - 1} \cdot 2} \quad (3.3b)$$

Les deux termes  $n_{mean}$  pris individuellement sont en fait similaire aux équations établies par Marcatili et Schmeltzer [60]. Ce terme dépend uniquement de l'indice du gaz  $n_{gas}$  et du rayon de cœur de la fibre  $R$ . La dispersion moyenne est donc le résultat d'une compétition entre la dispersion du milieu, qui est ici le gaz, et la dispersion du guide soit :

$$n_{mean} = 1 + n_{medium\ dispersion} + n_{guide\ dispersion} \quad (3.4)$$

avec

$$n_{medium\ dispersion} = n_{gas} - 1 \quad (3.5a)$$

$$n_{guide\ dispersion} = -\frac{j_{m-1,n}^2}{2k_0^2 n_{gas} R^2} \quad (3.5b)$$

On remarque que la dispersion du guide dépend directement de son rayon en suivant une loi de proportionnalité  $\propto \frac{\lambda^2}{R^2}$ . Ainsi, plus la taille du cœur sera petite plus la dispersion sera abrupte. Concernant la dispersion induite par le gaz, elle est souvent négligeable car son indice est proche de 1. Néanmoins elle peut avoir une importance dans le cas où le rayon du cœur de la fibre devient important et/ou pour des longueurs d'onde courtes.

La température et la pression du gaz dans la fibre sont aussi des paramètres importants qui impactent directement la valeur de l'indice du gaz. D'un point de vue pratique ces paramètres sont malléables et offrent la possibilité de jouer directement sur la dispersion contrairement aux paramètres de la fibre qui eux sont fixés lors de l'étape de fabrication. L'équation générale de Sellmeier permet d'extraire la valeur de l'indice de réfraction du gaz en fonction de la température  $T$  et de la pression  $P$  aux conditions normales de température et de pression  $(T_0, P_0)$ , soit :

$$n_{gaz}(\lambda, T, P) \approx \sqrt{1 + (n_{gaz}^2(\lambda, T_0, P_0) - 1) \frac{P}{P_0} \frac{T_0}{T}} \quad (3.6)$$

Cette équation 3.6 montre que la pression et la température ont des influences similaires mais de sens opposé. Augmenter la pression ou diminuer la température rend le gaz plus dispersif. A noter que la température a une influence moindre que la pression.

Considérons maintenant le troisième terme  $n_{discont}$  qui introduit les résonances dû au pont de silice (voir l'équation 3.3b). Ce terme est significatif uniquement lorsque la fonction cotangente diverge, c'est-à-dire lorsque  $\Psi(t)$  tend vers  $m\pi$ , avec  $m$  un entier. Étant donné que  $\Psi(t) = k_0 t \sqrt{n_{silice}^2 - n_{gas}^2}$ , cela se produit lorsque :

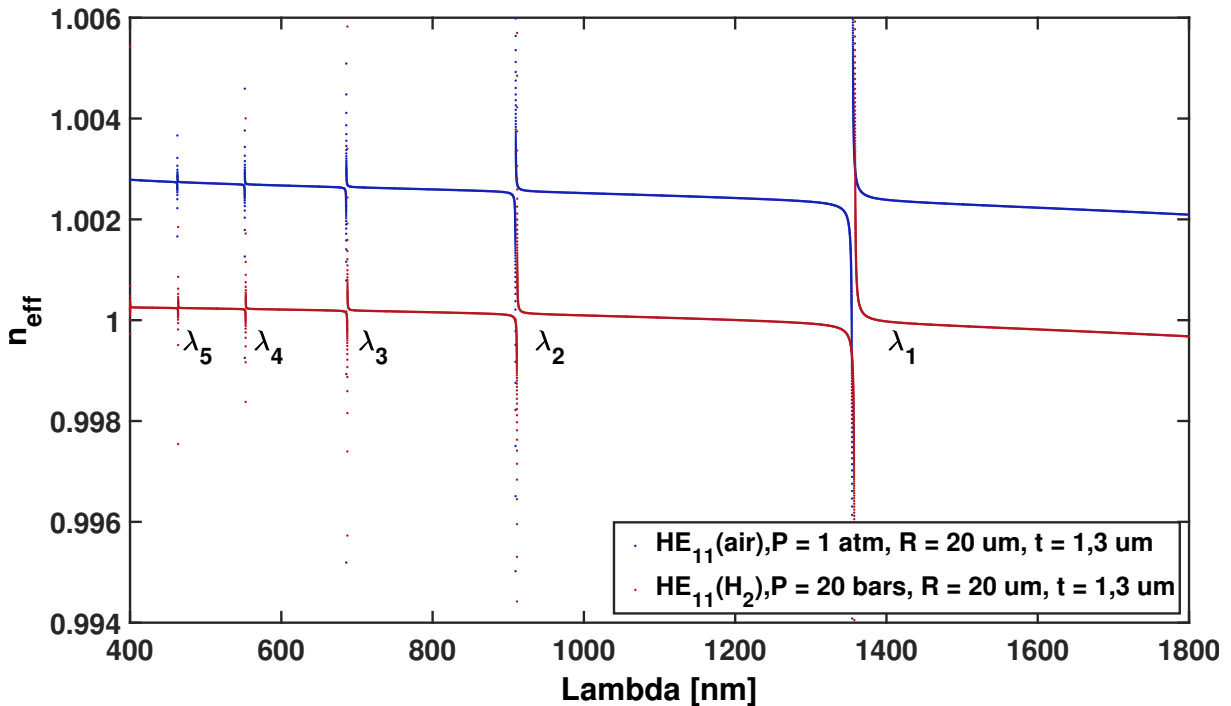
$$\lambda_m = \frac{2t}{m} \sqrt{n_{silice}^2 - n_{gas}^2} \quad (3.7)$$

$\lambda_m$  correspond à la position en longueurs d'onde des résonances, autrement dit ce sont les longueurs d'onde pour lesquelles il existe un couplage fort entre le mode de cœur et les modes de gaine de la silice. L'équation 3.7 montre que la position des résonances dépend de l'indice de réfraction du milieu. Dans le cas où  $n_{gas}$  est de l'air (soit un indice proche de 1), l'équation peut être simplifiée en  $\phi_m = 2t \sqrt{n_{si}^2 - 1}$ . Ainsi, nous supposons que la position des discontinuités dépend uniquement de l'épaisseur des ponts en silice  $t$ . Cette expression est à rapprocher du modèle de guidage anti-résonant (ARROW - *AntiResonant Reflecting Optical Waveguide*)[91].

Finalement, afin d'illustrer ces différentes tendances, j'ai tracé l'évolution de l'indice effectif pour l'exemple du mode fondamental  $HE_{11}$  (mode théorique se rapprochant du  $LP_{01}$  qui sera au centre de mes travaux expérimentaux) pour le cas d'une fibre creuse ayant des ponts de silice  $t = 1,3 \mu\text{m}$  et un rayon de cœur  $R = 20 \mu\text{m}$  (paramètres similaires à ceux de la fibre utilisée par la suite). Dans ce cas, l'équation 3.1 s'écrit :

$$n_{LP_{01}} = n_{HE_{11}} = n_{gas} - \frac{2,405^2}{2k_0^2 n_{gas} R^2} - \frac{2,405^2}{k_0^3 n_{gas}^2 R^3} \frac{\cot(\Psi(t)) \epsilon + 1}{\sqrt{\epsilon - 1}} \frac{\epsilon + 1}{2} \quad (3.8)$$

De plus, deux exemples de jeu de pression de gaz ont été tracés à savoir le cas de l'air et le cas de l'hydrogène pour une pression de 20 bars, qui correspondent à mes conditions expérimentales à venir. La courbe tracée en figure 3.4 permet de mettre en évidence la présence de résonances dû à la paroi fine de silice entourant le cœur qui sont identifiées par  $\lambda_m$  ainsi que l'impact du choix du milieu gazeux sur la valeur de l'indice effectif.



**Figure 3.4** – Evolution de l'indice effectif  $n_{eff}$  pour le mode fondamental  $HE_{11}$  dans le cas d'une fibre creuse avec un rayon  $R$  de  $20 \mu\text{m}$  et d'épaisseur  $t$  de  $1,30 \mu\text{m}$  remplie avec de l'air (en bleu) et 20 bars d'hydrogène (en rouge) avec  $\lambda_m$  la position de la  $m$ -ième longueurs d'onde des résonances.

### Équation de l'indice effectif des modes guidés

Une seconde notion importante pour mes travaux concerne la problématique de la dispersion des modes guidés. On rappelle que lors de la propagation d'une onde électromagnétique dans

un milieu, la réponse du matériau dépend de la longueur d'onde  $\lambda$ . Elle se traduit par la variation de l'indice de réfraction  $n$  du milieu en fonction de la pulsation  $\omega = 2\pi\nu = 2\pi c/\lambda$ . Ce phénomène impacte essentiellement les impulsions ultra-courtes. En effet, les fréquences qui composent une impulsion ne se déplacent pas à la même vitesse, ce qui se traduit souvent par un élargissement temporel de l'impulsion. Généralement, pour quantifier la dispersion, on utilise un développement de Taylor de la constante de propagation  $\beta(\omega) = \frac{\omega}{c}n(\omega)$  autour d'une pulsation centrale  $\omega_0$  telle que :

$$\beta(\omega) = \beta_0 + \beta_1(\omega - \omega_0) + \frac{\beta_2}{2}(\omega - \omega_0)^2 + \frac{\beta_3}{6}(\omega - \omega_0)^3 + \dots + \frac{\beta_k}{k!}(\omega - \omega_0)^k, \quad (3.9)$$

Le terme  $\beta_1$  est l'équivalent de l'inverse de la vitesse de groupe  $\nu_g$  et s'exprime en fonction de l'indice de groupe  $n_g$  par :

$$\beta_1 = \frac{1}{\nu_g} = \frac{n_g}{c} = \frac{1}{c}\left(n + \omega \frac{\partial n}{\partial \omega}\right), \quad (3.10)$$

Le terme  $\beta_2$ , usuellement exprimé en  $\text{fs}^2$ , caractérise la dispersion de la vitesse de groupe (GVD - *Group Velocity Dispersion*) ou le *chirp* pour une impulsion courte. Elle est exprimée par :

$$\beta_2 = \frac{\partial \beta_1}{\partial \omega} = \frac{1}{c}\left(2\frac{\partial n}{\partial \omega} + \omega \frac{\partial^2 n}{\partial \omega^2}\right), \quad (3.11)$$

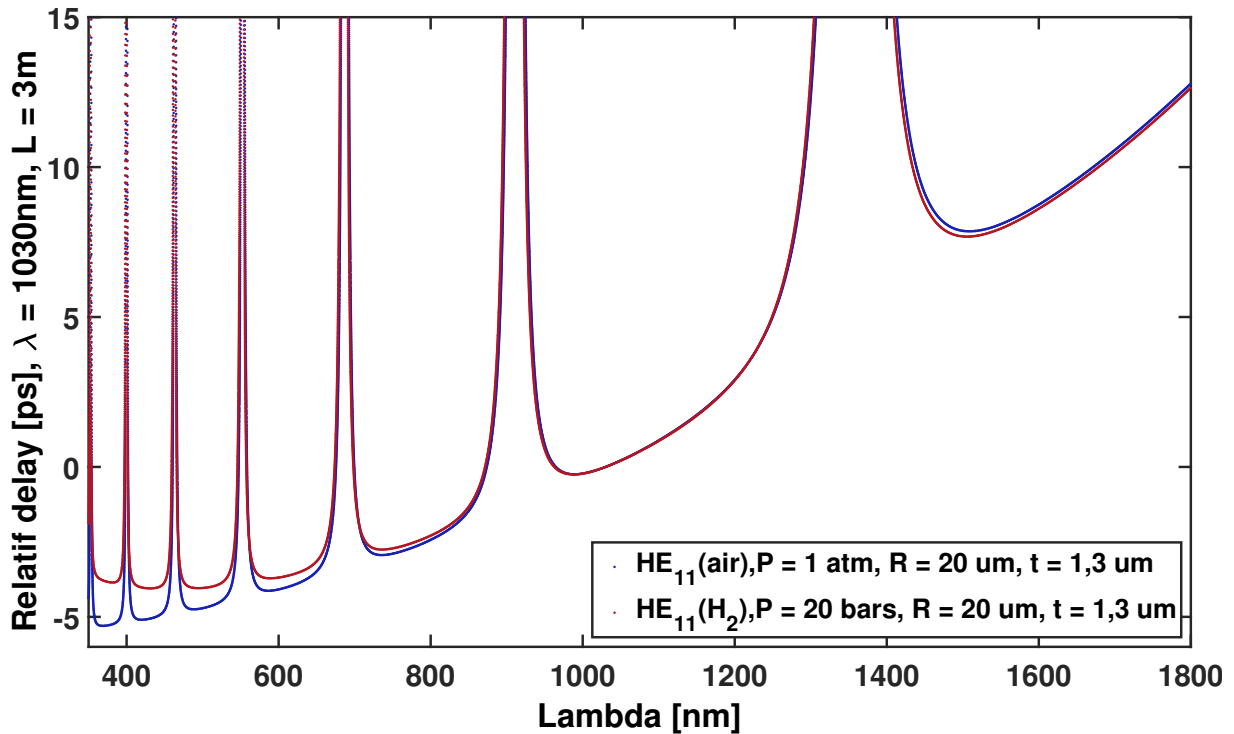
On distingue trois régimes. Le premier cas où  $\beta_2 = 0$  qui indique une dispersion nulle (ZDW - *Zero Dispersion Wavelength*) c.a.d. que les fréquences se propagent ensemble sans décalage dans le milieu. Lorsque  $\beta_2 < 0$ , on est dans le régime de dispersion anormale, c'est-à-dire que les hautes fréquences se propagent plus lentement que les basses fréquences, et le cas inverse où  $\beta_2 > 0$ , on parle alors de régime de dispersion normale. Dans le cas d'une propagation dans un guide d'onde, on utilise l'indice effectif du mode considéré soit  $\beta(\omega) = \frac{\omega}{c}n_{eff}(\omega)$ . A partir de l'expression analytique de l'indice effectif 3.8 et des équations 3.10 et 3.11 obtenues précédemment, on peut déterminer les expressions analytiques suivantes pour  $\beta_1$  et  $\beta_2$  concernant le mode fondamental  $HE_{11}$  :

$$\beta_1 = \frac{1}{\nu_g} = \frac{1}{c}\left(n_{LP_{01}} + \lambda \frac{\partial n_{LP_{01}}}{\partial \lambda}\right) \quad (3.12a)$$

$$GVD = -\frac{2\pi c}{\lambda^2}\beta_2 = -\frac{\lambda}{c} \frac{\partial^2 n_{LP_{01}}}{\partial \lambda^2} \quad (3.12b)$$

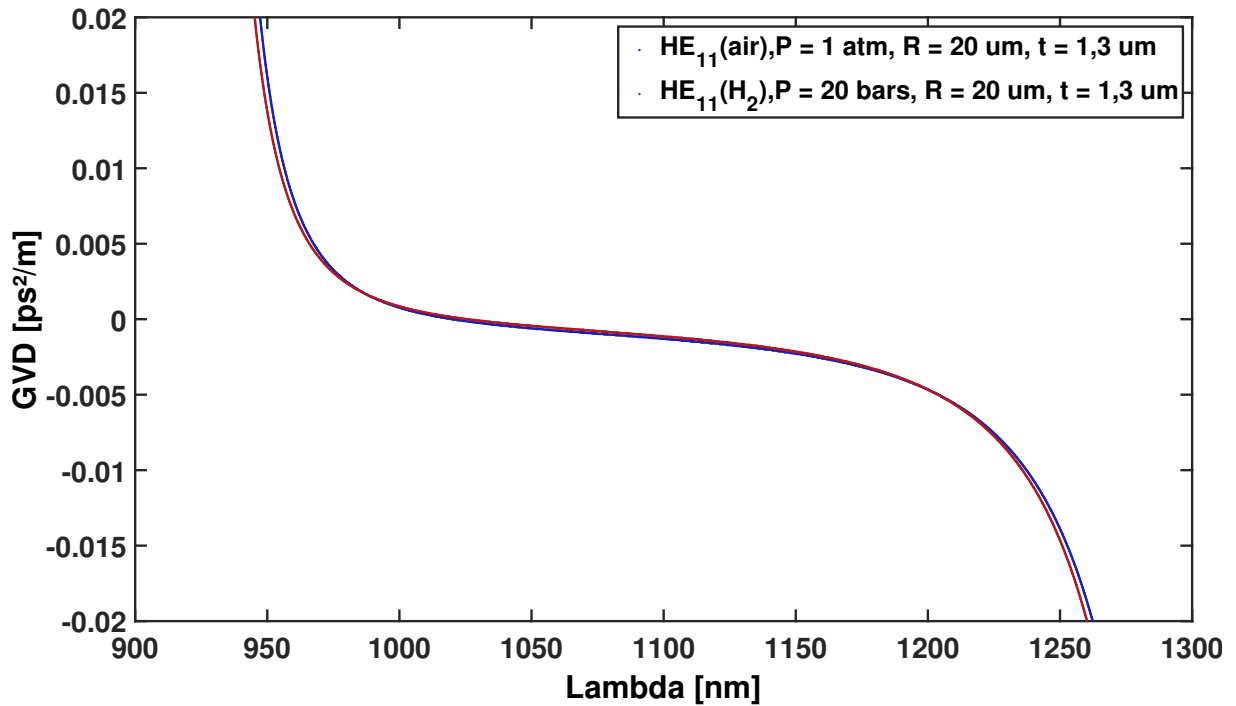
L'équation 3.12a nous permet alors de tracer le délai estimé entre les impulsions en fonction de la longueur d'onde. Il est à noter que ces valeurs seront par la suite directement utilisées dans le programme numérique non-linéaire que j'ai développé pour ajuster le retard entre la

pompe et la raie Stokes. La figure 3.5 montre le délai cumulé après la propagation dans 3 m de fibre creuse pour le mode  $HE_{11}$ . Un retard de  $-0,86$  ps est obtenu pour une impulsion Stokes à 1100 nm par rapport à une pompe à 1030 nm, valeurs relativement similaires pour le cas de l'air ou de l'hydrogène porté à 20 bars.



**Figure 3.5** – Délais relatif par rapport à la longueur d'onde de 1030 nm pour le mode fondamental  $HE_{11}$  dans le cas d'une fibre creuse avec un rayon  $R$  de  $20 \mu\text{m}$  et d'épaisseur  $t$  de  $1,30 \mu\text{m}$  remplie avec de l'air (en bleu) et 20 bars d'hydrogène (en rouge).

L'équation 3.12b nous donne des informations sur l'élargissement temporelle des impulsions et sur le régime de dispersion en fonction de la longueur d'onde. Sur la figure 3.6 est tracée la GVD pour la fibre creuse considérée. Ainsi, pour une longueur de 3 m on obtient une dispersion de  $-0.00038 \text{ ps}^2$  pour la pompe à 1030 nm et une dispersion de  $-0.00359 \text{ ps}^2$  pour la raies Stokes à 1100 nm. L'élargissement temporelle est ici trouvé négligeable devant la durée d'une impulsion de l'ordre de la picoseconde, valeur typique qui sera utilisée dans la section expérimentale.



**Figure 3.6** – Dispersion de vitesse de groupe (GVD) autour de 1030 nm pour le mode fondamental  $HE_{11}$  dans le cas d'une fibre creuse avec un rayon  $R$  de 20  $\mu\text{m}$  et d'épaisseur  $t$  de 1,30  $\mu\text{m}$  remplie avec de l'air (en bleu) et 20 bars d'hydrogène (en rouge).

Enfin, il reste à mentionner que bien que cette approche analytique ait le mérite de donner rapidement et assez simplement de très bons résultats quand il s'agit d'évaluer l'indice effectif, la dispersion ou le positionnement des résonances, elle reste cependant insuffisante pour appréhender l'ensemble des règles régissant le mécanisme de guidage par CI et en particulier pour déterminer les pertes de transmission. Pour cette raison, une étude plus approfondie basée sur des calculs numériques est alors nécessaire que nous allons maintenant aborder.

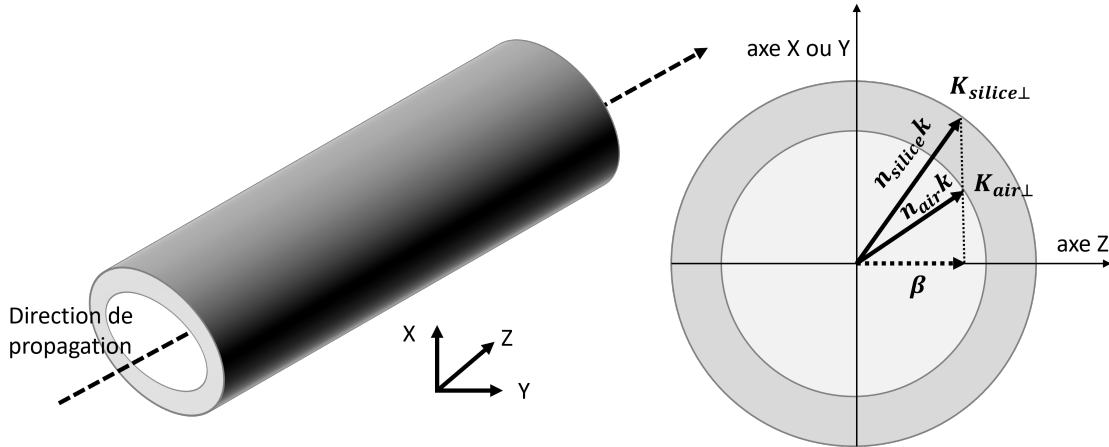
### 3.2.2 Approche numérique approfondie

Pour comprendre les mécanismes de guidage du CI il convient de s'intéresser au motif périodique de la gaine. Le champ électrique  $E$  et le champ magnétique  $H$  des modes supportés dans la fibre s'expriment par :

$$\begin{cases} \mathbf{E}(\mathbf{r}, z; t) = \mathbf{e}(\mathbf{r}) \exp(i(\beta z - \omega t)), \\ \mathbf{H}(\mathbf{r}, z; t) = \mathbf{h}(\mathbf{r}) \exp(i(\beta z - \omega t)). \end{cases} \quad (3.13)$$

avec  $z$  la direction de l'axe cartésien qui coïncide avec la axe de la fibre, et  $\mathbf{r} = (x, y)$  qui

dépend des coordonnées  $x$  et  $y$  du référentiel cartésien.  $\omega$  représente la pulsation qui est reliée à  $k$  par  $\omega = ck$ , avec  $c$  la célérité de la lumière dans le vide. La figure 3.7 montre schématiquement comment la constante de propagation  $\beta$  est liée à l'indice effectif  $n_{eff}$ , ainsi qu'au nombre d'onde dans l'air  $k_{air}$  et le verre  $k_{verre}$ .



**Figure 3.7** – Diagramme schématisant comment la constante de propagation  $\beta$  est liée à l'indice effectif  $n_{eff}$ , ainsi qu'au nombre d'onde dans l'air  $k_{air}$  et le verre  $k_{verre}$ .

Dans la littérature [92] l'approche utilisée pour calculer les propriétés modales d'une fibre creuse au sens large (PBG et CI) repose sur la résolution de l'équation vectorielle de Maxwell-Helmholtz en la transformant en un problème aux valeurs propres. Pour se faire, on considère seulement la structure photonique qui forme la gaine comme étant périodique et hors plan, c'est à dire qu'elle se répète à l'infini. L'équation d'onde transverse régissant le champ  $H$  dans cette configuration est exprimée comme suit :

$$(\nabla^2 + k^2 n^2) \mathbf{h}_\perp + \nabla(\ln n^2) \times (\nabla \times \mathbf{h}_\perp) = \beta^2 \mathbf{h}_\perp. \quad (3.14)$$

où  $\mathbf{h}_\perp(\mathbf{r})$  est la composante de  $\mathbf{h}(\mathbf{r})$  dans le plan  $x - y$ , c'est-à-dire normal à l'axe  $z$  de la fibre et  $n(x, y)$  est le profil d'indice de la structure photonique.

Dans ces conditions, le théorème de Bloch est applicable pour une maille élémentaire  $k_{BZ}$ , un vecteur d'onde dans la première zone de Brillouin associée à la périodicité du réseau, et à un indice de bande  $n$ . En considérant l'équation d'onde pour une fréquence  $\omega$  fixe, les modes de la cellule élémentaire sont déterminés par :

$$\begin{cases} \mathbf{E}_{\omega, k_{\mathbf{BZ}, n}}(\mathbf{r} + \mathbf{R}, z) = \exp(i(\beta(\omega, \mathbf{k}_{\mathbf{BZ}})z + \mathbf{k}_{\mathbf{BZ}} \cdot \mathbf{R} - \omega t)) \times \mathbf{e}_{\omega, k_{\mathbf{BZ}, n}}(\mathbf{r}) \\ \mathbf{H}_{\omega, k_{\mathbf{BZ}, n}}(\mathbf{r} + \mathbf{R}, z) = \exp(i(\beta(\omega, \mathbf{k}_{\mathbf{BZ}})z + \mathbf{k}_{\mathbf{BZ}} \cdot \mathbf{R} - \omega t)) \times \mathbf{h}_{\omega, k_{\mathbf{BZ}, n}}(\mathbf{r}) \end{cases} \quad (3.15)$$

où  $\mathbf{R}$  est un vecteur de la maille dans l'espace réel. La constante de propagation  $\beta$  est une fonction des variables continues  $\omega$  et  $\mathbf{k}_{\mathbf{BZ}}$ , ainsi que de l'indice de bande discret  $n$ . Pour chaque  $n$ , la constante de propagation de mode tracée en fonction de  $\omega$  et  $\mathbf{k}_{\mathbf{BZ}}$  définit la surface de dispersion  $\beta_n(\omega, \mathbf{k}_{\mathbf{BZ}})$ . Les bandes interdites sont identifiées comme des régions dans le plan  $\omega$ - $\beta$  où aucun état n'est trouvé pour n'importe quelle valeur de  $n$  ou  $\mathbf{k}_{\mathbf{BZ}}$ . Au lieu de résoudre une équation d'onde non hermitienne telle que l'Équation 3.14 à une fréquence fixe, le problème peut être reformulé en considérant la fréquence comme la valeur propre et  $\beta$  comme un paramètre continu, de manière à cartographier les surfaces de dispersion selon  $\omega_n(\beta, \mathbf{k}_{\mathbf{BZ}})$ . L'équation d'onde résultante pour le champ  $\mathbf{H}$  peut être formulée sous une forme hermitienne, ce qui rend le calcul des bandes plus efficace si la dispersion du matériau peut être négligée. On peut noter ici que les modes d'un milieu diélectrique périodique et les schémas de calcul de bande sont des analogues directs de ceux associés aux électrons dans les cristaux périodiques. Les méthodes numériques pour calculer les surfaces de dispersion des bandes photoniques  $\beta_n(\omega, \mathbf{k}_{\mathbf{BZ}})$ , ou de manière équivalente  $\omega_n(\beta, \mathbf{k}_{\mathbf{BZ}})$ , ainsi que les champs modaux correspondants ( $\mathbf{e}_{\omega, k_{\mathbf{BZ}, n}}(\mathbf{r})$ ,  $\mathbf{h}_{\omega, k_{\mathbf{BZ}, n}}(\mathbf{r})$ ) ou ( $\mathbf{e}_{\beta, k_{\mathbf{BZ}, n}}(\mathbf{r})$ ,  $\mathbf{h}_{\beta, k_{\mathbf{BZ}, n}}(\mathbf{r})$ ), peuvent être basées, par exemple, sur une expansion en ondes planes [93, 94] ou une décomposition basée sur les éléments finis [95].

## DOPS

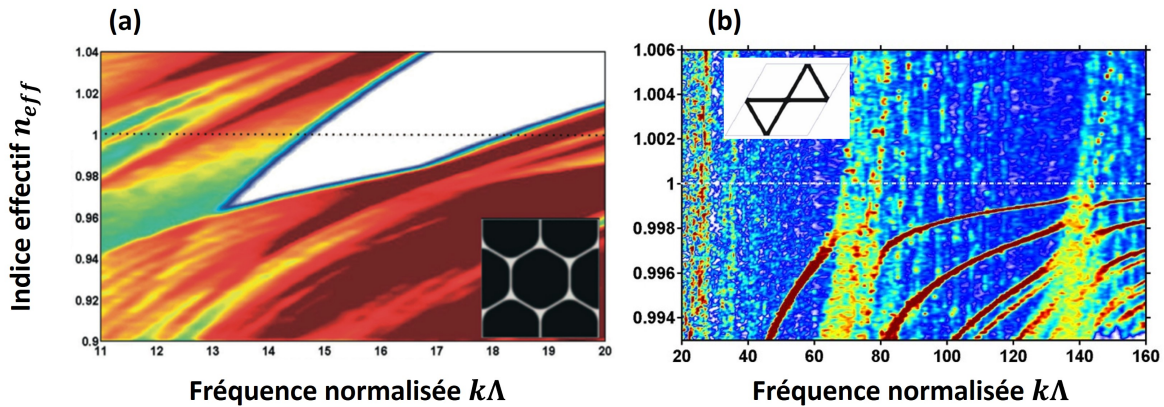
Un moyen utile d'englober de nombreux aspects importants du spectre associé à un réseau de maille périodique est fourni par la densité d'états photoniques (DOPS - *Density Of Photonic States*), qui est considérée comme une fonction à la fois du nombre d'onde  $k$  et de l'indice effectif  $n_{\text{eff}}$ , ou de manière équivalente, de la constante de propagation  $\beta$ . Le nombre de modes électromagnétiques par maille unitaire et par longueur axiale unitaire (le long de  $z$ ), dans la plage infinitésimale de nombres d'onde  $k$  à  $k + dk$ , et la plage infinitésimale d'indices effectifs  $n_{\text{eff}}$  à  $n_{\text{eff}} + dn_{\text{eff}}$ , est donnée par  $\rho(k, n_{\text{eff}})dkdn_{\text{eff}}$ , où la DOPS  $\rho(k, n_{\text{eff}})$  peut être calculée selon :

$$\rho(k, n_{\text{eff}}) = \frac{A_{\text{cell}}}{(2\pi)^3} k \sum_n \int_{1^{\text{st}}} (\mathbf{BZ} d^2(\mathbf{k}_{\mathbf{BZ}}) \delta(k - k_n(k n_{\text{eff}}, (\mathbf{k}_{\mathbf{BZ}}))). \quad (3.16)$$

où  $A_{\text{cell}}$  est la superficie d'une maille unitaire,  $\delta(u)$  est la fonction delta de Dirac et  $k_n(\beta, \mathbf{k}_{\mathbf{BZ}}) = \omega_n(\beta, \mathbf{k}_{\mathbf{BZ}})/c$ . La connaissance des surfaces de dispersion permet de construire la DOPS. Afin d'illustrer cet aspect, la DOPS d'une fibre creuse à maille Kagomé guidant par CI est tracée sur la figure 3.8(b). Tout d'abord, contrairement aux fibres creuses guidant par PBG



(figure 3.8(a)), on note l'absence de bande interdite c'est à dire de régions dans le plan  $k - n_{eff}$  où la DOPS est nulle. En d'autres termes cela signifie qu'il existe un continuum de modes possible pour chaque couple d'indice effectif et de fréquence normalisée. Cette propriété singulière est à rapprocher du principe d'état lié (ou quasi-liés) dans un continuum (BIC - *Bound-states In Continuum* ou QBIC - *Quasi-BIC*) théorisé par Von Neumann et Wigner en 1929 [96, 97] puis observé expérimentalement pour la première fois par Capasso *et al.* dans un semi-conducteur en 1992 [98]. On comprend alors que pour obtenir un couplage efficace dans ces structures il convient de réduire très fortement le couplage entre le champ du mode de cœur et le mode de gaine. Autrement dit il faut introduire une incompatibilité de symétrie c'est-à-dire : (a) un fort désaccord de phase entre les composantes transverses du vecteur d'onde des modes de cœur et de gaine. (b) et/ou un recouvrement spatial minimal entre leurs champs. Nous allons maintenant détailler ces points.



**Figure 3.8** – Densité d'états photoniques représentatives d'une fibre PBG (a) et d'une fibre IC Kagomé (b) avec en encart la structure de la maille élémentaire de la gaine.

### Intégrale de recouvrement / concept de courbure négative

Un point essentiel à étudier avec le guidage par CI concerne l'intégrale de recouvrement entre les modes de gaine et les modes du cœur. Cette intégrale de recouvrement prend la forme d'un produit scalaire entre les fonctions d'onde transverse de la gaine et du cœur :

$$\langle \psi_{coeur} | \Delta n^2 | \psi_{gaine} \rangle \quad (3.17)$$

où  $\psi_{coeur}$  et  $\psi_{gaine}$  sont les fonctions d'onde du mode de cœur et du mode de la gaine d'indice effectif respectivement. Elles s'expriment en coordonnée cylindrique par :

$$\psi_{coeur}(r, \theta, z) = F_{coeur}(r, \theta) e^{i\phi_{coeur}(r, \theta)} e^{i\beta z} \quad (3.18a)$$

$$\psi_{gain}(r, \theta, z) = F_{gain}(r, \theta) e^{i\phi_{gain}(r, \theta)} e^{i\beta z} \quad (3.18b)$$

où  $F_{coeur}(r, \theta)$  et  $F_{gain}(r, \theta)$  sont des fonctions réelles représentant les enveloppes spatiales de champ électrique des modes de cœur et de gaine. Les quantités  $\phi_{coeur}(r, \theta)$  et  $\phi_{gain}(r, \theta)$  représentent leur phase transversale, c'est-à-dire comment le champ oscille sous l'enveloppe formée par  $F_{coeur}(r, \theta)$  ou  $F_{gain}(r, \theta)$ . Le terme  $e^{i\beta z}$  est associé à la constante de propagation  $\beta$  commune au mode de cœur et au mode gaine.

L'inhibition de l'interaction entre les modes peut être réalisée quand le chevauchement spatial, entre les modes tend vers zéro, soit :

$$\iint F_{coeur}(r, \theta) \times F_{gain}(r, \theta) r d\theta dr \rightarrow 0 \quad (3.19)$$

et peut aussi être réalisé en contenant le terme de phase transversale, soit :

$$\iint e^{i(\phi_{coeur}(r, \theta) - \phi_{gain}(r, \theta))} r d\theta dr \rightarrow 0 \quad (3.20)$$

Cela implique d'avoir une forte incompatibilité de symétrie entre les deux modes. En développant le terme de phase transversale de manière similaire à la référence [84], on obtient :

$$e^{i(\phi(r, \theta))} = \sum_{m=0}^{\infty} A_m R(r) e^{im\theta} \quad (3.21)$$

où  $m$  est le nombre d'indice azimutal,  $A_m$  est une constante et  $R(r)$  une fonction complexe radiale, L'intégrale peut alors être écrite sous la forme :

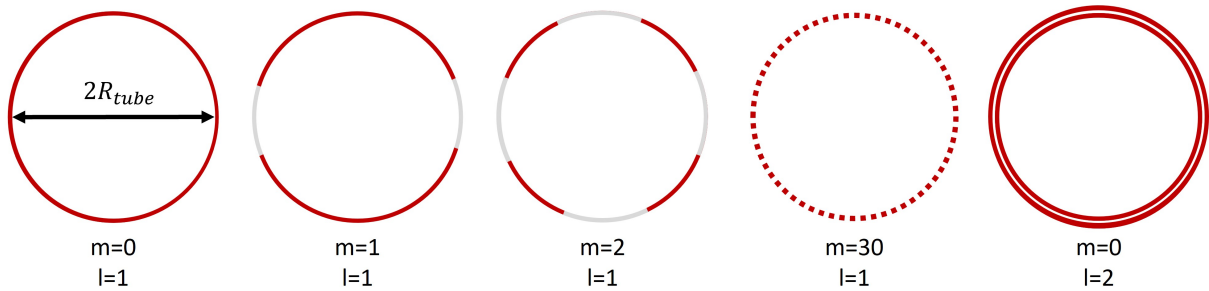
$$\int_{r_1}^{r_2} R^{gain}(r) R^{coeur*}(r) r \int_0^{2\pi} A_{m_{gain}, m_{coeur}} e^{i(m_{gain} - m_{coeur})\theta} d\theta dr \quad (3.22)$$

Par conséquent, la réduction de l'intégrale de chevauchement grâce à "l'ingénierie du désaccord de phase" implique un fort désaccord entre les nombres azimutaux des modes de gaine et des modes cœur, c'est-à-dire  $\Delta_m = m_{gain} - m_{coeur} \gg 1$ . Généralement le mode fondamental du cœur correspond au mode gaussien ( $HE_{11}$  ou son équivalence expérimental  $LP_{01}$ ) et n'a pas de nombre azimutal ( $m_{coeur} = 0$ ). L'inhibition du couplage est alors réalisée avec un mode de gaine où  $m_{gain} \gg 1$  (typiquement plusieurs dizaines).

De plus l'expression du nombre azimutal des modes de gaine situé dans la silice pour une forme circulaire est donnée par [27] :

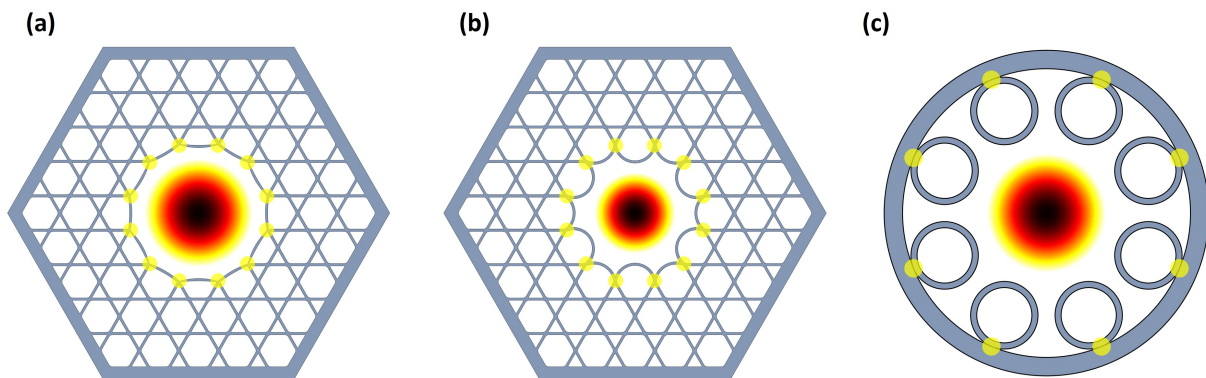
$$m = n_{eff} \left( \frac{L}{\lambda} \right) \left( 1 - \pi \left( \frac{t}{L} \right) \right) \quad (3.23)$$

où  $L$  est le périmètre des ponts de silice,  $t$  l'épaisseur des ponts de silice. Cette expression indique que le désaccord de phase traverse est exacerbé en augmentant la longueur des ponts de silice et en réduisant leur épaisseur. Une illustration de la distribution de champ pour différents modes dans un tube de la gaine est donnée avec la figure 3.9.



**Figure 3.9** – Exemples de modes de tube désignés par leur nombre radial ( $l$ ) et azimutal ( $m$ ).

De plus, la réduction du recouvrement des fonctions radiales est assurée en travaillant dans le régime de haute fréquence normalisée  $k\Lambda$  autrement dit dans le régime de pas large (LPR - Large Pitch Regime) [99]. Enfin, en suivant cette logique d'ingénierie, un autre paramètre à prendre en compte concerne les plots de silice dans la gaine qui, par leur épaisseur, présentent un nombre azimutal faible et favorise donc un couplage modal. L'astuce ici consiste à éliminer ou du moins éloigner ces nœuds de silice comme l'illustre la Fig. 3.10. Pour cela le cœur creux de forme classiquement circulaire ou hexagonale a été modifiée en courbant les arches de la structuration délimitant le cœur de la gaine air/silice. On parle alors de fibre à « courbure négative » ou fibre « hypocycloïdale ». Ce point sera à l'origine de nouveaux résultats obtenus en 2010 par Wang *et al.*[78] qui ont réellement lancés la course à la réduction des pertes par confinement.

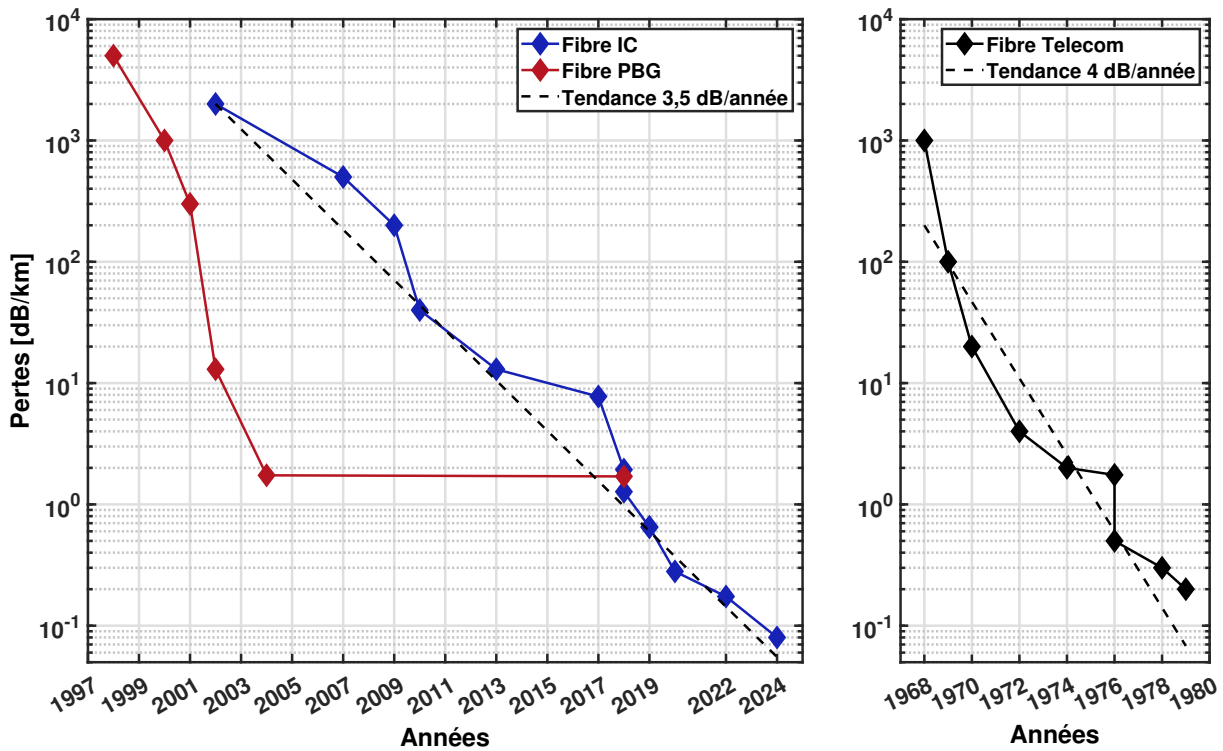


**Figure 3.10** – Représentation schématique des nœuds de silice dans différentes configurations géométriques : (a) Fibre Kagomé à couplage IC, (b) Fibre Kagomé à couplage IC à courbure négative et (c) Fibre tubulaire. Les fibres avec le moins de et/ou avec les nœuds de silice les plus éloignés présentent un meilleur confinement.

### 3.3 Évolution des performances des fibres creuses à couplage inhibé

Depuis la découverte et la fabrication de la première fibre à CI en 2002 [35], la compréhension de ce principe de guidage et les performances associées n'ont cessé d'évoluer. Un paramètre important pour évaluer l'efficacité du guidage de la lumière au sein de ces fibres se porte sur la valeur de l'atténuation linéique ou perte de propagation. Au cours des vingt dernières années d'énormes progrès ont été réalisés à la fois sur l'optimisation conceptuelle des paramètres opto-géométriques impactant le guidage mais aussi sur les techniques de fabrication liées aux fibres creuses. Dans ce contexte, la première avancée majeure a été obtenue avec le concept de « courbure négative » avec l'exemple des fibres creuses à CI à maille Kagomé. En effet, comme il a été mentionné précédemment traditionnellement le contour du cœur creux de ces structures prenait une forme circulaire ou hexagonale avec la présence de nœuds de silice introduisant un fort couplage entre les modes de gaine et les modes de cœur. Pour réduire ce couplage, l'idée a consisté à éloigner ces nœuds de silice du cœur de la fibre, là où la lumière réside, en courbant négativement les ponts de silice de l'interface cœur/gaine. Ces changements associés à la diminution de l'épaisseur des structures de silice ont permis en 2010 à Wang et ses collaborateurs de réduire les atténuations du dB/m à une centaine de dB/km [78], résultat qui a marqué un réel tournant. Les valeurs d'atténuation sont alors passées progressivement à quelques dizaines de dB/km en 2013 [100] pour finalement descendre en dessous de la barre emblématique des 10 dB/km avec 8,5 dB/km à 1030 nm en 2018 [101]. En parallèle de ces

travaux sur les fibres HCPCF-CI à maille Kagomé, une autre configuration de gaine a été étudiée par la communauté, marquant une deuxième étape clé dans l'amélioration des performances de ces fibres. Cette structure de fibre à CI repose sur une maille tubulaire, initialement proposée par Pryamikov *et al.* en 2011 [77]. L'avantage majeure de cette structure de gaine réside dans le fait qu'elle est constituée de tubes de silice suspendus dans l'air, ce qui implique un paramètre de courbure optimal pour le cœur. De plus, les tubes ne se touchent pas, évitant ainsi la création de plots de silice qui sont source de couplages forts et, par conséquent de pertes supplémentaires. Ces avancées ont alors permis d'établir de nouveaux records en termes de transmission, notamment en 2017 par notre groupe avec une valeur de seulement 7,7 dB/km à 770 nm en réalisant une fibre creuse à 8 tubes [102]. De nouveaux designs ont également été développés par plusieurs groupes à travers le monde ayant une complexité accrue de la gaine telle que l'association de deux tubes juxtaposés (appelée configuration "conjointed tube" [85]), l'ajout d'un second tube à l'intérieur de chaque tube (configuration "nested tube" [87]), ou encore l'utilisation d'une seconde gaine (configuration "hybrid" [86]) qui sera au cœur de mes travaux et dont les détails des performances et des développements seront traités dans la section suivante. Ces innovations ont permis d'améliorer le confinement à des valeurs respectivement de 2 dB/km en 2018 et de 0,28 dB/km en 2020 dans la région spectrale des télécommunications, ainsi que de 1,6 dB/km en 2021 pour la région du 1  $\mu$ m. Enfin, en 2022, la création d'une fibre dite "à double nested" a atteint un nouveau record avec seulement 0,174 dB/km à 1550 nm [88] et tout récemment une valeur de 0,08 dB/km à 1550 nm avec une fibre "triple nested" en 2024 [103], ce qui équivaut à un niveau légèrement en dessous des meilleures performances des fibres standard SMF en silice [88, 104]. L'ensemble de ces évolutions est reporté sur la figure 3.11 où une pente d'amélioration autour des 3,5 dB/année est démontrée qui n'est pas sans rappeler celle qui avait été observée dans les années 70 avec les fibres télécoms.



**Figure 3.11** – Évolution des pertes linéiques au cours des années pour les fibres creuses à CI, les fibres creuses à PBG et les fibres à cœur silice SMF (Telecom).

Malgré ces avancées, certaines caractéristiques de ces fibres restent encore en attente d'amélioration pour que cette technologie puisse être réellement considérée comme une solution de rupture dans plusieurs secteurs applicatifs tels que les télécommunications optiques ou le domaine de l'ultraviolet. En particulier, les pertes mesurées expérimentalement sont encore loin d'atteindre le niveau théorique des pertes par confinement laissant sous-entendre la présence de pertes additionnelles à minimiser. On peut citer les pertes par courbure qui jouent un rôle fort aux courtes longueurs d'onde et qui sont amplifiées avec l'augmentation de la dimension du cœur d'air (proportionnelles à  $\frac{1}{\lambda^2}$ ) ou encore les pertes par diffusion de surface (ou surface scattering loss en anglais) qui proviennent de la formation d'ondes de surface à l'interface cœur/gaine lors de l'étape de fabrication (proportionnelles à  $\frac{1}{\lambda^3}$ ) [69, 105]. Ces rugosités de surface sont aussi à l'origine d'une source complémentaire plus récemment identifiée sous le nom de pertes par micro-courbures (ou microbending loss en anglais) qui par micro-déformations ou micro-fissures induisent des dégradations par couplage modal [106, 107], mais dont le modèle reste encore en construction. Ces différents sujets font actuellement l'objet d'études au sein de notre groupe de recherche. Enfin, on peut rajouter les problématiques liées à la polarisation ou encore au contenu modal, dernier point que nous allons maintenant aborder car jouant un rôle important dans les applications nonlinéaires Raman qui me concernent.

### 3.3.1 La problématique du contenu modal

Comme il vient d'être discuté, la nouvelle génération de fibres creuses à CI permet aujourd'hui d'atteindre des niveaux de perte qui sont amplement suffisants pour la plupart des applications nonlinéaires dont la génération de peigne de fréquence qui nous concerne. Cependant, pour cette dernière, un critère supplémentaire est recherché afin de garantir la cohérence du peigne Raman comme il a été évoqué dans le chapitre 2 qui repose sur le besoin d'accéder à un contenu modal du guide le plus unimodal possible. Or les fibres creuses à CI, de par leur mécanisme de guidage, sont intrinsèquement légèrement multimode et ne peuvent en l'état répondre à cette demande. En effet, de manière rigoureuse, dans ces fibres creuses on a une omniprésence de modes d'ordre supérieur dans le cœur de la fibre qui cohabitent avec le mode fondamental gaussien. En raison du caractère continu du spectre modal de la gaine ou DOPS, on ne peut pas utiliser ici la notion de longueur d'onde de coupure couramment utilisée dans les fibres TIR classiques. On reviendra dans la suite sur quelle stratégie on pourra se baser pour répondre à ce besoin.

Afin d'évaluer ce contenu modal, il est aujourd'hui admis d'utiliser la technique du «  $S^2$  » pour Spatially and Spectrally développée en 2008 par Nicholson *et al* [108]. Cette méthode repose sur des mesures d'interférences produites par la différence de vitesse de propagation des modes se propageant dans la fibre. Cette différence induit une fluctuation d'intensité et dépend de la longueur d'onde. Expérimentalement au sein de notre groupe, on utilise une source très fine spectralement et accordable autour de la zone d'intérêt. La source est alors injectée dans la fibre à caractériser, une caméra enregistre ensuite le contenu modal de la fibre en fonction du scan en longueur d'onde de la source accordable. Enfin, un algorithme de reconstruction est utilisé qui permet de déduire une cartographie en fonction des valeurs d'interférences par trajets multiples (MPI - *Multi-Path Interference*) de chacun des modes HOM obtenus par la mesure et qui sont ensuite utilisées pour comparer le poids de ces modes HOM en regard du mode fondamental. Le tableau 3.1 résume différents résultats rapportés dans la littérature sur plusieurs structures de fibres à CI. Il ressort, que des valeurs typiques de MPI d'une vingtaine de dB pour les premiers modes HOM sont mesurées pour des longueurs métriques qui confirment que ces fibres peuvent être qualifiées de faiblement multimode.

Design de la fibre	Perte minimale et longueur d'onde de fonctionnement	MPI
Maille Kagomé	8,5 dB/km @ 1030 nm [101]	20,2 dB pour 5 m [101]
Single-ring tubular lattice (SR-TL)	500 dB/km @ 1000 nm (6-tube lattice) [109] 7,7 dB/km @ 780 nm (8-tube lattice) [84] 13,9 dB/km @ 539 nm (9-tube lattice) [110]	22,4 dB pour 15 m (8-tube lattice) [84]
Conjoined tube lattice	2 dB/km @ 1512 nm [85]	> 27 dB pour 15 m [85]
Nested tube lattice	0,28 dB/km @ 1550 nm [111] 2,5 dB/km @ 1000 nm [113]	~ 25 dB pour 10 m [112]

**Table 3.1** – Etat de l'art des différentes fibres creuse à CI donnant les valeurs typiques de MPI et les valeurs de perte minimale mesurées à différentes longueur d'onde.

### 3.4 Développement d'une fibre creuse monomode et à faibles pertes

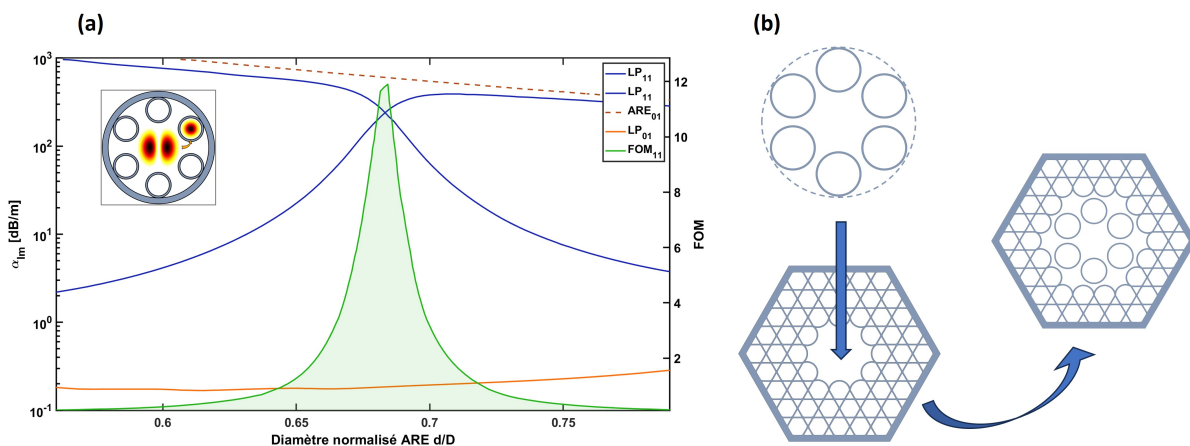
Dans cette section nous allons décrire les caractéristiques de la fibre creuse qui a été conçue, fabriquée puis utilisée au cours de cette thèse pour les applications de diffusion Raman stimulée. Pour notre cas, on souhaite réaliser un convertisseur de fréquence Raman cohérent et efficace, ce qui implique plusieurs conditions à remplir au niveau de la fibre à choisir. Premièrement le signal des lignes Raman générées durant la propagation doit être transmis par la fibre en minimisant les pertes aux différentes longueurs d'onde concernées. Deuxièmement le contenu modal de ces émissions Stokes doit être porté par un mode unique, de préférence le gaussien  $LP_{01}$ . La fibre en question doit donc jouer le rôle à la fois de filtre spatial modal mais aussi de guide à faible atténuation sur une large bande spectrale. Pour cela, une fibre creuse spécifique a été développée, basée sur une maille hybride dont le principe a été breveté sous le numéro FR1912283 [114] par notre groupe de recherche.

#### 3.4.1 Conception d'une fibre creuse à maille hybride

Afin de se rapprocher d'un guidage unimodal, une idée consiste à concevoir une structure de fibre de telle sorte que les modes d'ordres élevés du cœur d'air soient filtrés par couplage



résonant avec les modes de la gaine lors de la propagation [115]. Ce principe a déjà été proposé avec succès en utilisant une gaine à 6 tubes en prenant soin d'utiliser un rapport adéquat entre le diamètre du cœur d'air (noté  $D_{\text{cœur}}$ ) et celui des tubes de la gaine (noté  $d_{\text{tube}}$ ) afin d'égaliser respectivement les indices effectifs des modes d'ordre élevés du type  $LP_{11}$  du cœur avec les modes fondamentaux du type  $LP_{01}$  des tubes [82]. Comme l'indique la figure 3.12(a), ce couplage est maximisé pour un rapport  $\frac{d_{\text{tube}}}{D_{\text{cœur}}}$  autour de 0,68. Cependant, cette approche s'accompagne aussi d'une élévation des pertes par confinement qui se situent typiquement à des valeurs d'une centaine de dB/km autour de  $1 \mu\text{m}$ , niveau trop élevé pour nos applications. Dans ce contexte, un design particulier de fibre a été proposé qui reprend l'idée d'une structure tubulaire à 6 tubes pour l'aspect unimodal mais qui sera ici associé à une seconde gaine pour augmenter le confinement de la lumière et donc répondre à la problématique des pertes. Dans l'exemple présenté par la figure 3.12(b), la maille tubulaire sera intégrée au sein d'une maille Kagomé (d'autres motifs d'assemblage peuvent être utilisés, dont certains sont actuellement en cours d'investigation au sein du groupe). Ainsi, avec cette structure dite hybride, on doit pouvoir pour la première fois développer une fibre creuse à CI monomode et à faibles pertes.



**Figure 3.12** – (a) Accord de phase entre le mode  $LP_{11}$  du cœur d'air et  $LP_{01}$  des tubes [82] . (insert) Illustration schématique du couplage de ces modes . (b) Représentation de l'insertion d'une maille tubulaire dans une maille Kagomé donnant une fibre dite hybride.

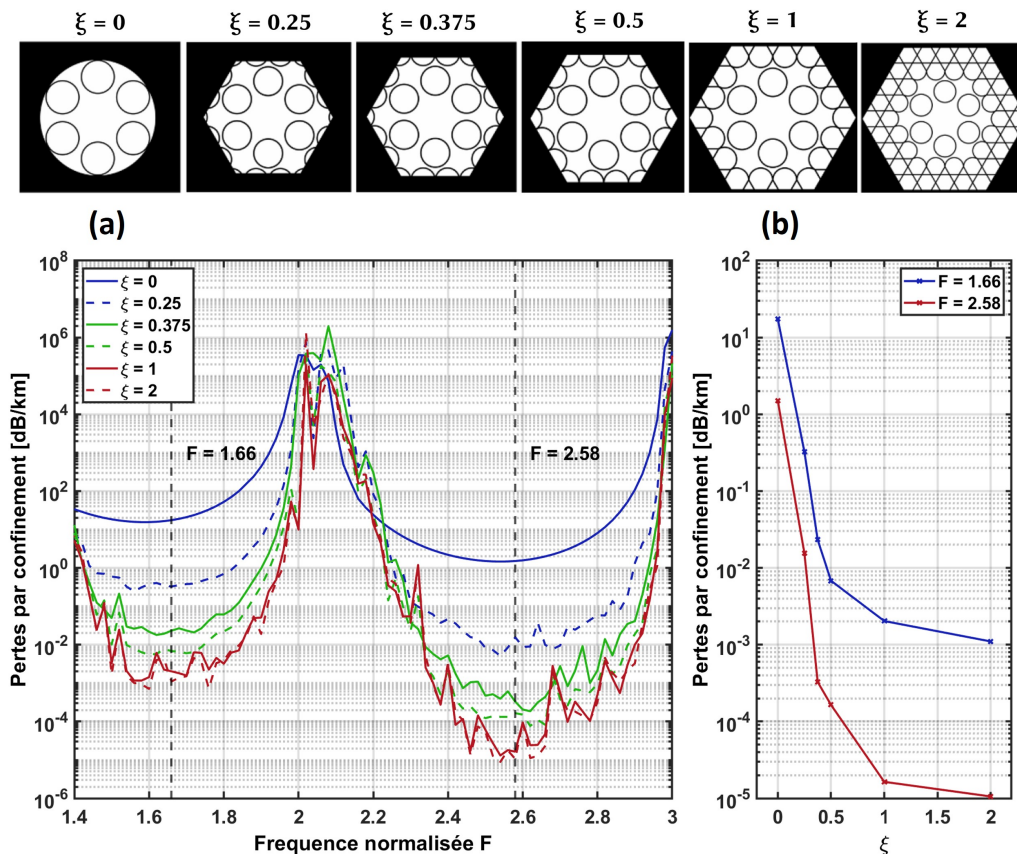
Afin de confirmer le potentiel de cette approche, des calculs ont été menés en se basant sur la méthode des éléments finis au moyen du logiciel commercial Comsol. Ce travail a été réalisé en collaboration avec le Pr. Luca Vincetti de l'Université de Modena en Italie. Les paramètres opto-géométriques de la fibre étudiée sont résumés dans le tableau 3.2.

CHAPITRE 3. FIBRES CREUSES À COUPLAGE INHIBÉ À FAIBLES PERTES ET À CONTENU UNIMODAL

$D_{core}$ [ $\mu\text{m}$ ]	$g$ [ $\mu\text{m}$ ]	$\delta$ [ $\mu\text{m}$ ]	$\Lambda$ [ $\mu\text{m}$ ]	$t_{tubes}$ [ $\mu\text{m}$ ] et $t_{kago}$ [ $\mu\text{m}$ ]	$b$	$\xi$
33,5	4,67	1,59	19,46	1,1	1	0 – 2

**Table 3.2** – Paramètres opto-géométriques de la fibre creuse à maille hybride : avec  $D_{core}$  le diamètre du coeur,  $g$  la distance entre les tubes de la gaine,  $\delta$  la distance entre les réseaux tubulaires et Kagomé,  $\Lambda$  le pas de la gaine Kagomé,  $b$  le paramètre de courbure des arcs entourant le coeur d'air,  $t_{tubes}$  et  $t_{kago}$  les épaisseurs des tubes et des réseaux Kagomé et  $\xi$  la dimension de la maille Kagomé.

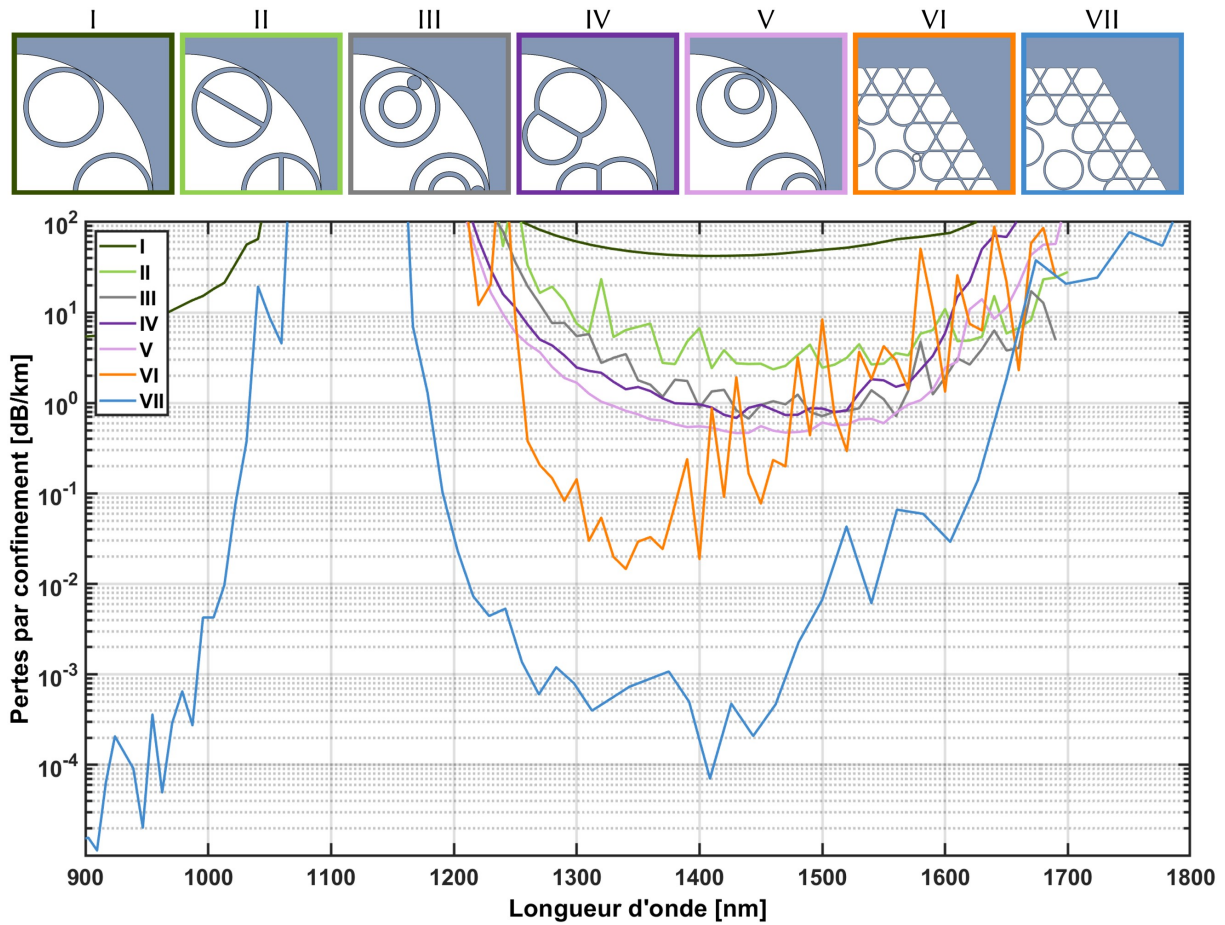
La figure 3.13(a) présente tout d'abord l'impact de l'ajout de façon séquentielle de la seconde gaine Kagomé sur les pertes par confinement en fonction de la fréquence normalisée. Pour cela, un paramètre  $\xi$  a été introduit pour traduire la dimension de la section Kagomé, à savoir un  $\xi$  égal à 0 définit l'absence de cette seconde gaine alors qu'un  $\xi$  de 2 correspond à la présence d'un réseau Kagomé à deux couronnes. De plus, la figure 3.13(b) montre les valeurs CL pour deux valeurs de fréquence normalisées représentatives ( $F = 1,66$  et  $F = 2,58$ ). Ainsi il apparaît de ces courbes clairement que l'effet de l'ajout de la structuration Kagomé sur le taux du CL est extrêmement drastique avec un gain proche de 5 ordres de grandeur. Pour  $F = 1,66$  (soit  $\lambda = 1,383 \mu\text{m}$ ), le CL est calculé à 17,4 dB/km lorsque  $\xi = 0$  puis il se trouve porté à  $6,5 \cdot 10^{-3}$  dB/km lorsque  $\xi = 0,5$  pour enfin tendre vers une asymptote autour des  $10^{-3}$  dB/km quand  $\xi$  est augmenté. La même tendance est observée pour une fréquence supérieure à  $F = 2,58$  (soit  $\lambda = 0,897 \mu\text{m}$ ) aboutissant à une valeur impressionnante de  $10^{-5}$  dB/km. Il convient de noter que, si l'ajout de couches au sein de la gaine améliore le confinement du mode du coeur d'air, il conduit également à augmenter le nombre de modes de gaine (ou DOPS) qui vont se coupler avec lui et donc induire des pertes additionnelles, expliquant cette tendance asymptotique de la courbe du CL.



**Figure 3.13** – Étude sur l'ajout de façon séquentielle de la gaine de Kagomé autour de la structure tubulaire dans la conception d'une fibre hybride. (a) Résultats de simulation CL pour des conceptions de fibres avec différentes valeurs de  $\xi$  (voir texte pour la définition). (b) Valeurs CL pour deux valeurs de fréquence normalisée choisies ( $F = 1,66$  et  $2,58$ ).

Afin de positionner ces résultats par rapport à l'état de l'art, une comparaison avec les principales fibres creuses rapportées à ce jour dans la littérature est faite en figure 3.14. La notation des différentes fibres est la suivante : gaine à 6 tubes (I, vert foncé), gaine à 6 tubes avec une barre (II, vert clair), à gaine nested circulaire avec une connexion rod (III, gris - [116]), à gaine de tubes conjoints (IV, violet - [85]) ou encore à gaine nested (V, rose - [105]). De plus, sachant que le design proposé n'est pas réalisable en pratique (les alvéoles d'air sont totalement suspendues dans l'air), de petits tubes de maintien entre les deux gaines sont rajoutés et les performances tracées sur la même figure ayant pour nomenclature le chiffre VI de couleur orangée. Une étude approfondie sur le choix et l'optimisation de ces attaches a été menée en complément mais n'est pas présentée ici. On remarque que le design proposé améliore les performances en termes de CL par rapport à tout autre fibre creuse à CI, y compris la version réalisable (ajout de tubes de connexions entre les deux gaines tubulaire et Kagomé) avec un

gain d'un facteur 36 par rapport à la fibre nested notée V.



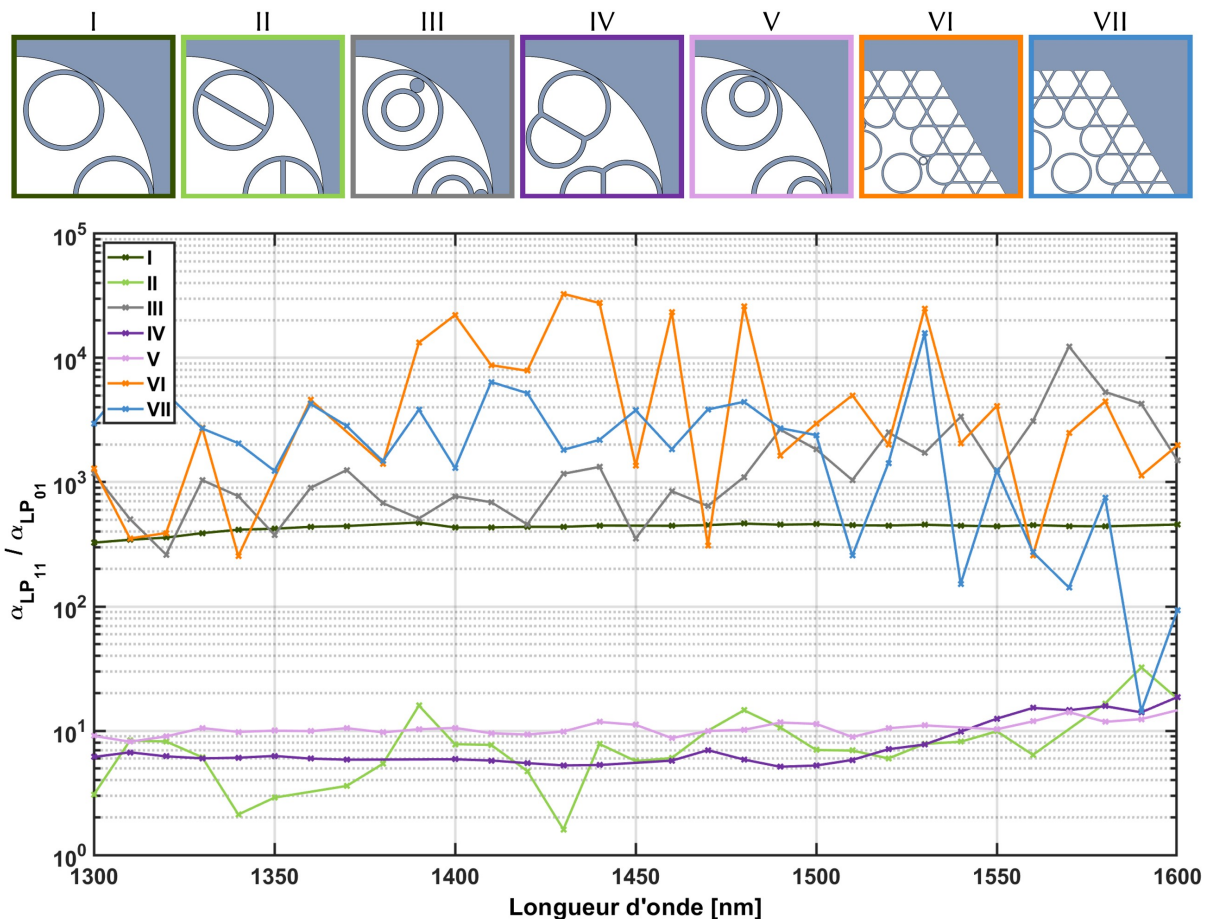
**Figure 3.14** – Résultats des simulations des pertes par confinement du mode fondamental pour les conceptions de fibres (I) gaine à 6 tubes, (II) gaine à 6 tubes avec une barre, (III) gaine nested circulaire avec une connexion rod, (IV) gaine de tubes conjoints, (V) gaine nested, (VI) gaine hybrides avec tube de support et (VII) gaine hybrides idéales.

Finalement, l'aspect contenu modal a été regardé en utilisant la notion de HOMER (pour higher-order mode extinction ratio) qui consiste à calculer le rapport d'extinction des pertes de confinement entre le premier mode d'ordre élevé ( $LP_{11}$ ) et le mode fondamental ( $LP_{01}$ ) :

$$\text{HOMER} = \frac{\alpha_{LP_{11}}}{\alpha_{LP_{01}}} \quad (3.24)$$

Ainsi plus le taux d'extinction HOMER sera élevé, plus la puissance portée par les modes HOM sera réduite en comparaison avec celle bien du mode fondamental et plus on tendra vers un comportement unimodal. Ce paramètre a donc été calculé pour toutes les structures de fibres présentées en figure 3.14 les résultats obtenus ont ensuite été tracés sur la figure 3.15.

Comme attendu par notre approche, la nouvelle fibre creuse hybride démontre un HOMER très élevé proche de 104, soit une valeur bien supérieure aux autres designs avec en particulier plus de 3 ordres de grandeur de différence en comparaison avec les fibres concurrentes nested et conjoncted. Cette fibre hybride est donc la première à pouvoir combiner faibles pertes par confinement et guidage unimodal.



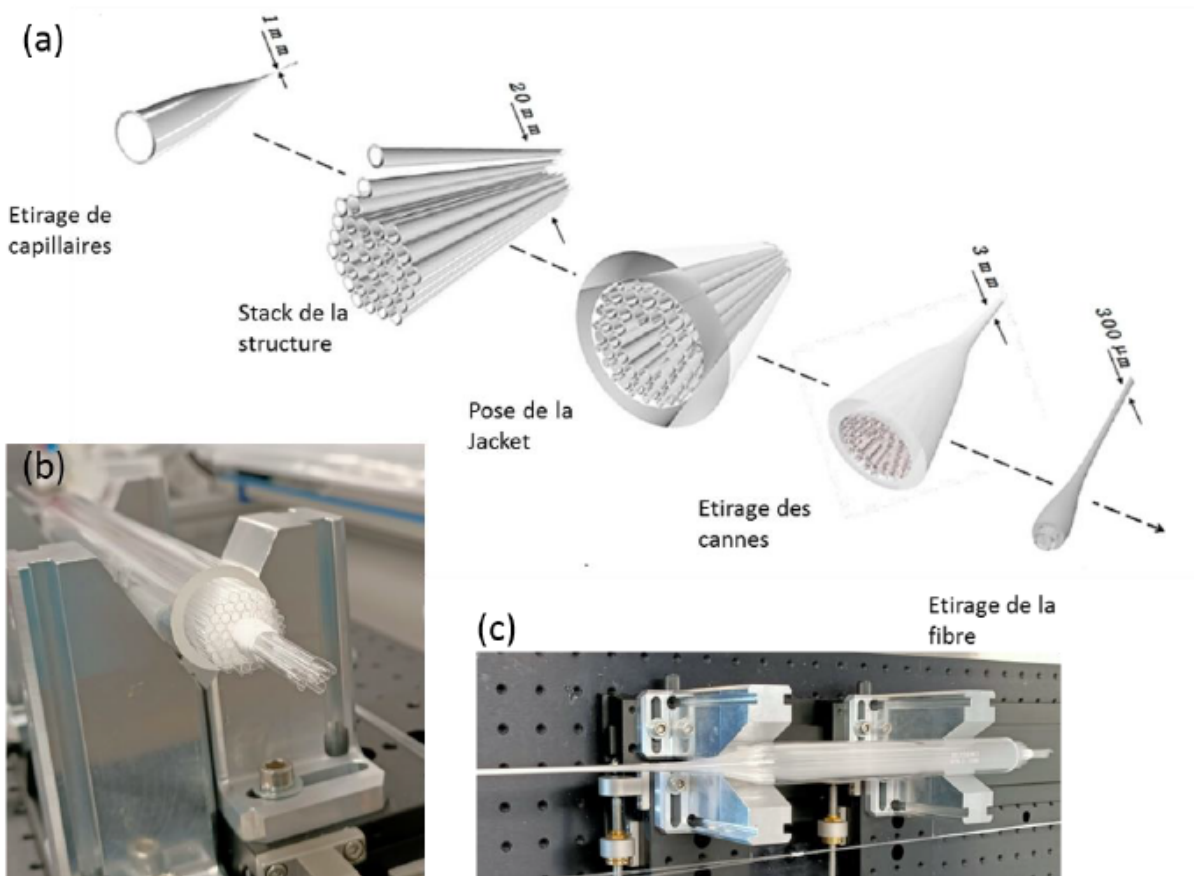
**Figure 3.15** – HOMER calculé en fonction de la longueur d'onde pour les différentes conceptions de fibres étudiées.

### 3.4.2 Fabrications et caractérisations de la fibre creuse hybride

Fort des résultats théoriques obtenus, la fabrication d'une telle fibre hybride a été menée en utilisant la méthode bien connue de « stack and draw » [117]. Ce procédé de fabrication consiste en une série d'assemblages et d'étirages de capillaires qui permet de réduire de façon homothétique les dimensions de la structure de quelques centimètres (préforme) à quelques centaines de micromètres (fibre optique). Cette méthode est schématisée sur la figure 3.16.

### CHAPITRE 3. FIBRES CREUSES À COUPLAGE INHIBÉ À FAIBLES PERTES ET À CONTENU UNIMODAL

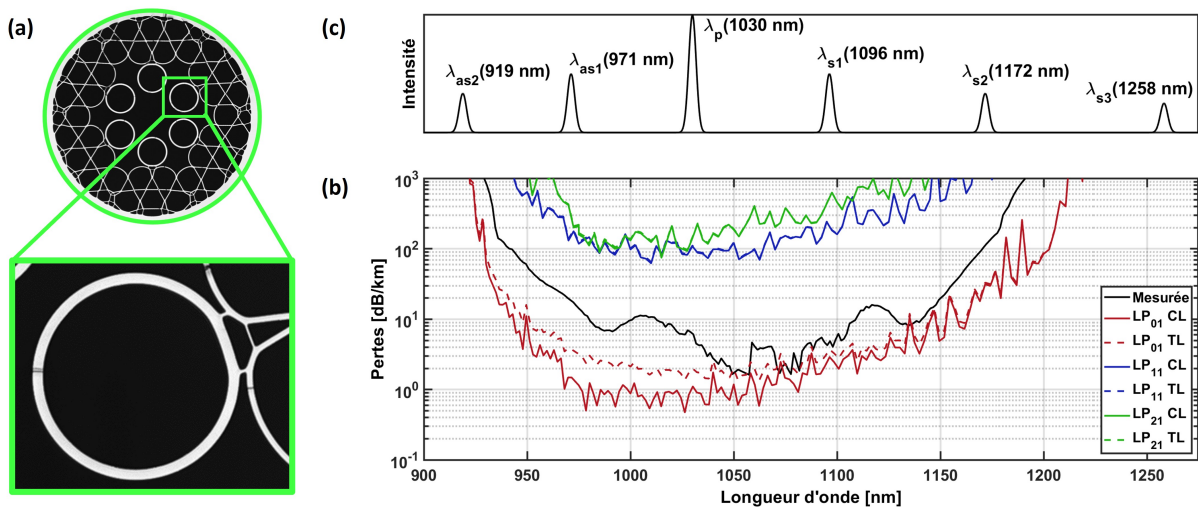
Il est à noter que pour la fabrication des fibres creuses, un jeu subtil portant sur différents paramètres tels que la température du four, la vitesse de descente de la préforme, la vitesse d'étirage ou encore la pression du gaz appliquée dans les alvéoles est nécessaire pour obtenir une microstructure s'approchant le plus possible de la fibre conçue. Dans notre cas, compte tenu de la présence de deux structures de gaine connectées par des petits tubes, un jeu de quatre pressions différentes est à considérer rendant relativement complexe l'optimisation de la structure pendant l'étape de fibrage.



**Figure 3.16** – (a) Schéma du principe de "stack and draw", (b) photo d'une préforme "primaire", (c) photo de préforme étirée.

La figure 3.17(a) montre un exemple de fibre hybride ainsi fabriquée et les caractérisations associées en termes de pertes. Cette fibre présente un diamètre intérieur du cœur d'air de  $37 \mu\text{m}$  et un diamètre extérieur de  $260 \mu\text{m}$ . Le rapport entre ce diamètre du cœur et celui des tubes de la première couronne ( $\frac{d_{\text{tube}}}{D_{\text{cœur}}}$ ) a été optimisé lors de la fabrication pour atteindre un ratio de  $\frac{d_{\text{tube}}}{D_{\text{cœur}}} = 0,62$ , soit une valeur proche de l'optimum discuté précédemment. Enfin, les épaisseurs des différents ponts de silice des tubes de la gaine ont été choisis afin de

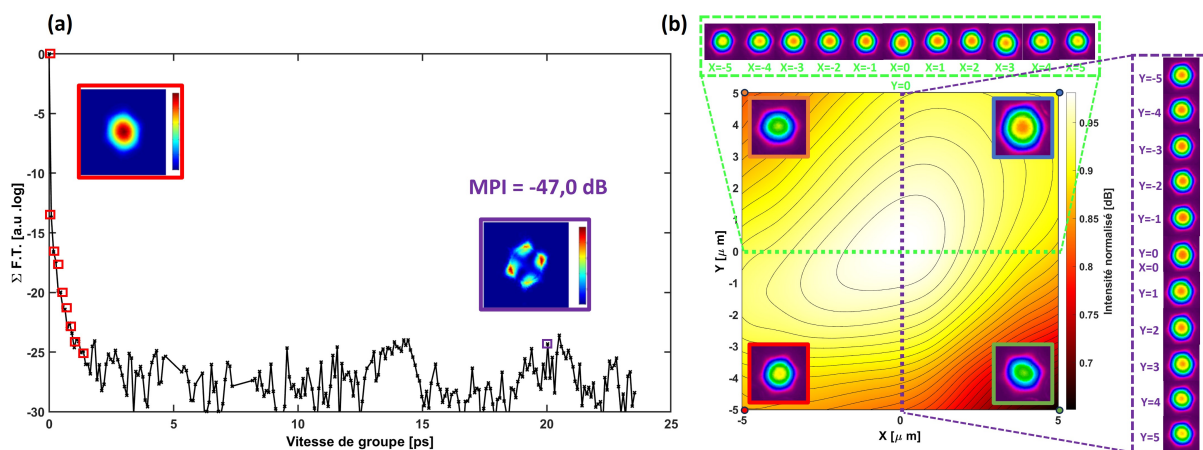
positionner les longueurs d'onde de coupure hors des bandes spectrales de guidage nécessaire à nos expériences (figure 3.17(c)) et en essayant de minimiser les couplages parasites entre les deux structures de gaine. Ainsi, les épaisseurs des 6 premiers tubes de silice sont de  $1,27 \mu\text{m}$ , ceux de la seconde gaine à motif Kagomé de  $720 \text{ nm}$  pour finir avec les tubes de support qui eux ont une valeur réduite à  $370 \text{ nm}$ . Les pertes de la fibre ont ensuite été mesurées par la technique de cut-back en utilisant un tronçon de longueur  $120 \text{ m}$  puis de  $4 \text{ m}$ . La figure 3.17(b) présente les caractérisations à savoir une bande de transmission relativement large (pertes inférieures à  $100 \text{ dB/km}$  sur plus de  $200 \text{ nm}$  pouvant ainsi couvrir les différentes lignes Raman générées) centrée autour de la longueur d'onde d'intérêt  $1030 \text{ nm}$  avec un minimum d'atténuation de  $1,6 \text{ dB/km}$ , valeur record en date de l'étude. La figure présente également les pertes théoriques par confinement et les pertes totales obtenues en sommant la contribution de la diffusion de surface. Une bonne similarité est observée entre les données expérimentales et celles simulées. Enfin, les pertes calculées des deux premiers HOM (modes du type  $LP_{11}$  et  $LP_{21}$ , représentés respectivement en bleu et vert) ont également été rajoutées. Le niveau de pertes étant de deux ordres de grandeur supérieur à celui du mode fondamental, ce résultat suggère qu'un guidage quasi monomode devrait être obtenu.



**Figure 3.17** – (a) Section transversale de la fibre HPCF hybride Kagomé-tubulaire fabriquée, avec une vue agrandie sur l'attache reliant les tubes et la gaine Kagomé. (b) Résultats de la mesure expérimentale (courbe noire), CL simulée et TL pour le mode fondamental (ligne pointillée rouge et lignes rouges respectivement), et pour les deux premiers HOMs (lignes bleue et verte). (c) Représentation théorique des raies spectrales Stokes et anti-Stokes générées par un laser pompe centré à  $1030 \text{ nm}$  pour la transition Raman rotationnelle  $S_{00}(1)$  de la molécule  $H_2$ .

Afin de confirmer ce point, nous avons effectué des mesures S2 pour déterminer le contenu

modal. Pour des conditions optimisées d'injection de la lumière en entrée de fibre, les mesures montrent un taux d'extinction HOM de 47 dB pour une fibre de 10 m de long, ce qui constitue un résultat record pour une fibre à CI (voir figure 3.18(a)). Cela démontre bien que la première couronne a joué son rôle de filtrage modal. Enfin, pour évaluer la robustesse de ce fonctionnement monomode, nous avons examiné le profil du champ proche reconstruit en sortie de fibre sous différentes conditions de couplage. Pour ce faire, nous avons utilisé un laser à 1064 nm et mesuré la puissance ainsi que le profil de champ proche en sortie de la fibre pour différentes positions d'injection en entrée balayées le long des axes horizontal et vertical. Le balayage s'étend sur 10  $\mu\text{m}$  le long des deux axes, c'est-à-dire,  $\Delta x = \Delta y = \pm 5 \mu\text{m}$ . L'origine de l'étude correspond au maximum de puissance mesurée en sortie. La figure 3.18(b) représente la cartographie couleur ainsi obtenue de la distribution de puissance normalisée, avec les profils de champ proche représentés dans les encarts (le long de l'axe horizontal, le long de l'axe vertical et aux positions extrêmes). Il est montré que sur la zone d'investigation le profil de champ proche est resté similaire à celui du mode fondamental gaussien et la puissance transmise supérieure à 60 % de son maximum.



**Figure 3.18** – (a) Résultats de mesure  $S^2$  pour une fibre longue de 10 mètres. (b) Profils de puissance normalisée et de champ proche à la sortie de la fibre à 1064 nm en fonction du décalage d'entrée de la fibre.

### 3.5 Conclusion

Ce chapitre troisième s'est focalisé sur le domaine des fibres optiques à cœur creux qui constitue l'élément socle de mes expériences nonlinéaires à venir. Ainsi, après avoir rappelé brièvement l'historique et l'évolution des performances de ces fibres en mettant l'accent sur le mécanisme de guidage par couplage inhibé, une fibre creuse spécifique alliant pour la première fois faibles



### CHAPITRE 3. FIBRES CREUSES À COUPLAGE INHIBÉ À FAIBLES PERTES ET À CONTENU UNIMODAL

perdes de transmission et guidage unimodal a été développée. Pour cela un concept proposé par le groupe de gaine hybride [86] a été utilisée permettant de fabriquer une fibre record qui a ensuite été optimisée pour mes applications en termes de position spectrale de transmission, largeur de bande et diamètre du mode de cœur. Si on peut noter que ces résultats ouvrent une nouvelle voie pour le développement des fibres creuses, ils seront dans le contexte de mes travaux de thèse mis à profit pour les études nonlinéaires qui vont maintenant être présentées.

# 4

## Étude de la cohérence Raman intra-impulsionnel

**Résumé :** *Dans ce chapitre, nous étudierons expérimentalement et théoriquement la cohérence des lignes du peigne Raman générées dans une fibre creuse remplie de gaz pour des impulsions de quelques picosecondes en durée et microjoules en énergie. Pour cela, un premier montage expérimental a été réalisé pour générer le peigne de fréquence Raman et étudier les régimes de la diffusion Raman stimulée ainsi que ses principales limitations. Puis, un interféromètre de Mach-Zehnder a été développé et mis en place pour déterminer la visibilité des franges d'interférence et remonter à la cohérence des raies Raman du peigne. Pour cela, l'approche a consisté à étudier la cohérence des raies Raman deux à deux dans l'ensemble du peigne, puis de comparer les résultats avec les simulations obtenues à l'aide du code développé dans le chapitre 2.*

## Sommaire

---

4.1	Introduction . . . . .	<b>99</b>
4.2	Génération du peigne Raman dans le régime DRS . . . . .	<b>99</b>
4.2.1	Réalisation et caractérisation du peigne Raman . . . . .	99
4.2.2	Régime de DRS et ses limitations . . . . .	104
4.3	Réalisation d'un interféromètre à somme de fréquence . . . . .	<b>109</b>
4.4	Analyse de la cohérence entre la pompe et la première raies Stokes . . . . .	<b>113</b>
4.5	Analyse de la cohérence des autres raies Stokes et anti-Stokes . . . . .	<b>118</b>
4.6	Mesures sous configuration complète du peigne Raman . . . . .	<b>121</b>
4.7	Conclusion . . . . .	<b>124</b>

---

## 4.1 Introduction

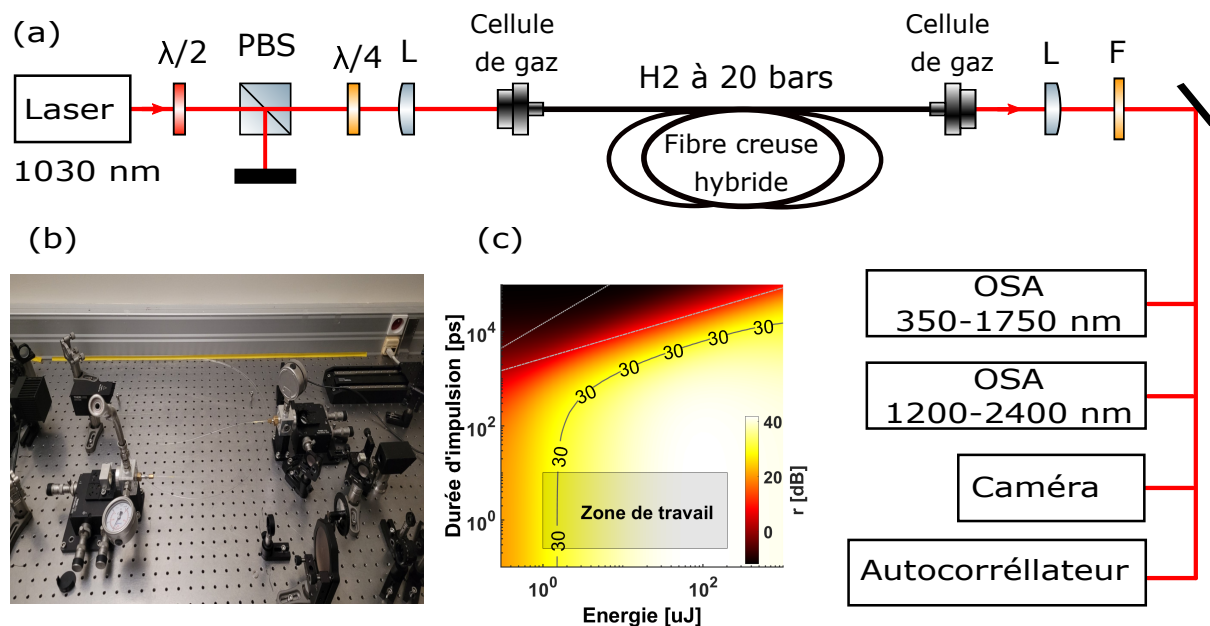
Dans le chapitre 1, nous avons détaillé les conditions nécessaires pour réaliser la synthèse d'onde en optique. Ainsi, il a été montré qu'un peigne de fréquences aussi large que possible doit être obtenu avec la présence d'une cohérence entre chacune des lignes générées. La méthode retenue pour nos études se base sur la diffusion Raman stimulée en régime transitoire dans une fibre creuse. Le chapitre 2 a alors présenté le cadre théorique de cette DRS et a permis d'identifier un ensemble de paramètres permettant d'amplifier un unique mode spatio-temporel. En ajustant l'énergie, la durée de l'impulsion du faisceau pompe, ainsi que la longueur et le diamètre du cœur de la fibre, nous avons montré que les modes temporels peuvent être réduits à un mode unique. Enfin, dans le chapitre 3, nous avons montré qu'il était possible de concevoir une fibre fortement monomode et à faible perte permettant de réduire les modes spatiaux par le biais d'un design spécifique nommé hybride. Dans ce contexte, nous allons dans ce chapitre mener une étude expérimentale détaillée de la cohérence intra-impulsionnelle des raies du peigne Raman généré par DRS avec la fibre creuse hybride spécifiquement développée. De plus, contrairement aux précédentes études sur la DRS, qui se limitaient à étudier la cohérence Raman avec des lasers nanoseconde dans des fibres non strictement unimodales, nous allons ici étudier la DRS dans le régime temporel de la picoseconde pour des énergies de l'ordre du microjoule. Ce régime permettra d'atteindre des gains Raman en régime permanent très élevés (supérieur à 10000) et d'impacter la structure temporelle des impulsions. Pour étudier les formes temporelles et la cohérence de ces raies Raman à différentes longueurs d'onde, nous avons mis en place un interféromètre de type Mach-Zehnder. Cette étude expérimentale sera effectuée sur les raies rotationnelles de la molécule H<sub>2</sub>. Enfin, les résultats obtenus seront comparés aux simulations numériques qui comme nous le verrons seront trouvés en très bon accord avec l'évolution de l'énergie et de la déplétion de la pompe.

## 4.2 Génération du peigne Raman dans le régime DRS

### 4.2.1 Réalisation et caractérisation du peigne Raman

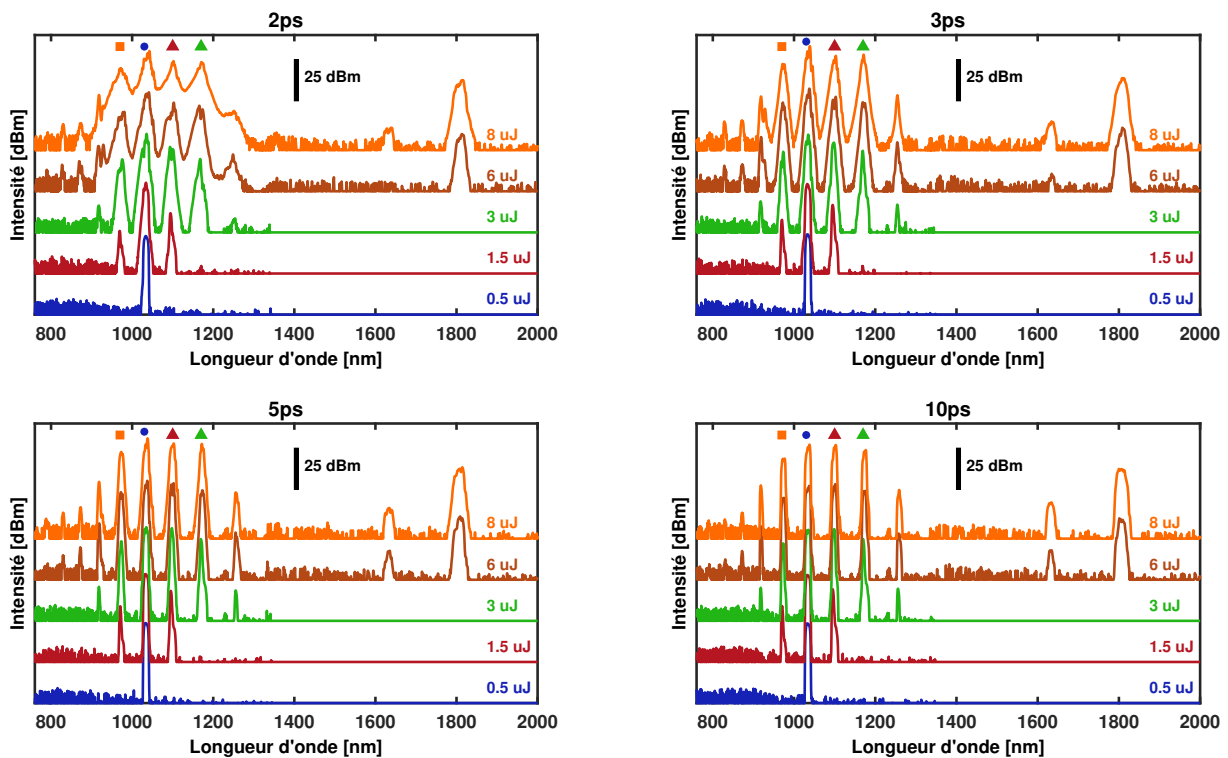
Pour mener à bien ces études autour de la génération et la caractérisation d'un peigne Raman, deux principaux éléments seront utilisés par la suite à savoir : un générateur de peigne de fréquences et un interféromètre à somme de fréquences fait maison (SFI - *Sum-Frequency Interferometer*). Pour la première partie, un banc spécifique a été réalisé. Comme le montre la figure 4.1 (a,c) il se compose d'un laser impulsif picoseconde de 35 W de chez Amplitude (Modèle Tangerine) émettant à 1030 nm. Le taux de répétition du laser, la durée d'impulsion et

l'énergie des impulsions sont accordables. Ainsi, le taux de répétition est compris entre 175 kHz et 2 MHz, la durée d'impulsion entre 250 fs et 10 ps et l'énergie des impulsions peut atteindre une valeur de 200  $\mu\text{J}$  au maximum. En amont de la fibre, une lame demi-onde ( $\lambda/2$ ) et un cube polariseur sont insérés pour contrôler l'énergie. La polarisation de la lumière d'entrée est elle réglée à l'aide d'une lame quart d'onde ( $\lambda/4$ ) pour améliorer dans notre cas l'émission de la transition de Raman rotationnelle (voir la Section 2.2.2). Une lentille est ensuite ajoutée pour injecter le faisceau au sein de la fibre HCPCF hybride de rayon  $R = 19,5 \mu\text{m}$  et de longueur  $L = 3 \text{ m}$ . La conception de la fibre (voir le chapitre 3) a été choisie de manière à être fortement monomode tout en ayant de faibles pertes aux longueurs d'onde d'intérêt (pour cette étude, la bande de 950 nm à 1200 nm a été optimisée pour présenter des pertes inférieures à 10 dB/km). Puis, la fibre est connectée à deux cellules de gaz remplies avec de l'hydrogène à une pression uniforme de 20 bars, qui va permettre de déterminer l'intensité d'interaction Raman ainsi que les processus de décohérence à travers le coefficient de gain Raman  $g_R = 1,3 \times 10^{-11}, \text{m.W}^{-1}$  et le taux de déphasage  $\Gamma_R = 2 \text{ GHz}$  (voir la Section 2.2.1). Enfin, en sortie de fibre le peigne Raman généré est collimaté puis caractérisé à l'aide d'un analyseur de spectre, d'une caméra et d'un autocorrélateur de marque APE).



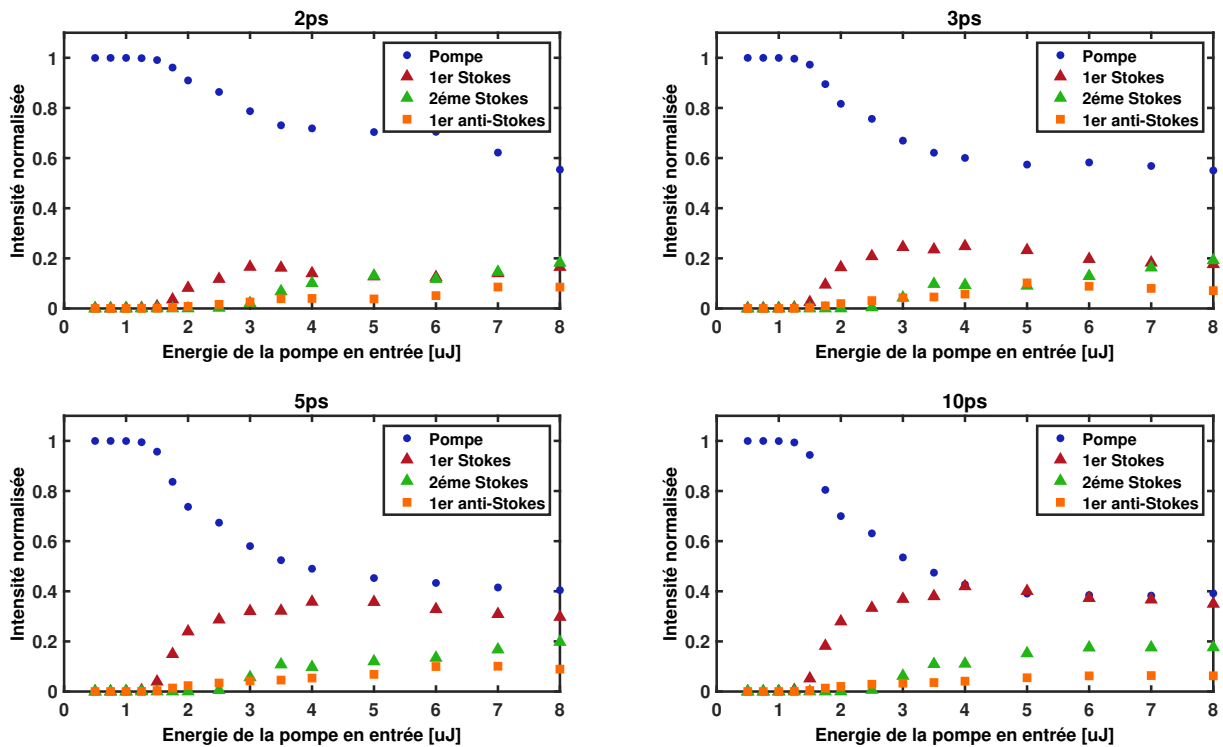
**Figure 4.1** – (a) Configuration expérimentale utilisée pour caractériser le peigne Raman généré par DRS. (b) Photographie du set-up expérimental centrée sur la partie intégrant la fibre creuse. (c) Rapport  $r$  en décibels révélant le poids du premier mode STM par rapport aux suivants. La zone jaune correspond aux situations où le premier mode STM domine fortement. En gris, la zone de travail atteignable par notre banc expérimental est rajoutée.

Dans un premier temps, plusieurs campagnes de mesure ont été menées dans le but de caractériser en détail les conditions de la génération des peignes Raman par DRS. Pour cela, la figure 4.2 présente les spectres mesurés en sortie de fibre pour des durées d'impulsion de la pompe allant de 2 ps à 10 ps et pour des énergies de  $0,5 \mu\text{J}$  à  $8 \mu\text{J}$ . Les données ont été obtenues en utilisant un premier analyseur de spectre optique (OSA - *Optical Spectrum Analyzer*, marque ANDO) dont la zone de travail comprise entre 350 nm et 1750 nm permet d'observer les lignes rotationnelles et un second analyseur de spectre optique (marque YOKOGAWA) qui lui balaye une bande plus élevée entre 1200 nm et 2400 nm pour étudier le premier Stokes vibrationnel. Ces différentes raies Raman apparaissent de façon progressive autour de la pompe pour des énergies supérieures à  $6 \mu\text{J}$ . Ainsi, on note la présence de six raies rotationnelles (1er Stokes à 1100 nm, 2ème Stokes à 1170 nm, 3ème à 1250 nm, 1er anti-Stokes à 970 nm, 2ème anti-Stokes à 820 nm et le 3ème anti-Stokes à 860 nm) et deux raies vibrationnelles (1er Stokes à 1800 nm, 1er Stokes du 1er Stokes rotationnel à 1600 nm). Il est aussi à noter que le nombre de ces lignes est limité par la bande de transmission de la fibre. De plus, un élargissement des raies est observable avec l'augmentation de l'énergie, phénomène qui est attribué à la contribution de l'effet Kerr. Ce phénomène est amplifié pour les durées d'impulsion inférieures à 2 ps. Dans notre cas, pour étudier la cohérence du peigne Raman, on cherchera une configuration où cet effet Kerr est à éviter.



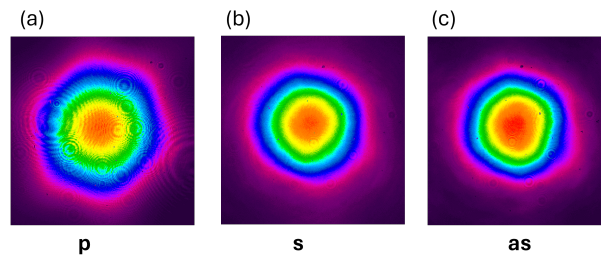
**Figure 4.2** – Spectres Raman mesurés à la sortie de la fibre remplie de  $H_2$  à 20 bars en fonction de l'énergie du laser pompe et pour des durées d'impulsion variables de  $\tau_L = 2$  ps,  $\tau_L = 3$  ps,  $\tau_L = 5$  ps et  $\tau_L = 10$  ps.

A partir de ces résultats on a ensuite cherché à évaluer la puissance portée par chacune des raies. Pour cela, la puissance optique est calculée à partir de l'intensité des raies des spectres mesurés en figure 4.2 et intégrée sur leur largeur spectrale. Sur la figure 4.3, le résultat est tracé pour le 1er Stokes, 2ème Stokes, 1er anti-Stokes et la pompe. Il permet de mettre en évidence que la déplétion de la pompe se produit à partir d'un seuil qui se situe dans notre cas autour d'énergie de  $2 \mu\text{J}$  suivi par un transfert progressif de l'énergie de la pompe vers les différentes raies Raman. On peut aussi noter que le transfert d'énergie de la pompe est maximisé pour les impulsions de grandes durées (on passe de 40% pour 2 – 3 ps à plus de 60% pour 5 – 10 ps) d'une part car le gain Raman se trouve augmenté avec la durée de l'impulsion et d'autre part car le poids de l'effet Kerr est lui réduit.



**Figure 4.3** – Évolution de la puissance optique des différentes raies du peigne Raman (pompe, 1<sup>er</sup> Stokes, 2<sup>ème</sup> Stokes, 1<sup>er</sup> anti-Stokes) en fonction de l'énergie du laser d'entrée et pour des durées d'impulsion variables de  $\tau_L = 2$  ps,  $\tau_L = 3$  ps,  $\tau_L = 5$  ps et  $\tau_L = 10$  ps.

Les champs proches de la pompe et des raies 1er Stokes et 1er anti-Stokes ont été mesurés à l'aide d'une caméra infrarouge (marque Spiricon) dans le but d'évaluer la qualité spatiale du mode en sortie de fibre. Comme le montre la figure 4.4, aux trois longueurs d'onde d'intérêt seul le mode gaussien est observé ce qui est en accord avec les mesures de S2 faites dans le chapitre 3, prouvant la capacité de la fibre hybride à guider uniquement le mode fondamental LP01. (trouver les near field pour le S et le AS)

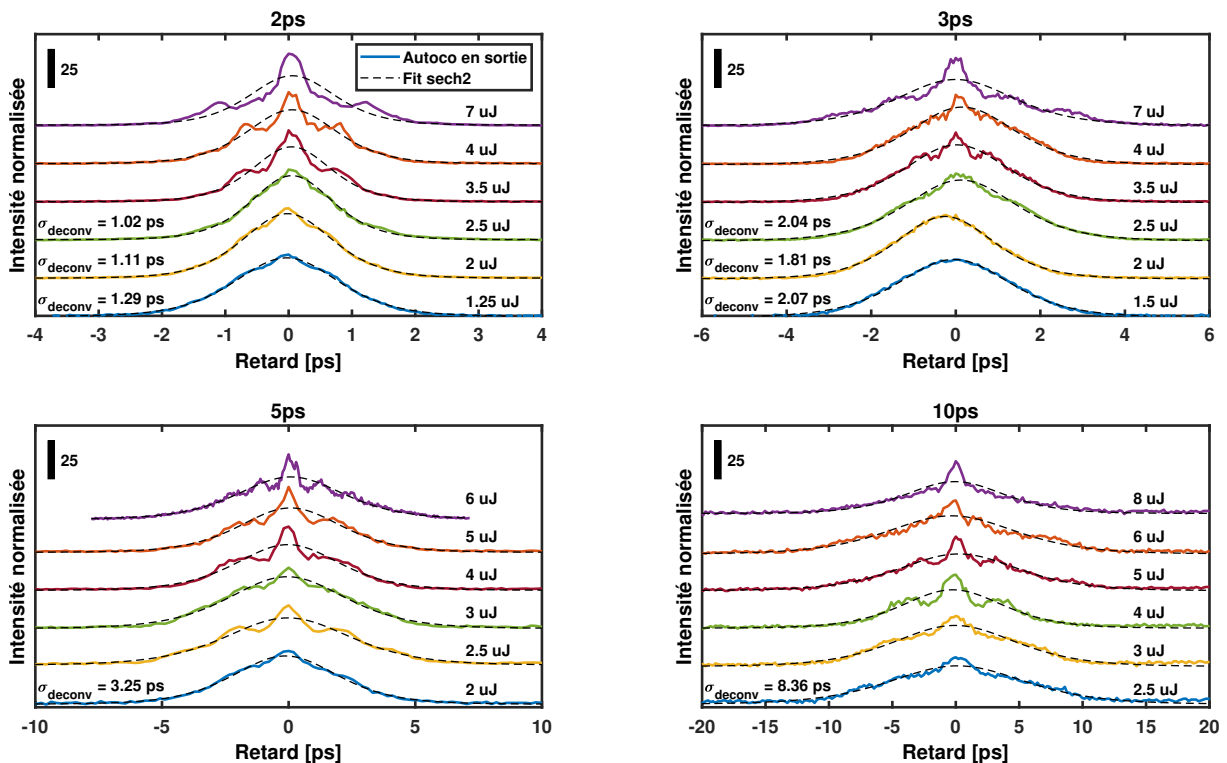


**Figure 4.4** – Image du champ proche obtenue à la caméra infrarouge aux longueurs d'onde de la pompe (a), du premier Stokes (b) et du premier anti-Stokes (c).

Des mesures de durées d'impulsion ont ensuite été réalisées à l'aide d'un autocorrélateur



(marque APE). Les résultats tracés sur la figure 4.5 montrent que pour de faibles énergies allant jusqu'à  $2 \mu\text{J}$ , les valeurs obtenues (en utilisant une sécante hyperbolique au carré) sont légèrement inférieures à celles de la pompe mesurée en entrée due à l'effet de la dispersion de la fibre vue dans la section 3.2.1. Ainsi, pour une pompe de  $3 \text{ ps}$  et d'énergie  $2 \mu\text{J}$ , on passe à  $1,81 \text{ ps}$  en sortie de fibre, soit une réduction de sa durée d'impulsion de  $60\%$ . Enfin, pour des énergies supérieures à  $2 \mu\text{J}$ , une structuration temporelle de la pompe est observée avec l'apparition des différentes raies Raman.

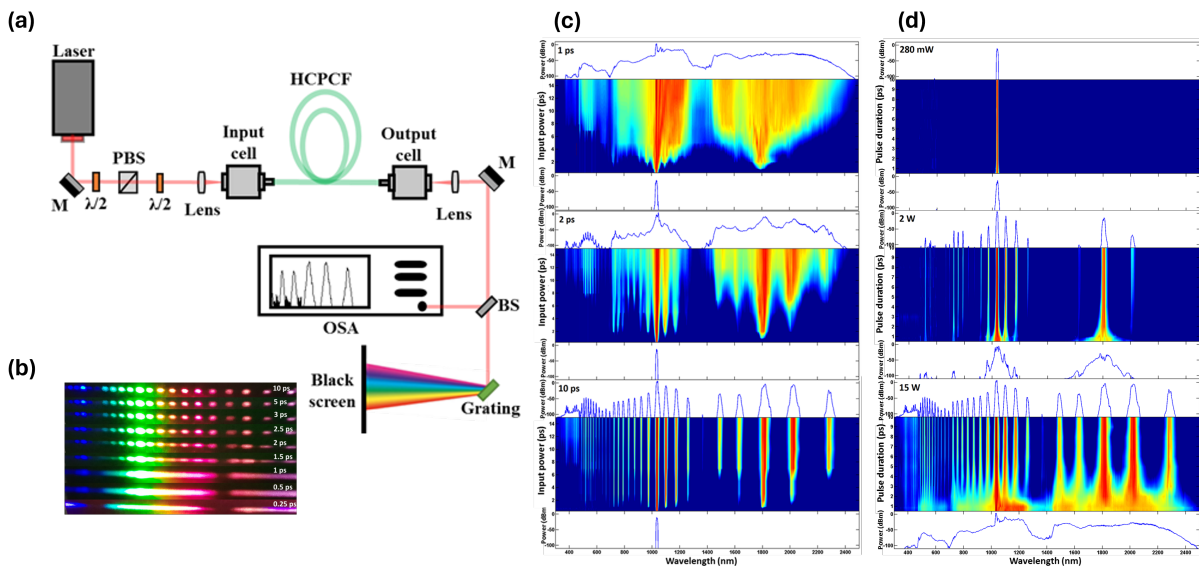


**Figure 4.5** – (—) Traces d'autocorrélation mesurées en sortie de la fibre remplie de 20 bars d' $H_2$  pour différentes énergies laser d'entrée et durées d'impulsions  $\tau_L = 2 \text{ ps}$ ,  $\tau_L = 3 \text{ ps}$ ,  $\tau_L = 5 \text{ ps}$  et  $\tau_L = 10 \text{ ps}$ . (---) Le fit utilisé correspond à une sécante hyperbolique au carré où  $\sigma_{\text{deconv}}$  représente la largeur à mi-hauteur de cet ajustement déconvolué.

## 4.2.2 Régime de DRS et ses limitations

Comme il a été mentionné dans le chapitre 2, nous cherchons dans nos études à travailler dans le régime de DRS pour exciter et amplifier un seul mode spatiaux temporel (voir la figure 2.9). Cependant, en pratique cette zone de travail est délicate à cibler car elle se trouve réduite par la contribution d'autres phénomènes tels que l'effet Kerr optique qui apparaît avec l'utilisation de courtes durées d'impulsion et/ou d'énergies élevées. En effet, dans nos

expériences de génération de peigne il existe une compétition entre l'effet Kerr optique et l'effet Raman qui dépend de la durée d'impulsion et de l'énergie du laser pompe. Pour comprendre quel mécanisme entre la DRS et l'automodulation de phase (SPM - *Self-Phase Modulation*) induit par Kerr domine, nous avons mené une étude systématique en reprenant comme point de départ des données qui avaient été obtenues par un ancien doctorant de l'équipe [118]. La figure 4.6 résume l'ensemble de ces résultats. Dans cet exemple, la fibre utilisée était une fibre classique Kagomé de 3 m, de rayon de  $58 \mu\text{m}$  et remplie de 20 bars d'hydrogène. Les analyses des spectres mesurés ont été effectuées sur une plage de puissance allant de 280 mW à 15 W, ce qui correspond à des énergies de  $1, 12 \mu\text{J}$  jusqu'à  $60 \mu\text{J}$  et pour des durées d'impulsion du laser pompe de 250 fs jusqu'à 10 ps.



**Figure 4.6** – (a) Rappel du schéma du dispositif expérimental et spectre Raman généré dans la HCPCF à CI envoyé vers un écran noir positionné après un réseau de diffraction. (b) La structure spectrale passe d'un peigne de fréquences à un supercontinuum, ici pour une puissance fixe de la pompe de 10 W. (c) Graphiques montrant la puissance spectrale mesurée en fonction de la puissance moyenne de la pompe à l'entrée de la fibre, pour des durées d'impulsion de pompe de 1 ps, 2 ps et 10 ps. (d) Graphiques montrant la puissance spectrale en fonction de la durée de l'impulsion de la pompe, avec une puissance moyenne de 280 mW, 2 W et 15 W à l'entrée de la fibre.

Pour analyser la compétition entre la DRS et la SPM, nous avons choisi de comparer théoriquement la puissance optique Raman et de l'effet Kerr générée. Ainsi, pour décrire la DRS dans la fibre HCPCF à mode unique, nous utilisons l'approche semi-classique développée dans le chapitre 2. La résolution numérique des équations de Maxwell-Bloch est utilisée pour calculer l'évolution temporelle du champ Stokes à la sortie de la fibre  $E_s(t, L)$ , puis pour évaluer la puissance optique Stokes générée (proportionnelle à  $\int_0^L dt |E_s(t, L)|^2$ ) en fonction de l'énergie

et de la largeur temporelle de l'impulsion laser. On rappelle que dans ce modèle, nous ne considérons que l'interaction des champs de pompe et de Stokes avec le milieu actif Raman, en tenant compte de la déplétion potentielle du champ de pompe qui devient essentielle pour une interaction lumière-gaz suffisamment forte. Le fait que nous ne considérerons pas les autres raies Raman est clairement une limitation pour la comparaison avec les résultats expérimentaux où de nombreuses raies Raman sont observées. Cependant, nous verrons par la suite que cette approche permet toujours une comparaison pertinente entre la DRS et l'effet Kerr dans des situations où la première raie Stokes est dominante. Pour l'évaluation numérique, nous utilisons une aire effective de l'interaction définie par le diamètre de la fibre  $A_{\text{eff}} = 1.6 \times 10^{-9} \text{ m}^2$ , et un gain Raman intrinsèque  $g_R = 4 \times 10^{-12} \text{ m/W}$ . La pression du gaz dans la fibre (20 bars) détermine le nombre de molécules d'hydrogène  $N_{H_2} \sim 5 \times 10^{26}$  ainsi que le taux de décohérence Raman,  $\Gamma_R = 2 \text{ GHz}$ , montrant que notre configuration expérimentale se situe fortement dans le régime transitoire de la DRS. Pour calculer la puissance optique SPM induite par Kerr, nous considérons un processus de mélange à quatre ondes dans un schéma unidimensionnel [119] dans lequel deux photons de pompe à la fréquence angulaire  $\omega_p$  se combinent pour donner des photons de signal et d'idler aux fréquences  $\omega_s$  et  $\omega_i$ . En supposant une impulsion laser carrée d'intensité  $I$  et de largeur temporelle  $\tau_L$ , la puissance optique à la sortie de la fibre et aux fréquences  $\nu = \nu_P \pm \Delta\nu$  est proportionnelle à :

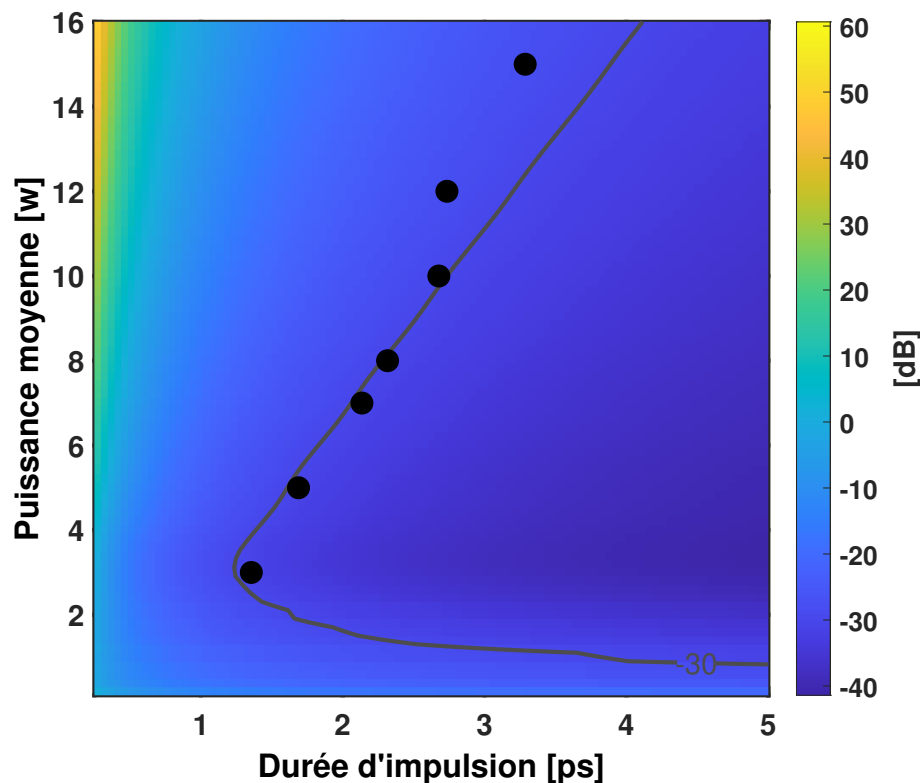
$$\int_0^{\tau_L} dt e^{2G_K(\Delta\nu)} = \tau_L e^{2G_K(\Delta\nu)} \quad (4.1)$$

où  $G_K(\Delta\nu) = \sqrt{\left(\frac{2\pi n_2 IL}{\lambda}\right) \times (\Delta\beta(\Delta\nu)L) - \left(\frac{\Delta\beta(\Delta\nu)L}{2}\right)^2}$ ,  $n_2 = 6 \times 10^{-22} \text{ m}^2/\text{W}$  étant l'indice de réfraction non linéaire du gaz. Dans cette dernière expression,  $\Delta\beta(\Delta\nu) = 2\beta(\nu_P) - \beta(\nu_P + \Delta\nu) - \beta(\nu_P - \Delta\nu)$  est le désaccord de phase linéaire pour les photons d'idler et de signal générés à  $\nu_P \pm \Delta\nu$ . La dépendance en fréquence de  $\Delta\beta(\Delta\nu)$  est obtenue à partir de l'indice de réfraction effectif du mode optique considéré dans la fibre comme vu dans le chapitre 3 [90]. Afin de comparer le poids des deux phénomènes décrit ci-dessus en fonction de la puissance de pompe laser et de la largeur temporelle, nous définissons le rapport entre les puissances optiques Kerr et DRS comme :

$$r = \frac{C(\tau_L e^{2G_K(\Delta\nu)})}{\int_0^{\tau_L} dt |E_s(t, L)|^2}. \quad (4.2)$$

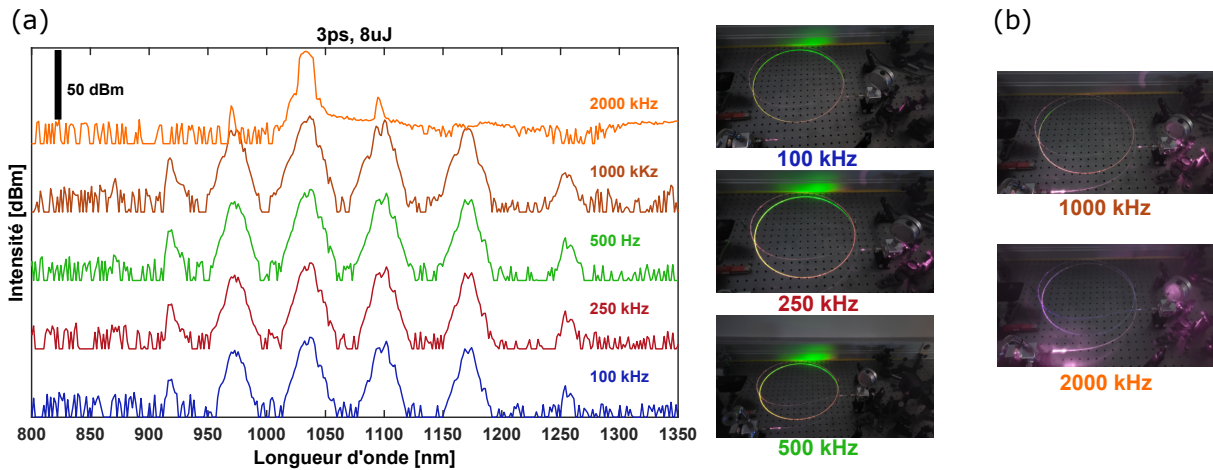
où  $C$  est une constante qui peut être obtenue à partir des résultats expérimentaux. À cette fin, nous avons choisi de comparer expérimentalement la puissance optique des premières raies rotationnelles de Stokes (fréquence  $\nu_S^{\text{rot}} = \nu_P + \Delta\nu_R^{\text{rot}}$  où  $\Delta\nu_R^{\text{rot}}$  est le décalage entre la pompe et la raie de Stokes considérée) à la puissance optique du SPM induit par Kerr pour

$\Delta\nu = \Delta\nu_R^{rot}/2$  correspondant à la fréquence entre la pompe et la raie de Stokes. Finalement, la figure 4.7 présente les points de fonctionnement (points noirs) associés à un ratio expérimental de  $r = -30$  dB. Physiquement, cela correspond à des situations où la puissance optique de la raie de Stokes est trois ordres de grandeur supérieure au SPM induit par Kerr à  $\nu_P + \Delta\nu_R^{rot}/2$ . Nous utilisons ensuite le point expérimental associé à une puissance laser moyenne de 8 W pour étalonner le ratio  $r$  obtenu numériquement et nous montrons la carte de couleurs résultante (figure 4.7). La limite de  $-30$  dB correspond pleinement aux points expérimentaux, démontrant la validité de l'approche. Dans ce cas, la raie rotationnelle de Stokes est dominante dans le spectre optique (à l'exception de la raie de Stokes vibrationnelle, voir figure 4.6), validant la description utilisée pour évaluer la contribution du SRS. Cependant, il est important de souligner que la figure 4.7 ne doit pas être utilisée pour comparer le SRS et l'effet Kerr pour de courtes durées d'impulsion et de grandes puissances moyennes car dans ces situations, le spectre optique présente de nombreuses raies Raman élargies qui ne sont pas prises en compte dans l'approche utilisée ici. En conclusion, cette loi d'échelle basée sur la comparaison entre les puissances optiques Kerr et Raman a permis de reproduire les résultats expérimentaux, démontrant une profonde compréhension de ce système et de cibler les zones de travail à venir.



**Figure 4.7** – Ratio entre la puissance optique induite par Kerr (SPM) et la DRS, en fonction à la fois de la puissance d'entrée moyenne (en Watts) et de la durée de l'impulsion de pompe (en picosecondes). La ligne grise solide correspond à un ratio de  $-30$  dB, où la DRS domine la lumière Kerr de trois ordres de grandeur. Les marqueurs noirs représentent les points expérimentaux correspondant au même ratio.

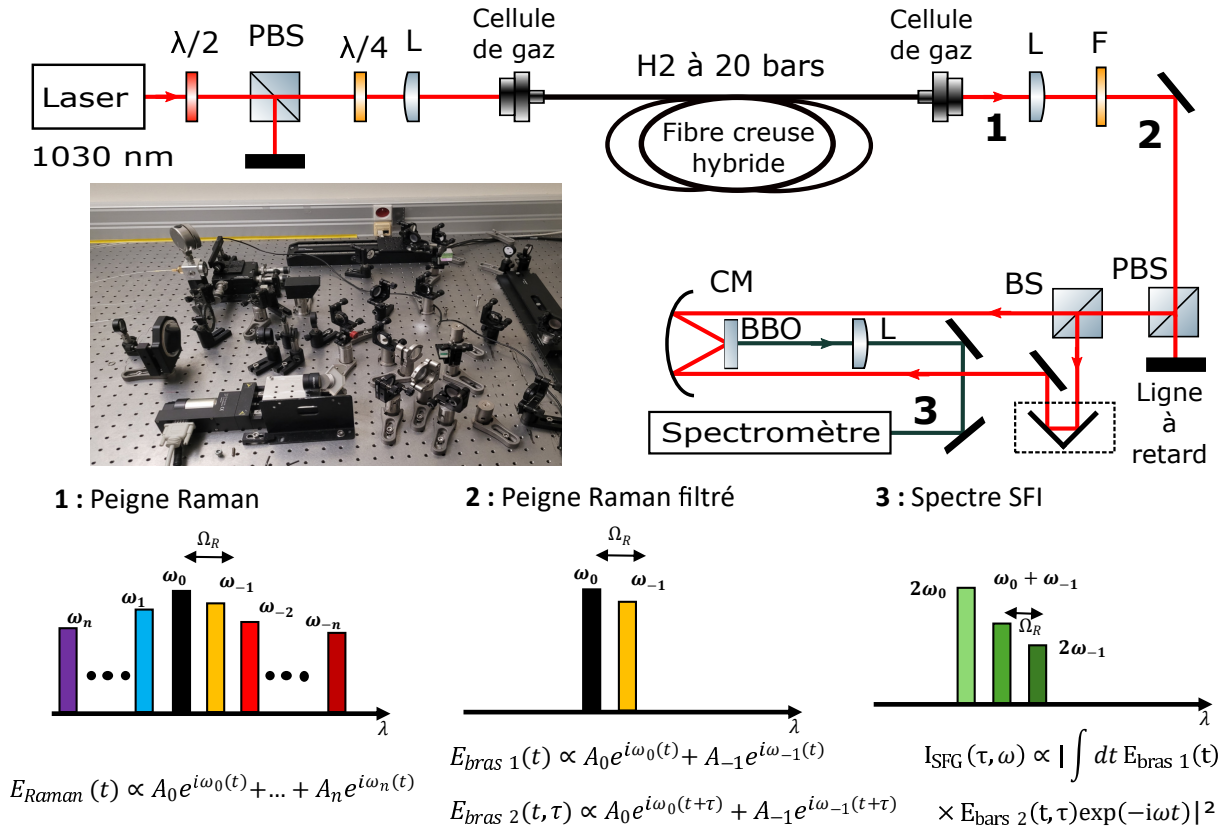
En marge de ces travaux, un autre phénomène a été observé en changeant le taux de répétition du laser. En effet, une forte dégradation du peigne Raman est apparue avec l'augmentation de la cadence du laser pour une énergie par impulsion fixe et des conditions expérimentales identiques. Dans l'exemple de la figure 4.8 (a) ces mesures ont été faites pour une largeur d'impulsion de la pompe de  $3$  ps et une énergie de  $8 \mu\text{J}$ . Il a été montré que pour des cadences élevées de  $1$  MHz, le peigne Raman disparaît progressivement jusqu'à une absence totale pour le cas de  $2$  MHz. Les photographies de la diffusion de la fibre prises sur la figure 4.8 (b) confirment la présence de ce phénomène avec le changement de couleur. Bien que ce résultat ne soit pas encore clairement expliqué (en lien probablement avec des effets de saturation ou des effets optothermiques), il nous a imposé clairement de travailler pour la suite dans un régime où le taux de répétition du laser sera inférieur à  $1$  MHz.



**Figure 4.8** – (a) Spectres Raman enregistré en sortie de fibre remplie de 20 bars d' $H_2$  pour des fréquences de répétition du laser variables à énergie et durée fixes ( $E_L = 8 \mu\text{J}$  et  $\tau_L = 3 \text{ps}$ ). (b) Images prises au niveau de la fibre montrant un changement de couleur avec la cadence du laser.

### 4.3 Réalisation d'un interféromètre à somme de fréquence

La deuxième partie de mes développements expérimentaux a porté sur la réalisation d'un interféromètre à somme de fréquences fait maison (SFI - *Sum-Frequency Interferometer*). Ce dispositif sera utilisé pour caractériser la cohérence ainsi que le profil temporel du peigne Raman généré. Comme le montre la figure 4.9, le SFI se compose d'un diviseur de faisceau non polarisant qui divise l'impulsion lumineuse à analyser, de deux bras déséquilibrés pour mettre en œuvre un retard optique ajustable  $\tau$  entre les deux impulsions lumineuses, et d'un cristal non linéaire en bêta-borate de baryum (BBO -  $\beta - \text{BaB}_2\text{O}_4$ ) sur lequel les impulsions sont recombinaées. Il en résulte un processus de génération de somme de fréquences rendant possible l'interférence entre les raies spectrales de différentes fréquences. Après le BBO, le spectre de somme de fréquences est envoyé dans un spectromètre classique (avec un temps d'acquisition d'environ 10 ms). Le programme numérique réalisé avec Matlab pour automatiser les mesures expérimentales est présenté en Annexe A.2.3. Ce SFI fait maison présente l'intérêt de combiner une haute résolution temporelle (environ fs) avec une large plage dynamique (environ 50 ps), performances directement liées aux caractéristiques de la platine de translation utilisée (marque Physik Instrumente, modèle M-404.1PD). De plus, le fait d'avoir accès aux deux bras de l'interféromètre permet de mettre en place un filtrage spectral personnalisable sur chaque bras et donc de mesurer chaque ligne ou combinaison de lignes souhaitée.



**Figure 4.9** – Configuration expérimentale utilisée pour caractériser la structure temporelle et la cohérence des peignes Raman. (Photo) Photographie de l'interféromètre à somme de fréquences. (En bas) Représentation schématique du spectre Raman en sortie de fibre (1), après le filtre (2) et après le cristal BBO (3) dans la configuration où le filtre passe-bande sélectionne uniquement la pompe  $\omega_0$  et le Stokes  $\omega_{-1}$ .

Tout d'abord, pour présenter le principe de l'interféromètre à somme de fréquence (SFI - *Sum-Frequency Interferometer*), considérons la situation d'un champ électrique composé uniquement de deux ondes électromagnétiques (champs de pompe et de Stokes) avec des fréquences  $\Omega_0$  et  $\Omega_{-1}$ , et des enveloppes  $A_0(t)$  et  $A_{-1}(t)$  qui varient lentement (supposées réelles). Nous supposons que la phase de l'impulsion de pompe est bien définie,  $\phi_0$  est constant pendant l'impulsion, et nous ne faisons aucune hypothèse sur la phase des lignes de Stokes  $\phi_{-1}(t)$ . Le champ à l'entrée de l'interféromètre est alors :

$$E(t) = A_0(t) e^{-i[\Omega_0 t - \phi_0]} + A_{-1}(t) e^{-i[\Omega_{-1} t - \phi_{-1}(t)]} + \text{c.c.},$$

où "c.c." représente le conjugué complexe de la première partie de l'équation. En supposant un diviseur de faisceau 50/50 à l'entrée de l'interféromètre et en notant  $\tau$  le délai entre les deux bras, l'intensité à la sortie de l'interféromètre est donnée par [120] :

$$I(\omega, \tau) = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} dt E(t) E(t - \tau) e^{-i\omega t} \right|^2.$$

Après calcul, les contributions au spectre optique autour de  $2\Omega_0$ ,  $2\Omega_{-1}$  et  $\Omega_0 + \Omega_{-1}$  sont montrées comme étant :

$$I_{2\Omega_0}(\omega, \tau) = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} dt A_0(t) A_0(t - \tau) e^{i(2\Omega_0 - \omega)t} \right|^2,$$

$$I_{2\Omega_{-1}}(\omega, \tau) = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} dt A_{-1}(t) A_{-1}(t - \tau) e^{i(2\Omega_{-1} - \omega)t} \right. \\ \left. \times e^{-i[\varphi_{-1}(t) + \varphi_{-1}(t - \tau)]} \right|^2,$$

$$I_{\Omega_0 + \Omega_{-1}}(\omega, \tau) = \\ \left| e^{-i\Omega_{-1}\tau} \int_{-\infty}^{+\infty} dt A_0(t) A_{-1}(t - \tau) e^{i(\Omega_0 + \Omega_{-1} - \omega)t} e^{-i\varphi_{-1}(t - \tau)} \right. \\ \left. + e^{-i\Omega_0\tau} \int_{-\infty}^{+\infty} dt A_0(t - \tau) A_{-1}(t) e^{i(\Omega_0 + \Omega_{-1} - \omega)t} e^{-i\varphi_{-1}(t)} \right|^2.$$

Expérimentalement, l'intensité SFI  $I_\Omega(\tau)$  à la fréquence  $\Omega$  est obtenue en intégrant autour des lignes spectrales d'intérêt,  $I_\Omega(\tau) = \frac{1}{2\pi} \int d\omega I_\Omega(\omega, \tau)$ , où le facteur  $\frac{1}{2\pi}$  est choisi pour des raisons de commodité. Lorsque l'on traite les lignes spectrales une par une, il est possible d'étendre les limites de l'intégrale à  $\pm\infty$ , de sorte que les contributions SFI à  $2\Omega_0$ ,  $2\Omega_{-1}$  et  $\Omega_0 + \Omega_{-1}$  sont données par :

$$I_{2\Omega_0}(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} dt A_0^2(t) A_0^2(t - \tau), \quad (4.4a)$$

$$I_{2\Omega_{-1}}(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} dt A_{-1}^2(t) A_{-1}^2(t - \tau), \quad (4.4b)$$

$$I_{\Omega_0 + \Omega_{-1}}(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} dt A_0^2(t) A_{-1}^2(t - \tau) \\ + \int_{-\infty}^{+\infty} dt A_{-1}^2(t) A_0^2(t - \tau) \\ + 2 \int_{-\infty}^{+\infty} dt A_0(t) A_0(t - \tau) A_{-1}(t) A_{-1}(t - \tau) \\ \times \cos[\Omega_R \tau + \Delta\varphi_{-1}(t, \tau)], \quad (4.4c)$$

où nous avons défini  $\Omega_R = \Omega_0 - \Omega_{-1}$  et  $\Delta\phi_{-1}(t, \tau) = \phi_{-1}(t) - \phi_{-1}(t - \tau)$ .



Pour étudier l'impact des fluctuations de phase de la ligne de Stokes, nous considérons que les enveloppes à variation lente ont un profil gaussien, telles que  $A_0(t) = A_0^0 e^{-2 \log 2 (t/\tau_0)^2}$  et  $A_{-1}(t) = A_{-1}^0 e^{-2 \log 2 ((t-\Delta t)/\tau_{-1})^2}$ , où  $\tau_j$  est la largeur à mi-hauteur (FWHM - *Full Width at Half Maximum*) de la ligne  $j$  en intensité, et  $\Delta t$  tient compte du délai entre l'impulsion de pompe et l'émission de Stokes. En supposant en outre une distribution normale pour  $\phi_{-1}(t)$  avec une valeur moyenne  $\bar{\phi}_{-1}$  et un écart type  $\sigma_{-1}$ , nous calculons numériquement les intégrales de l'équation 4.4. Pour coller à la situation expérimentale, nous avons fait la moyenne des résultats de 5000 calculs correspondant au nombre d'impulsions mesurées pendant le temps d'acquisition du spectromètre ( $\tau_{\text{acq}} = 10$  ms pour un taux de répétition du laser  $\Gamma_{\text{rep}} = 500$  kHz).

Les résultats de cette procédure pour les contributions à  $2\Omega_0$  et  $2\Omega_{-1}$  ne dépendent pas des fluctuations de phase et sont représentés sur la figure 4.10 (a-b) par les courbes rouges continues. Ils correspondent à l'autocorrélation de l'intensité des lignes de pompe et de Stokes, qui pourrait être observée en sélectionnant une seule ligne et en utilisant un autocorrélateur optique simple. À titre d'information, les profils d'intensité de ces lignes sont également montrés en lignes noires en pointillés ( $\tau_0 = 3$  ps,  $\tau_{-1} = 1$  ps,  $\Delta t = 1$  ps).

La figure 4.10 (d) présente un zoom sur les courts retards de la ligne pompe-Stokes (fréquence optique  $\Omega_0 + \Omega_{-1}$ ) pour des intensités variables des fluctuations de phase (de  $\sigma_{-1} = 0$  à  $\sigma_{-1} = \frac{3\pi}{4}$ ). Elle démontre que la conséquence des fluctuations de phase de la ligne de Stokes est de réduire le contraste des oscillations d'intensité, comme le montre la figure 4.10 (e). Étant donné que nous mesurons expérimentalement un contraste proche de l'unité, nous concluons que  $\sigma_{-1}$  reste, dans toutes les situations, proche de zéro, démontrant ainsi la bonne définition de la phase de l'impulsion de Stokes.

Nous considérons ensuite le cas  $\sigma_{-1} = 0$  dans la suite. Dans cette situation, l'équation 4.4 devient :

$$I_{2\Omega_0}(\tau) = \mathcal{I}_{0,0}^{(1)}(\tau), \quad (4.5a)$$

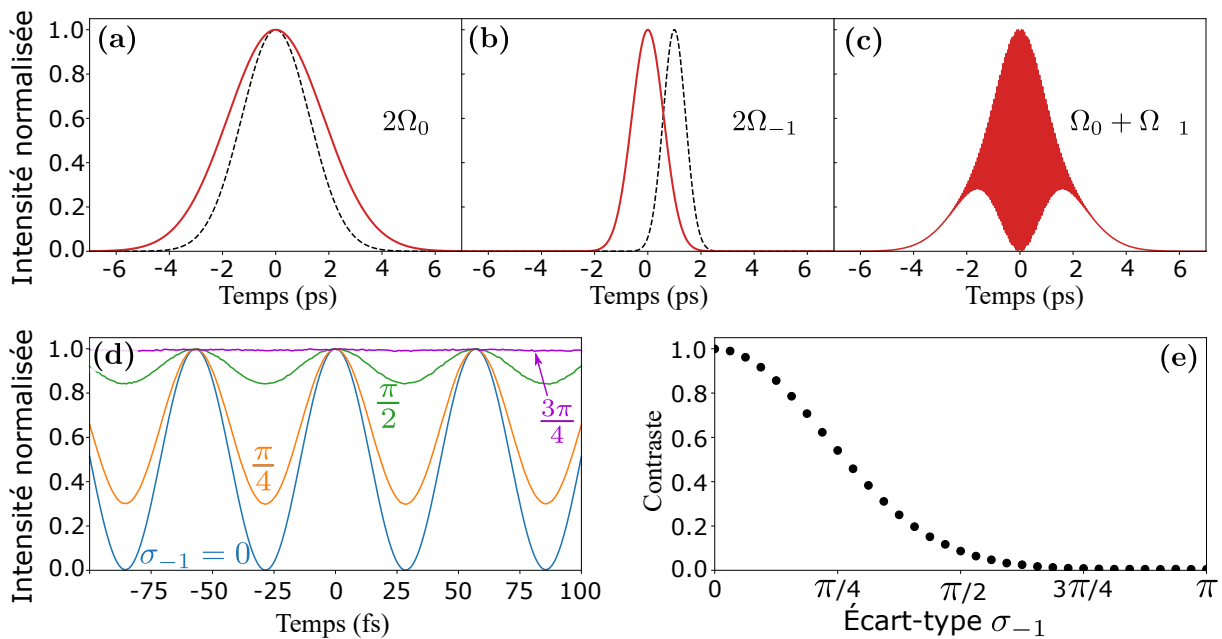
$$I_{2\Omega_{-1}}(\tau) = \mathcal{I}_{-1,-1}^{(1)}(\tau), \quad (4.5b)$$

$$I_{\Omega_0+\Omega_{-1}}(\tau) = \mathcal{I}_{0,-1}^{(1)}(\tau) + \mathcal{I}_{-1,0}^{(1)}(\tau) + 2 \cos(\Omega_R \tau) \mathcal{I}_{0,-1}^{(2)}(\tau), \quad (4.5c)$$

où nous avons défini

$$\begin{aligned} \mathcal{I}_{i,j}^{(1)}(\tau) &= \int_{-\infty}^{+\infty} dt A_i^2(t) A_j^2(t - \tau), \\ \mathcal{I}_{i,j}^{(2)}(\tau) &= \int_{-\infty}^{+\infty} dt A_i(t) A_i(t - \tau) A_j(t) A_j(t - \tau), \end{aligned}$$

avec  $\Omega_R = 2\pi\nu_R$ . La figure 4.10 (c) présente le profil temporel complet de la ligne pompe-Stokes selon l'équation 4.5. Sur ce graphique, la réduction du contraste autour de  $\pm 1,6$  ps est due au délai de 1 ps choisi entre les impulsions de pompe et de Stokes. Finalement les prédictions théoriques des profils des lignes SFI sont effectuées en calculant d'abord les champs de pompe et de Stokes à la sortie de la fibre en utilisant les équations de Maxwell-Bloch, puis en utilisant l'équation 4.5. Les résultats sont alors tracés sur la figure 4.10 (d-e) et seront à considérer par la suite pour les confronter aux mesures expérimentales.

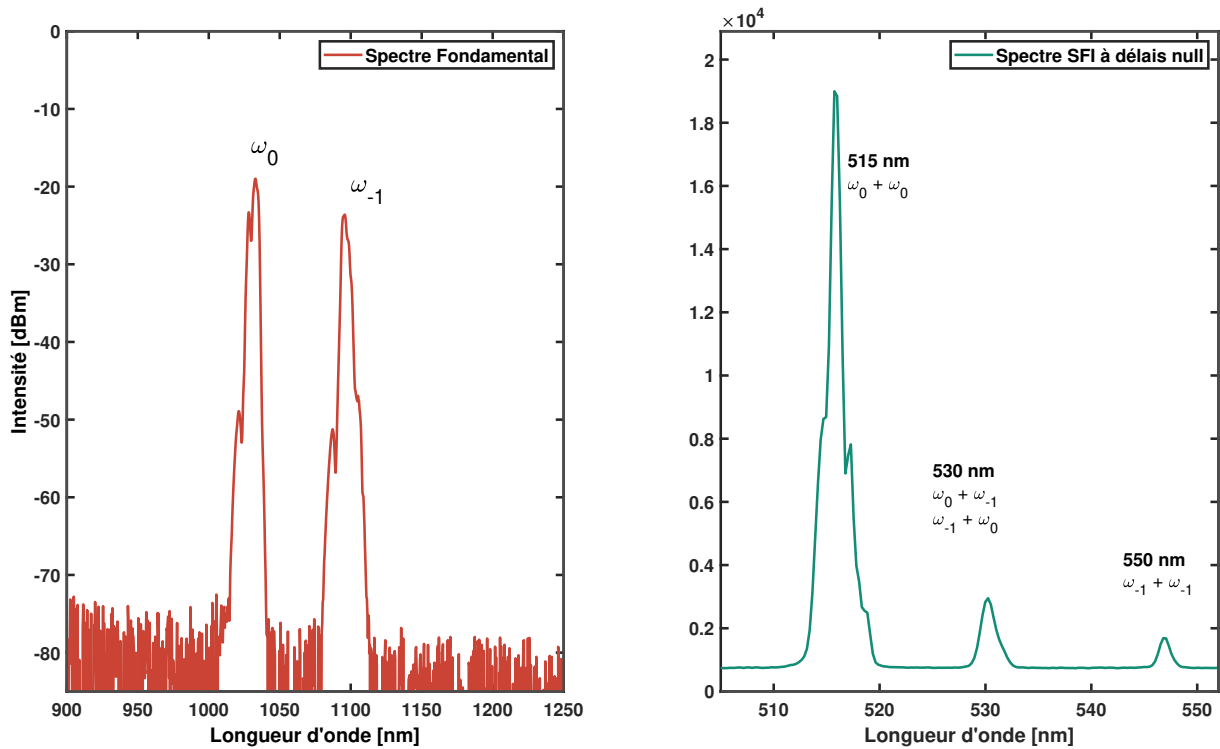


**Figure 4.10** – Impact des fluctuations de phase de la ligne de Stokes sur les mesures SFI. (a) et (b) montrent en lignes rouges continues les contributions à  $2\Omega_0$  et  $2\Omega_{-1}$ . À titre de comparaison, les lignes noires en pointillés présentent les profils d'intensité des impulsions de pompe et de Stokes. (c) Contribution à  $\Omega_0 + \Omega_{-1}$  lorsque aucune fluctuation de phase n'est prise en compte. La réduction du contraste autour de  $\pm 1,6$  ps est due au délai de 1 ps choisi entre les impulsions de pompe et de Stokes. (d) Contribution à  $\Omega_0 + \Omega_{-1}$  à de courts retards pour différentes valeurs de l'écart type des fluctuations de phase de la ligne de Stokes (de  $\sigma_{-1} = 0$  à  $\sigma_{-1} = \frac{3\pi}{4}$ ). (e) Contraste attendu des oscillations en fonction de l'écart type des fluctuations de phase de la ligne de Stokes.

## 4.4 Analyse de la cohérence entre la pompe et la première raies Stokes

Maintenant que le montage a été réalisé et décrit théoriquement, une première série de mesure a été menée pour étudier la cohérence de la lumière Stokes en la faisant interférer avec la raie de pompe pour laquelle nous savons que la phase est correctement définie. À cette fin,

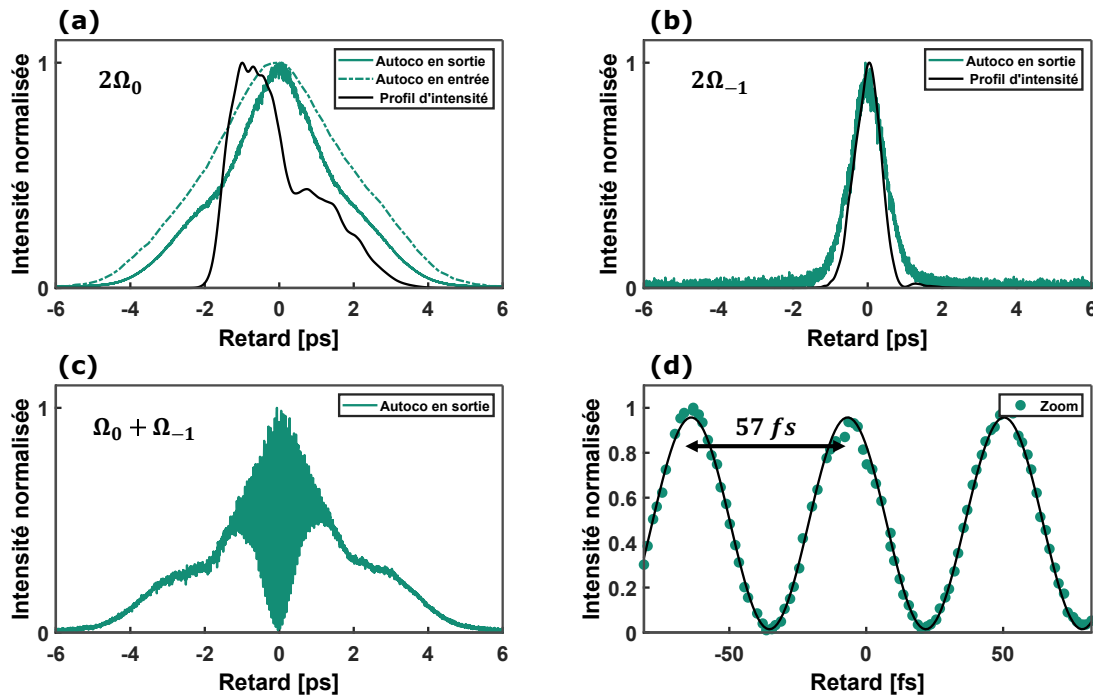
nous avons utilisé un filtre passe-bande pour sélectionner uniquement les contributions de la pompe et du Stokes, comme le montre la figure 4.11 (a). Nous travaillons ici à faible énergie ( $\epsilon_L = 1,8 \mu\text{J}$ ,  $\tau_L = 3 \text{ ps}$  pour un taux de répétition de 100 kHz) afin de minimiser la déplétion de la pompe ainsi que la structuration temporelle de l'impulsion Stokes. Comme prévu, nous observons trois raies spectrales sur le spectromètre (voir sur la figure 4.11 (b)) correspondant au doublement des deux raies initiales à  $2\Omega_0$  et  $2\Omega_{-1}$ , ainsi qu'à leur combinaison à  $\Omega_0 + \Omega_{-1}$ .



**Figure 4.11** – : (Gauche) Spectre optique mesuré après le filtrage de l'ensemble des raies du peigne pour ne garder que les contributions de la pompe et du Stokes. (Droite) Spectre optique correspondant enregistré en sortie du cristal non linéaire BBO.

Les figures 4.12 (a-c) présentent, pour chacune de ces raies, leurs dépendances en intensité en fonction du retard temporel  $\tau$  entre les deux bras de l'interféromètre. Les contributions à  $2\Omega_0$  (a) et  $2\Omega_{-1}$  (b) correspondent aux autocorrélations des impulsions de pompe et Stokes et sont utilisées pour récupérer les profils temporels d'intensité de ces impulsions, comme indiqué par les lignes noires pleines sur les figures 4.12 (a-b). Pour la raie de pompe, nous observons une réduction de la largeur temporelle ainsi qu'un changement de forme à la sortie de la fibre, conformément à ce qui est attendu en fonction de la résolution de l'équation de Maxwell-Bloch pour une interaction gaz-lumière suffisamment intense (voir la section 2.5). La trace temporelle de la raie à  $\Omega_0 + \Omega_{-1}$  est montrée sur la figure 4.12 (c) et présente des

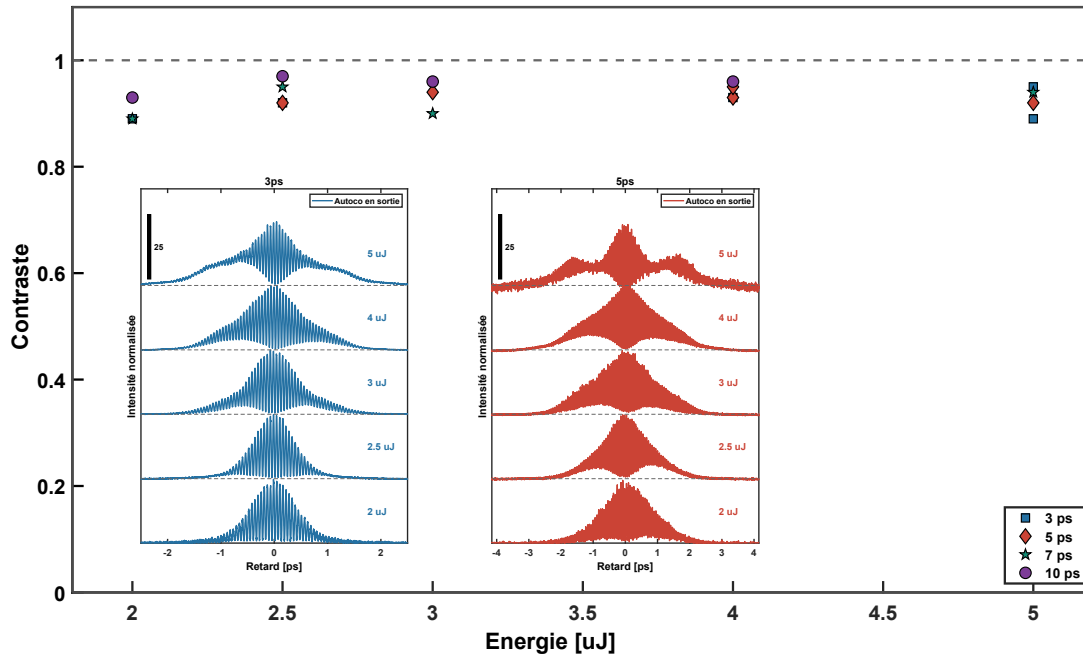
oscillations avec un contraste proche de l'unité (voir La figure 4.12 (d)), confirmant l'existence d'une phase bien définie pour la raie Stokes, comme démontré dans la section précédente 4.3. La période d'oscillation  $T_R = 57$  fs concorde elle parfaitement avec la fréquence de Raman de la transition considérée ( $\nu_R = 17,6$  THz [121]), l'enveloppe temporelle est expliquée par les profils temporels des deux raies impliquées.



**Figure 4.12** – (a-c) Traces temporelles SFI des raies à  $2\Omega_0$  et  $2\Omega_{-1}$ , ainsi que  $\Omega_0 + \Omega_{-1}$  pour  $\epsilon_L = 1,8 \mu\text{J}$ ,  $\tau_L = 3$  ps. Dans (a), la ligne pointillée verte montre les auto-corrélations de l'impulsion de pompe avant la fibre creuse, mettant en évidence la réduction de sa largeur temporelle après propagation dans le milieu Raman actif. Dans (a) et (b), la ligne noire présente les profils temporels d'intensité des raies de pompe et de Stokes. (d), Zoom de la trace temporelle (c) autour du délai zéro, démontrant un contraste proche de l'unité. La ligne noire est un ajustement sinusoïdal.

Pour caractériser davantage la cohérence de la lumière Stokes, nous avons ensuite réalisé la même expérience mais cette fois-ci en faisant varier la puissance d'entrée de la pompe. Les figures 4.14 (a-c) montrent l'intensité normalisée de la raie de pompe-Stokes pour une puissance de pompe de  $1,5 \mu\text{J}$ ,  $2,5 \mu\text{J}$  et  $4 \mu\text{J}$ . Nous observons clairement une modification de l'enveloppe temporelle due à une interaction lumière-gaz plus intense, conduisant à la structuration temporelle des impulsions lumineuses de pompe et de Stokes, comme le confirme l'auto-corrélation de ces deux contributions. Cependant, et de manière intéressante, le contraste de l'interférence reste très proche de l'unité. Des mesures identiques ont été effectuées en faisant varier la puissance des impulsions laser (2 à  $5 \mu\text{J}$ ) et leurs largeurs temporelles (3

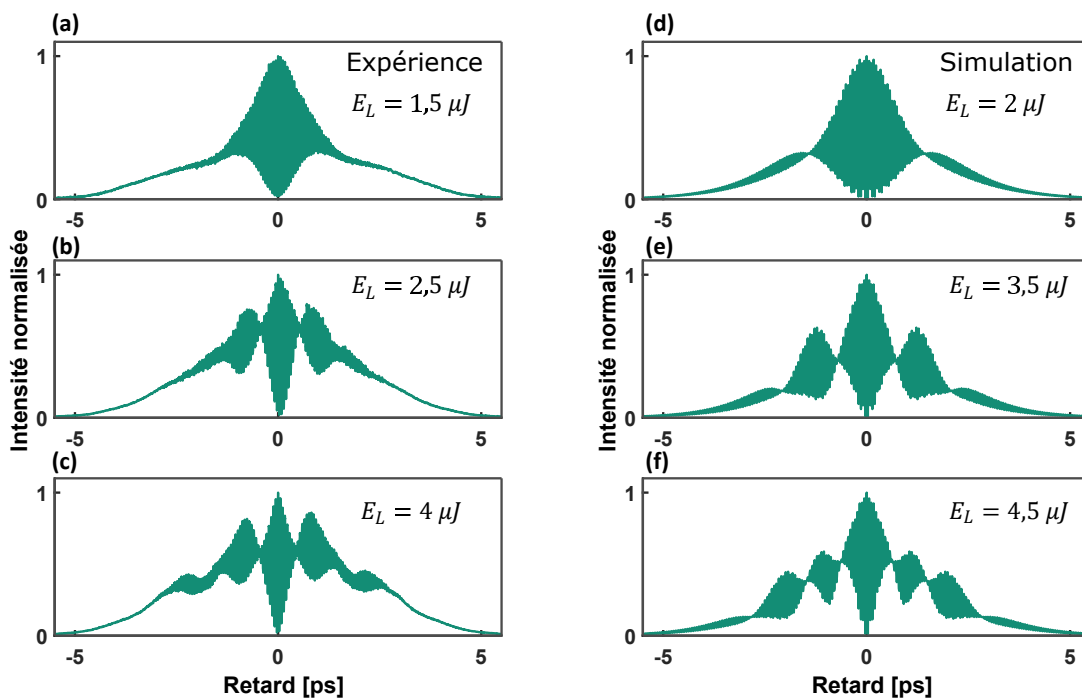
à 10 ps), avec un contraste là aussi avoisinant le maximum, comme le montre la figure 4.13. Cela démontre que, indépendamment du profil temporel de l'impulsion Stokes, sa phase reste toujours correctement définie.



**Figure 4.13** – Contraste du battement pompe-Stokes pour des puissances et des largeurs temporelles d'impulsion laser variables. (insert) Traces temporelles SFI pour la raie pompe-Stokes pour  $\epsilon_L = 2 \mu\text{J}$ ,  $\epsilon_L = 2,5 \mu\text{J}$ ,  $\epsilon_L = 3 \mu\text{J}$ ,  $\epsilon_L = 4 \mu\text{J}$  et  $\epsilon_L = 5 \mu\text{J}$ , et pour les largeurs d'impulsion  $\tau_L = 3 \text{ ps}$  et  $\tau_L = 5 \text{ ps}$ .

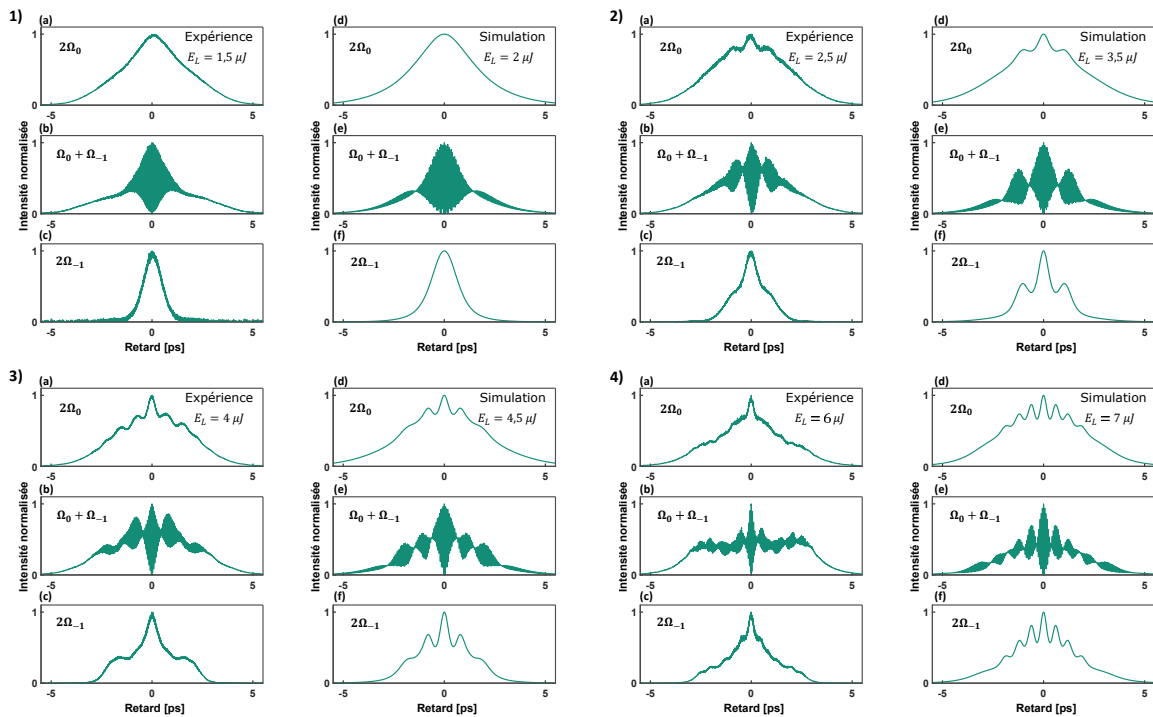
Afin de comprendre plus précisément l'évolution observée des profils temporels des deux raies spectrales, nous avons résolu numériquement les équations de Maxwell-Bloch, pour d'obtenir les champs de pompe et de Stokes à la sortie de la fibre comme vu dans la Section 2.5. L'approche numérique présente l'avantage de prendre en compte la déplétion de la pompe dû à l'interaction intense avec le milieu Raman actif, ce qui est essentiel lorsque la puissance devient suffisamment élevée. En ce qui concerne les propriétés du milieu Raman, décrit comme un ensemble de systèmes à deux niveaux, nous utilisons une durée de vie  $T_1 = 440 \text{ ns}$ , un taux de décohérence  $\Gamma = 2 \text{ GHz}$  (voir Section 2.2.1), tandis que la densité des molécules actives est déterminée par la pression et la température du gaz. Il convient de noter ici que la valeur du gain Raman intrinsèque du gaz,  $g_R = 1,3 \times 10^{-11} \text{ m/W}$  a été déterminée expérimentalement par une mesure dépendante de la puissance du spectre Raman, comme détaillé dans le chapitre 2. En ce qui concerne la pompe, elle est simplement caractérisée par son énergie d'impulsion, sa largeur

temporelle et son profil temporel choisi comme Gaussien pour simplifier. Pour les conditions initiales sur le milieu Raman, nous avons supposé que tous les systèmes à deux niveaux sont initialement dans leur état fondamental sans cohérence. D'autre part, on suppose que le champ de Stokes initial a la forme temporelle de l'impulsion de pompe avec une puissance optique équivalente à la moitié d'un photon, ce qui tient compte du fait que le champ de Stokes en régime TSRS est le résultat de l'amplification des fluctuations du vide. Les résultats de cette approche numérique sont présentés sur les figures 4.14(d-f). Un excellent accord est observé avec les données expérimentales, démontrant la bonne compréhension du système qui est ici étudié.



**Figure 4.14** – (b-c) Trace temporelle expérimentale de l'interféromètre à somme de fréquences (SFI) pour la raie de pompe-Stokes pour  $\epsilon_L = 1,5 \mu\text{J}$ ,  $\epsilon_L = 2,5 \mu\text{J}$ ,  $\epsilon_L = 4 \mu\text{J}$  et  $\epsilon_L = 6 \mu\text{J}$  à  $\tau_L = 3 \text{ps}$ . (d-f) Traces temporelles attendues de l'interféromètre SFI calculées à partir de la connaissance des champs de Stokes et de pompe à la sortie des fibres. Ces champs sont obtenus par la résolution numérique des équations de Maxwell-Bloch.

Il est à noter que la puissance de la pompe a dû être un peu augmentée dans les simulations pour reproduire le résultat expérimental. De plus, l'accord simulation-expérience tend à se dégrader légèrement avec l'augmentation de l'énergie de la pompe, comme on peut le voir sur la cartographie en figure 4.15. Cela est due au fait que notre modèle numérique ne prend pas en compte la présence d'autres lignes Raman.

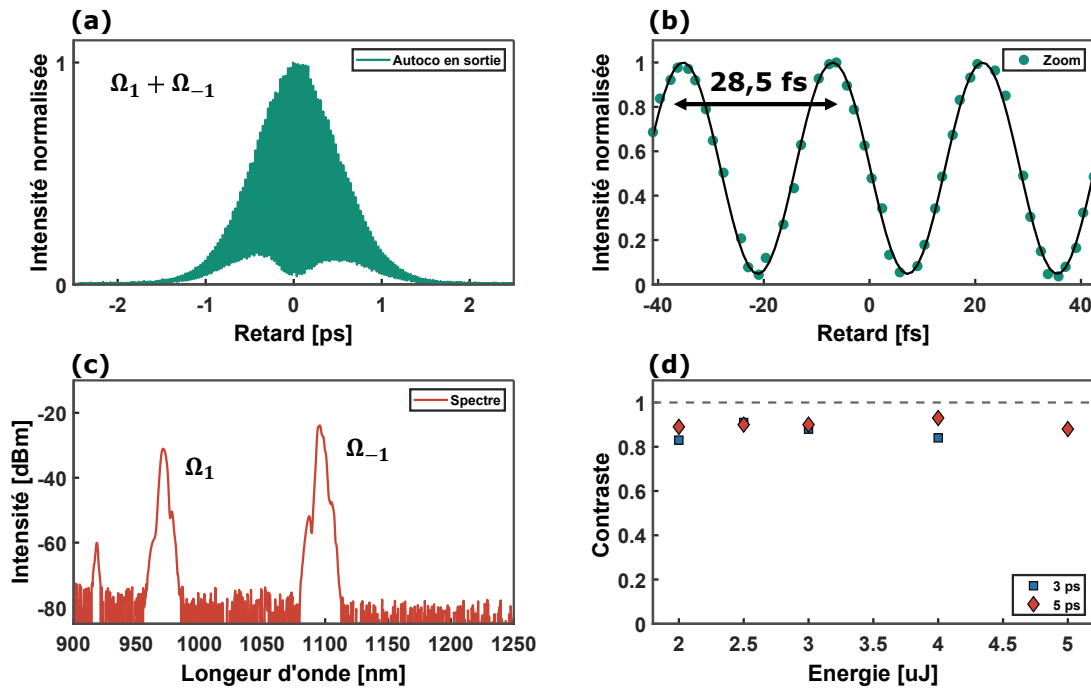


**Figure 4.15** – Traces temporelles expérimentales de l'interféromètre à somme de fréquences (SFI) pour les raies de pompe-pompe (a), pompe-Stokes (b) et Stokes-Stokes (c) fait avec  $\epsilon_L = 2, 5 \mu\text{J}$  (1),  $\epsilon_L = 2, 5 \mu\text{J}$  (2),  $\epsilon_L = 4 \mu\text{J}$  (2) et  $\epsilon_L = 6 \mu\text{J}$  (4) à  $\tau_L = 3 \text{ps}$ . (d-f) Traces temporelles attendues de l'interféromètre SFI calculées à partir de la connaissance des champs de Stokes et de pompe à la sortie des fibres. Ces champs sont obtenus par la résolution numérique des équations de Maxwell-Bloch.

## 4.5 Analyse de la cohérence des autres raies Stokes et anti-Stokes

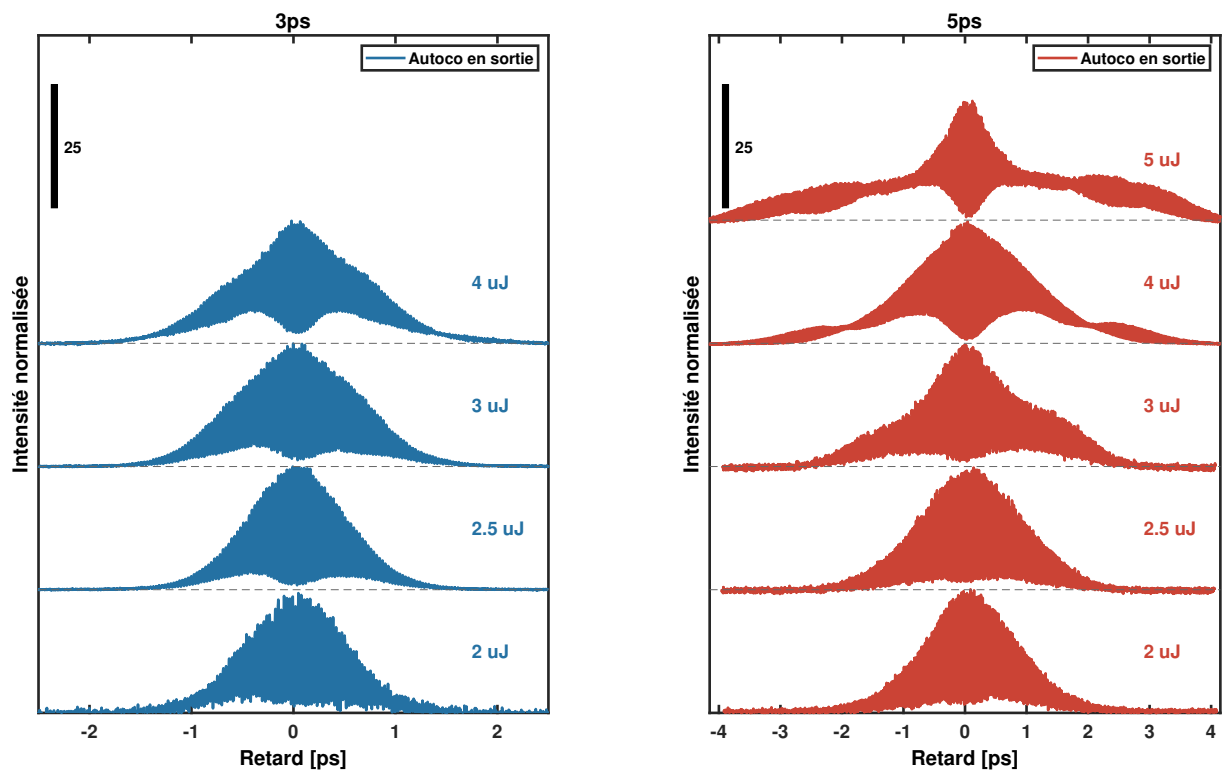
Fort de ces résultats, nous avons alors étendu nos études à l'ensemble des autres raies du peigne de Raman (1<sup>er</sup> Stokes, 1<sup>er</sup> anti-Stokes et 2<sup>ème</sup> Stokes), toujours en utilisant la combinaison de deux raies choisies par filtrage spectral. Pour débiter, nous sélectionnons d'abord uniquement les raies Stokes et d'anti-Stokes du premier ordre avant l'interféromètre (voir la figure 4.16(c)). Les mesures sont alors lancées en faisant varier les puissances et les largeurs temporelles des impulsions laser. La figure 4.16 (a-b) présente le résultat de l'expérience pour  $\tau_L = 3 \text{ps}$  et  $\epsilon_L = 2, 5 \mu\text{J}$  avec le même taux de répétition que précédemment. Une nouvelle fois nous observons un contraste proche de l'unité, démontrant la cohérence de la raie d'anti-Stokes. Les mêmes résultats ont été obtenus pour toutes les puissances et largeurs temporelles des impulsions laser testées, comme le montre la figure 4.16 (d). À noter que dans cette situation, la période de l'oscillation est d'environ  $28, 5 \text{ns}$ , en accord avec la séparation spectrale de

$\Omega_{-1} - \Omega_1 = 2\pi \times 2\nu_R$  entre les raies considérées. Leur trace temporelle complète est présentée sur la figure 4.17. Enfin, l'expérience a été réalisée sur les raies de Stokes et de 2ème Stokes pour  $\tau_L = 3$  ps et  $\epsilon_L = 3,3 \mu\text{J}$  (voir figure 4.18), révélant que la cohérence peut être démontrée sur toutes les raies étudiées de l'ensemble du peigne de Raman.

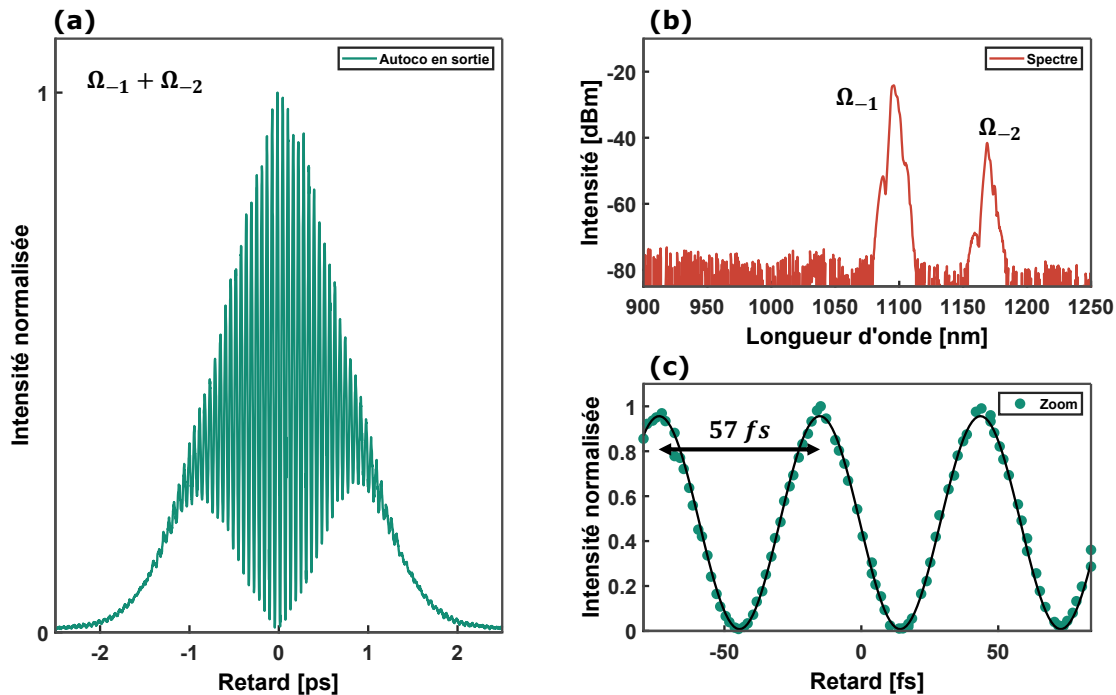


**Figure 4.16** – (a) Trace temporelle de la raie Stokes / anti-Stokes à  $\Omega_{-1} - \Omega_1$  pour  $\tau_L = 3$  ps et  $\epsilon_L = 2,5 \mu\text{J}$ . (b), Zoom de la trace temporelle autour du délai zéro, démontrant un contraste proche de l'unité. La ligne noire est un ajustement sinusoidal. (c) Spectre optique envoyé dans l'interféromètre à somme de fréquences (SFI) après filtrage. (d) Contrastes mesurés pour plusieurs puissances de pompage, pour  $\tau_L = 3$  ps et  $\epsilon_L = 5$  ps.





**Figure 4.17** – Traces temporelles SFI pour la raie Stokes / anti-Stokes pour  $\epsilon_L = 2 \mu\text{J}$ ,  $\epsilon_L = 2,5 \mu\text{J}$ ,  $\epsilon_L = 3 \mu\text{J}$ ,  $\epsilon_L = 4 \mu\text{J}$  et  $\epsilon_L = 5 \mu\text{J}$ , et pour les largeurs d'impulsion  $\tau_L = 3 \text{ps}$  et  $\tau_L = 5 \text{ps}$ .



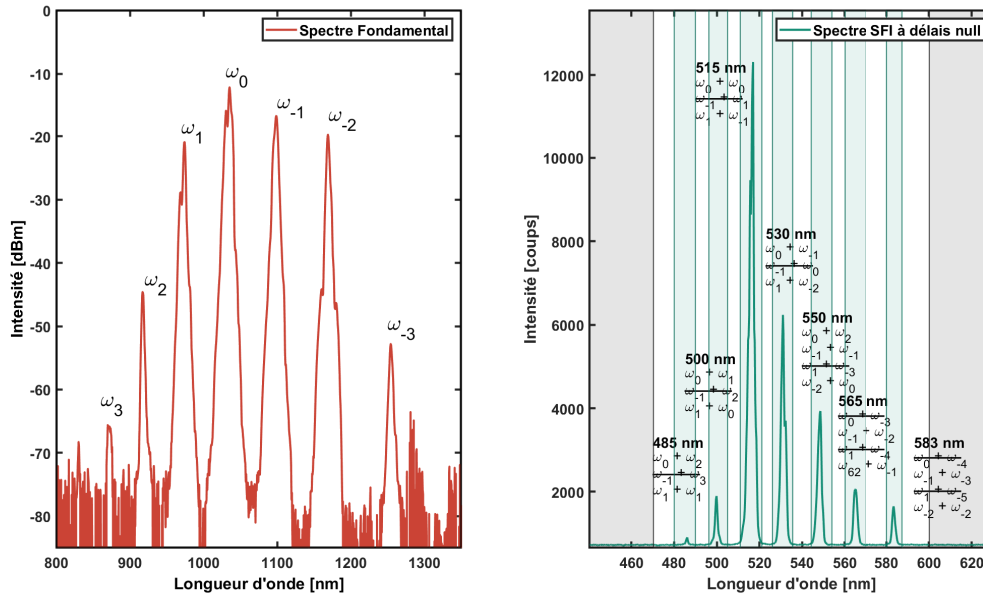
**Figure 4.18** – (a) Trace temporelle de la 1ère raie de Stokes / 2ème raie de Stokes à  $\Omega_{-1} - \Omega_{-2}$  pour  $\tau_L = 3$  ps et  $\epsilon_L = 3,3 \mu\text{J}$ . (b) Spectre optique envoyé dans l'interféromètre à somme de fréquences (SFI) après filtrage. (c), Zoom de la trace temporelle autour du délai zéro, démontrant un contraste proche de l'unité. La ligne noire est un ajustement sinusoïdal.

## 4.6 Mesures sous configuration complète du peigne Raman

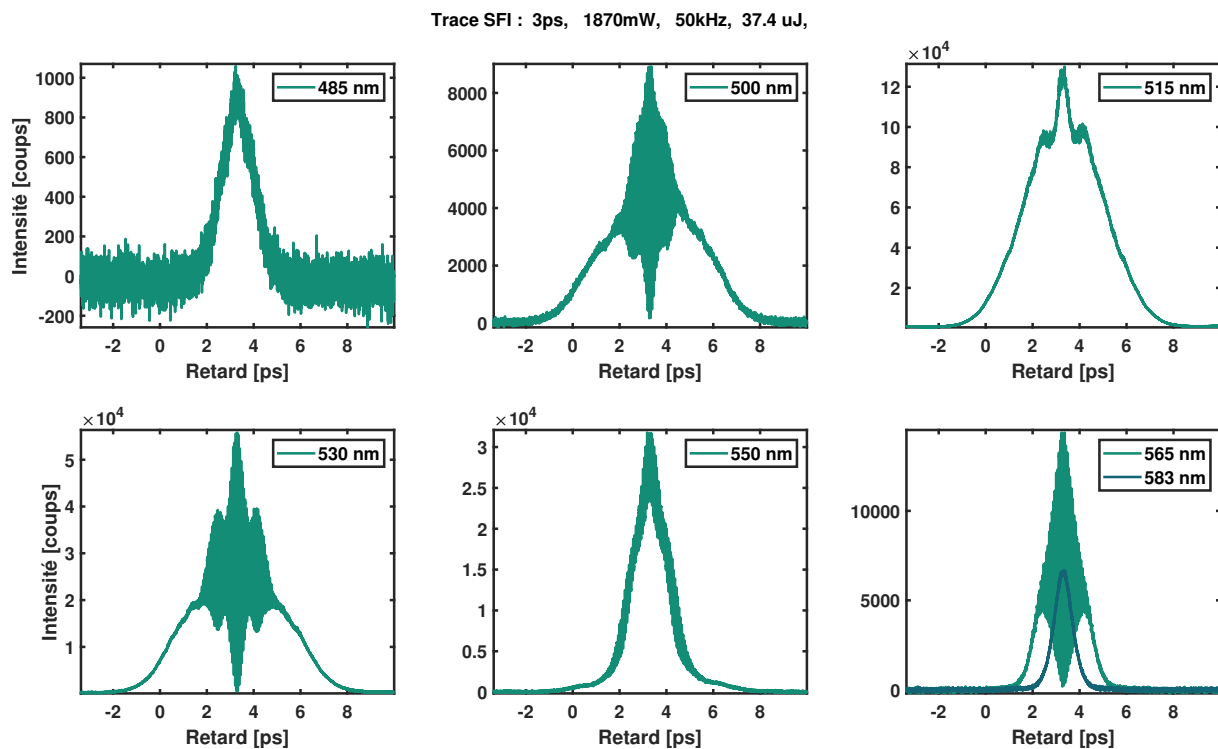
Enfin, des mesures complémentaires ont été réalisées en injectant l'ensemble du peigne Raman sans filtrage spectral. Bien que cette configuration soit des plus complexe à analyser, il nous a semblé intéressant de faire des premiers tests pour voir si certaines informations pouvaient être obtenues mais aussi pour voir comment réagissait notre système SFI.

La figure 4.19 représente les mesures typiques effectuées pour une durée d'impulsion de 3 ps et une énergie de  $37,3 \mu\text{J}$  et un taux de répétition de 50 kHz du laser pompe. Ici, l'ensemble du peigne de Raman rotationnel est combiné dans le BBO. Le spectre de somme de fréquences lorsque le délai de la platine est nul, c'est-à-dire lorsque les deux impulsions se superposent parfaitement temporellement dans le cristal BBO, est présenté sur la figure 4.19(a), ainsi que le spectre fondamental associé sur la figure 4.19(b). Chaque raie SFG est le résultat du couplage des raies Raman de chaque bras du SFI. Par exemple, la raie à 530 nm est la combinaison de la

pompe  $\omega_0$  du bras 1 avec le 1er Stokes  $\omega_{-1}$  du bras 2 et inversement, la combinaison de la pompe  $\omega_0$  du bras 2 avec le 1er Stokes  $\omega_{-1}$  du bras 1. Les termes à gauche font référence au bras 1 du SFI et les termes à droite au bras 2 du SFI. Les termes barrés sont les combinaisons négligeables devant les autres combinaisons car l'intensité des raies Raman des ordres les plus grands est de plusieurs ordres de grandeur inférieure aux raies d'ordre moindre ou ne sont pas présentes.



**Figure 4.19** – (Gauche) Spectre optique à la sortie de la fibre à cristaux photoniques à cœur creux (HCPCF) pour  $\epsilon_L = 37,4 \mu\text{J}$  et  $\tau_L = 3 \text{ ps}$ . (Droite) Spectre optique après le cristal non linéaire BBO à délais nul.



**Figure 4.20** – Traces temporelles SFI des raies associées au spectre de la figure 4.19.

Les traces temporelles d'autocorrélation correspondantes sont représentées sur la figure 4.20. Leurs formes temporelles complexes sont dues à la combinaison multiple des raies et rendent leur analyse difficile. On note la présence d'oscillations qui sont la signature d'un battement entre deux raies cohérentes entre elles. Un zoom (figure 4.21) sur la partie correspondant au délai nul permet d'évaluer la période d'oscillation du battement qui est déterminée par la fréquence de la transition Raman considérée. Si plusieurs raies battent entre elles comme pour la raie à 550 nm, c'est la somme de plusieurs battements de périodes d'oscillation différentes qui est observée. Bien que le contraste de ces oscillations nous donne des informations sur la cohérence des raies, il reste difficile d'aller plus loin dans l'analyse.

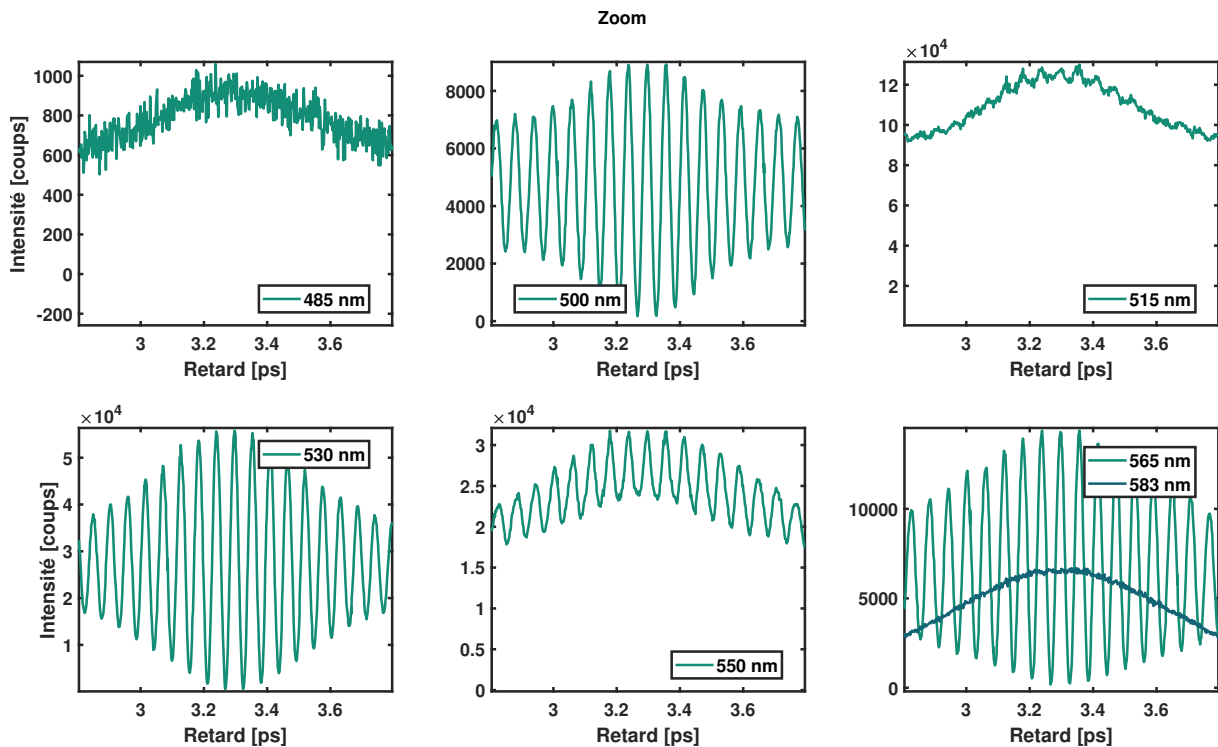


Figure 4.21 – Zoom de la trace temporelle (figure 4.20) autour du délai zéro.

## 4.7 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons étudié la cohérence des lignes Raman générées par DRS dans le régime transitoire via au sein d'une fibre creuse unimodale. Pour cela, une zone de travail a été identifiée de façon précise en mettant en évidence l'impact de l'effet Kerr et celui de la déplétion de la pompe. Puis, un dispositif expérimental pour caractériser et mesurer la cohérence mutuelle des raies Stokes rotationnelles a été réalisé. Plusieurs études expérimentales ont alors été menées de façon systématique et les résultats obtenus sur la cohérence ont montré des valeurs de contraste proches de l'unité et ce pour différentes combinaisons de raies rotationnelles. Enfin, cette cohérence de l'ensemble du peigne Raman au sein d'une même impulsion a été confirmée par un modèle théorique que j'ai développé. Finalement, la déplétion de la pompe avec l'énergie et son impact sur l'enveloppe temporelle des impulsions ont été mis en évidence et comparés avec succès aux résultats obtenus avec le modèle numérique.

# 5

## Étude de la cohérence Raman inter-impulsionnel

**Résumé :** Ce dernier chapitre expérimental se focalise sur une analyse approfondie de la cohérence inter-impulsion en utilisant un banc expérimental qui s'inspire de celui du chapitre précédent. Pour cela, deux expériences distinctes ont été réalisées. La première vise à étudier spatialement la visibilité des franges d'interférence des raies pompe, Stokes et anti-Stokes. La seconde utilise un interféromètre de Mach-Zehnder amélioré par l'ajout de lignes à retard supplémentaires, permettant de croiser les impulsions et de remonter à la visibilité dans le domaine temporel. Dans cette expérience, l'énergie est soigneusement contrôlée pour éviter la dégradation des formes temporelles des impulsions. Nous discuterons également des limitations du modèle numérique, des contraintes rencontrées lors des expérimentations et de l'impact des résultats sur la synthèse d'onde basée sur la DRS dans le régime transitoire.

## Sommaire

---

5.1	Introduction . . . . .	127
5.2	Analyse des franges d'interférence de la pompe, la première raies Stokes et la première raies anti-Stokes . . . . .	129
5.3	Analyse de la cohérence inter-impulsionnelle entre la pompe et la première raies Stokes . . . . .	137
5.4	Conclusion . . . . .	142

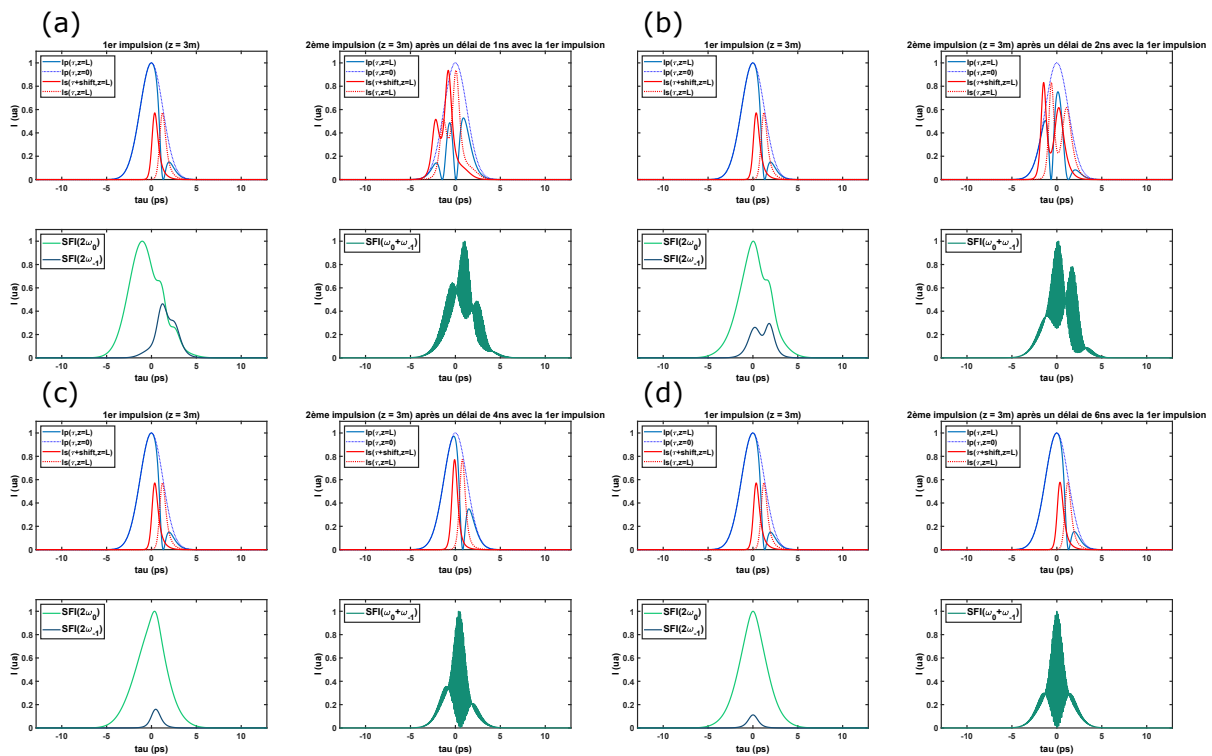
---

## 5.1 Introduction

Dans le chapitre 4 précédent nous avons étudié les propriétés optiques des peignes Raman générés dans une fibre creuse. Nos observations ont révélé que les composantes spectrales de ces peignes présentent non seulement une cohérence intrinsèque, c'est-à-dire une impulsion limitée par la transformée de Fourier mais également une relation de phase entre elles. Toutefois, pour les applications telles que la synthèse d'onde, cette cohérence intra-impulsionnelle s'avère insuffisante. En effet, il est essentiel d'assurer également une cohérence inter-impulsionnelle, c'est-à-dire une uniformité de phase et d'amplitude entre les impulsions successives. Seule cette cohérence étendue permet de contrôler et de manipuler précisément la forme des impulsions. Des travaux antérieurs ont mis en lumière une persistance de la cohérence Raman au-delà du temps de déphasage collisionnel de la cohérence Raman  $T_2$  [122, 123]. Néanmoins, ces études n'ont pas explicité l'origine exacte de cette persistance. On peut se demander si cette persistance de la cohérence Raman est due à un nombre élevé de vibrations moléculaires qui persistent au-delà de  $T_2$  ou si elle résulte d'un autre mécanisme, tel que l'effet de "phase pulling" décrit par Carman *et al.* en 1970 [124]. Ces auteurs ont démontré que sous certaines conditions de modulation fréquentielle de l'impulsion laser, les phases du laser, du Stokes, et de la cohérence Raman doivent s'ajuster de manière à ce que les termes exponentiels soient proches de l'unité. Autrement dit, les phases des différents champs doivent être synchronisées ou "tirées" les unes vers les autres pour optimiser l'interaction. Cette synchronisation de phase, ou "phase pulling", pourrait ainsi jouer un rôle clé dans la persistance observée de la cohérence Raman, en facilitant une interaction constructive prolongée entre les champs impliqués. Ce chapitre vise à explorer la persistance de la cohérence observée dans le contexte des impulsions laser décrites précédemment afin de déterminer si cet effet est attribuable à une survivance des vibration moléculaires ou au phénomène "phase-pulling". Enfin, cette étude déterminera la fréquence de répétition minimale nécessaire d'un laser pompe pour maintenir une cohérence entre les impulsions successives. Pour cela, nous mettrons en place un banc expérimental pour étudier en détail cette cohérence entre les impulsions. Pour ce faire, la configuration expérimentale sera similaire à celle utilisée précédemment, mais nous y ajouterons des lignes à retard supplémentaires pour croiser les impulsions. Une première expérience sera réalisée sur des impulsions superposées spatialement. La cohérence des raies pompe, Stokes et anti-Stokes sera alors explorée sur une large plage d'énergies et de délais entre les impulsions. Ensuite, cette expérience sera reproduite dans le domaine temporel, où nous limiterons l'énergie pour réduire les phénomènes susceptibles de dégrader la forme temporelle des impulsions. Pour rappel, les simulations effectuées dans le chapitre 2 offrent un aperçu de ce à quoi on peut s'attendre dans un cas idéal, où les impulsions sont en phase les unes avec les autres. Au



cours de ce chapitre, nous constaterons que cette condition n'est pas toujours vérifiée, et que la cohérence entre les impulsions persiste uniquement si le délai entre elles est inférieur au temps caractéristique des molécules du milieu Raman. En effet, pour des délais longs, les impulsions ne sont plus en phase, et la DRS en régime transitoire ne parvient pas à prolonger le temps de cohérence des molécules. La figure 5.1 présente les résultats numériques pour deux impulsions de 3 ps et d'énergie 2  $\mu$ J dans un cas idéal, c'est-à-dire sans prise en compte des fluctuations de phase. On observe que lorsque le délai est bien supérieur au temps de cohérence, ce scénario est similaire à celui d'une intra-pulse vu dans le chapitre 4. Lorsque le délai entre les impulsions diminue, la deuxième impulsion bénéficie du temps de cohérence laissé par la première et influence la forme temporelle des champs à la fois pour le Stokes et la pompe. Lorsqu'on souhaite reproduire les traces temporelles d'un interféromètre à somme de fréquence, les traces deviennent alors asymétriques. La déformation temporelle devient problématique lorsque le délai est court, rendant difficile l'analyse de la cohérence entre les impulsions. Par la suite pour les mesures expérimentales, nous privilégierons les cas où la déformation temporelle est négligeable, c'est-à-dire avec une énergie par impulsion relativement faible ( $< 3 \mu$ J) et des délais entre les impulsions pas trop courts ( $> 0,5$  ns).

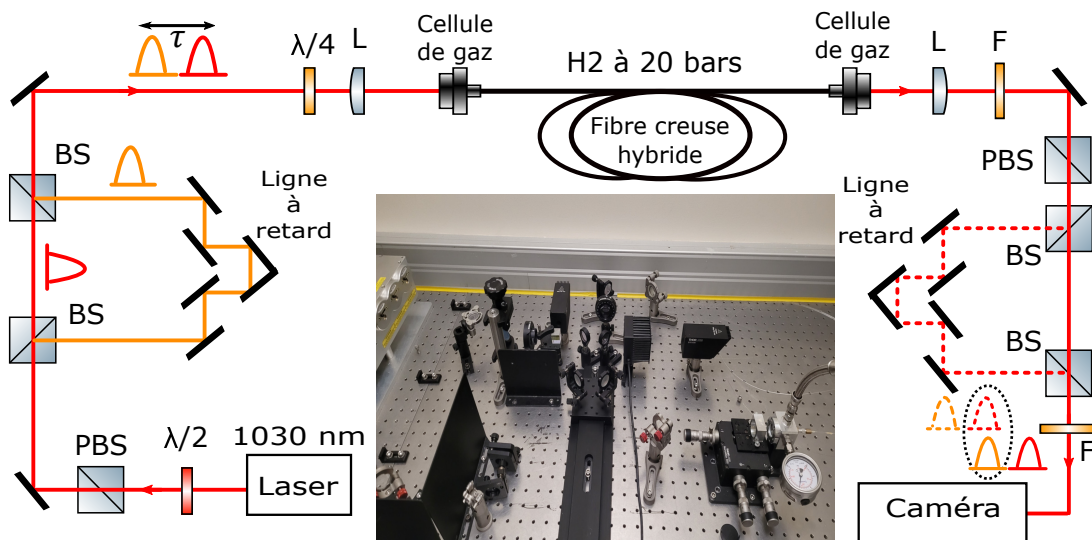


**Figure 5.1** – Résultats numériques obtenus pour deux impulsions pompe à l'entrée de la fibre de durée d'impulsion 3 ps, d'énergie  $2 \mu\text{J}$  et séparées d'un délai de 1 ns (a), 2 ns (b), 4 ns (c) et 6 ns (d) dans le cas où aucune fluctuation de phase n'est prise en compte. (haut) Profils temporels de l'intensité de la pompe (en bleu) et de l'intensité du Stokes (en rouge) à la sortie de la fibre, profils temporels de l'intensité de la pompe (en pointillé bleu) à l'entrée de la fibre et profils temporels de l'intensité du Stokes après application d'un délai de 0, 83 ps entre le Stokes et la pompe pour la première impulsion (haut, gauche) et pour la deuxième impulsion (haut, droite). (bas) Traces temporelles simulées d'un interféromètre à somme de fréquences (SFI) croisées entre la première et la deuxième impulsion : (bas, gauche) Contributions croisées à  $2\omega_0$  et  $2\omega_{-1}$ . (bas, droite) Contributions croisées à  $\omega_0 + \omega_{-1}$ .

## 5.2 Analyse des franges d'interférence de la pompe, la première raies Stokes et la première raies anti-Stokes

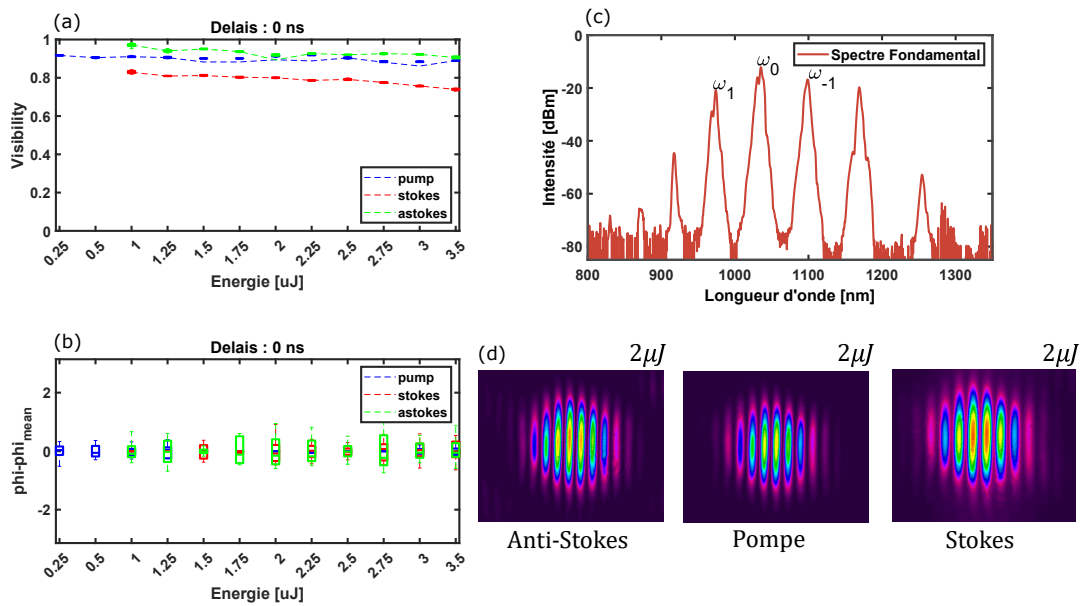
Dans cette section, nous allons nous intéresser aux mesures de cohérence inter-impulsionnelle obtenues à travers la fibre creuse en superposant spatialement le faisceau sur une caméra. La figure 5.2 présente la configuration expérimentale utilisée pour mesurer la cohérence inter-impulsionnelle des premières raies Stokes et anti-Stokes ainsi que de la pompe. La fibre utilisée est la même que celle employée dans le chapitre 4. Elle est également remplie de dihydrogène à une pression de 20 bars et est excitée par un laser picoseconde impulsif de durée d'impulsion de 3 ps, à la longueur d'onde 1030 nm et avec une fréquence de 100 kHz. À l'entrée de la fibre,

nous utilisons deux diviseurs de faisceau 50/50 et une platine de translation pour créer la ligne à retard qui contrôle le délai entre les deux impulsions pompes de même énergie, ainsi qu'une lame quart d'onde afin d'améliorer l'émission de la transition de Raman rotationnelle. L'autre partie du faisceau est bloquée par un absorbant. À la sortie de la fibre, un polariseur filtre la polarisation du faisceau. Les parties réfléchies des deux impulsions sont ensuite combinées à l'aide d'une autre ligne à retard et de deux diviseurs de faisceau 50/50. Une deuxième ligne à retard avec une résolution de l'ordre du  $\mu\text{m}$  est utilisée pour superposer finement les deux impulsions picométriques. Enfin, les faisceaux combinés sont envoyés sur une caméra infrarouge (Spiricon). Le peigne Raman (voir figure 5.3 (c)) obtenu est semblable au spectre étudié dans le chapitre 4. Un ensemble de filtres est utilisé pour ne laisser passer que les paires spectrales souhaitées. Dans notre cas, nous nous intéressons à la première raie Stokes, à la première raie anti-Stokes et à la pompe. Le temps d'acquisition de la caméra est compris entre 1 et 100 ms, et chaque mesure représente entre 100 et 10000 coups du laser, répétés 16 fois.



**Figure 5.2** – Configuration expérimentale utilisée pour caractériser la cohérence inter-impulsionnelle des peignes Raman. (Photo) Photographie du set-up expérimental centrée sur la première ligne à retard amont de la fibre.

À la sortie de la caméra, les motifs d'interférence pour différentes longueurs d'onde ont été enregistrés. La figure 5.3 (d) montre les profils interférométriques pris sur la caméra pour les couples pompe-pompe à 1030 nm, les paires spectrales de la première raie Stokes rotationnelle à 1100 nm et les paires spectrales de la première raie anti-Stokes rotationnelles à 970 nm. Les premières mesures ont été réalisées à délai nul pour évaluer la visibilité maximale obtenue pour chaque ligne spectrale.



**Figure 5.3** – (a-b) Visibilité et phase relative extraite des franges d'interférence à délais nul (référence) obtenue en fonction de l'énergie des deux impulsions de 3 ps. (c) Spectres Raman utilisé pour faire les mesures sur la visibilité (première raie Stokes  $\omega_{-1}$ , première raie anti-Stokes  $\omega_1$  et la pompe  $\omega_0$ ). (d) Exemples de Franges d'interférence obtenues à la caméra infrarouge.

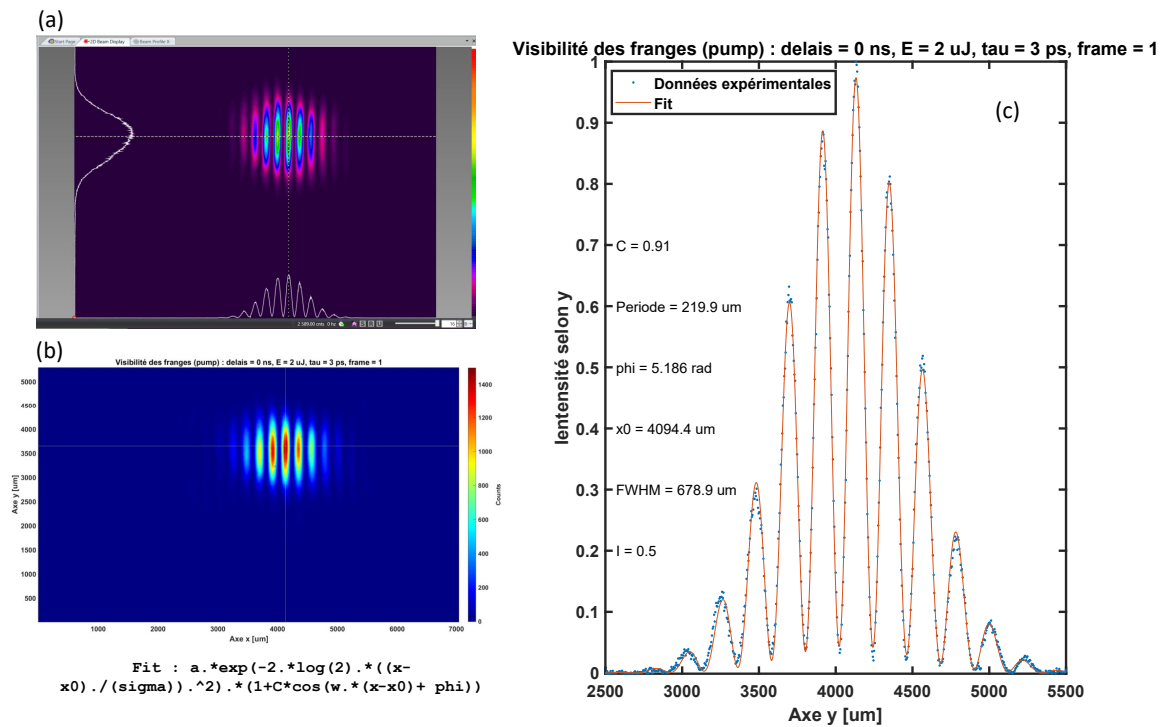
Le degré d'auto-cohérence est ensuite calculé en mesurant la visibilité moyenne des franges pour chaque prise d'image. La visibilité est définie comme suit :

$$V = \frac{I_{\max} - I_{\min}}{I_{\max} + I_{\min}} \quad (5.1)$$

où  $V$  est la visibilité,  $I_{\max}$  est l'intensité maximale des franges d'interférence et  $I_{\min}$  est l'intensité minimale des franges d'interférence. Une valeur proche de 1 signifie un fort degré de cohérence entre les impulsions, et une valeur proche de 0 montre l'inverse. Expérimentalement, la visibilité des franges de chacune des lignes Raman est mesurée sur plus de 16 images, qui correspondent elles-mêmes la somme d'une centaine d'impulsions. La visibilité est extraite en utilisant la procédure suivante, tout d'abord, chaque frange d'interférence est capturée et enregistrée sur un ordinateur (figure 5.4 (a)). Ensuite, une trace unidimensionnelle est extraite en appliquant une ligne de référence verticale au centre des franges d'interférence (figure 5.4 (b)). On y soustrait le bruit de la trace. La trace sinusoïdale obtenue est enfin normalisée et ajustée avec une fonction cosinus multipliée par une enveloppe gaussienne, comme suit (figure 5.4 (c)) :

$$f(x) = G(x)(1 + V \cos(x)) \quad (5.2)$$

avec  $G$  une fonction gaussienne et  $V$  la visibilité comprise entre 0 et 1.

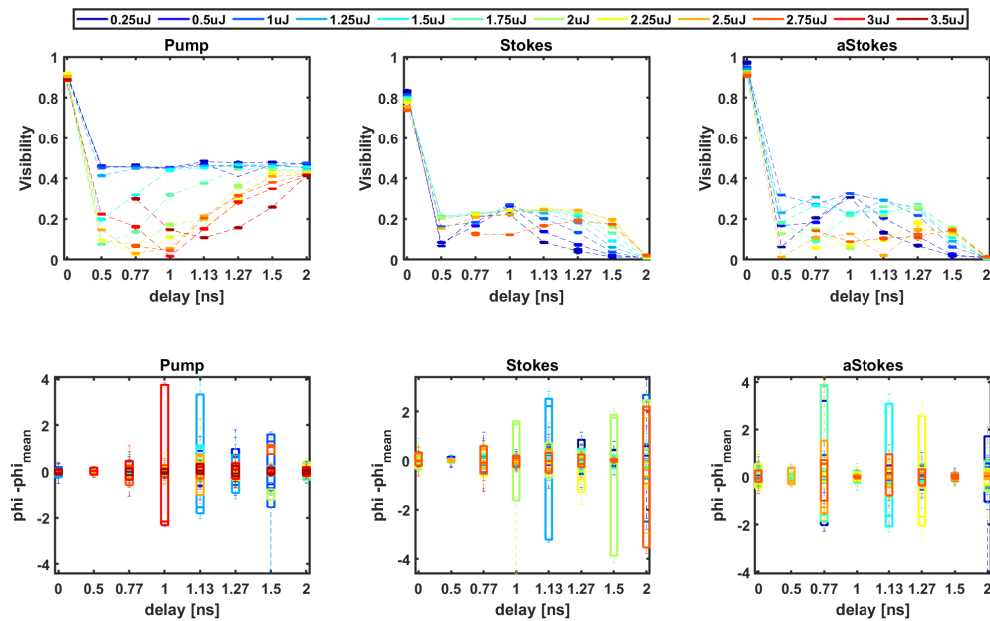


**Figure 5.4** – Procédure utilisée pour extraire la visibilité et la phase à partir du motif d’interférence. (a) Franges d’interférence brutes observées à la caméra. (b) Franges d’interférence traitées avec Matlab (suppression du bruit et orientation des franges). (c) Ajustements gaussiens modulé par une fonction sinusoïdale (rouge) et données expérimentales normalisées (noir). (Ajustements) Équation utilisée pour extraire la visibilité et les informations sur les phases.

La figure 5.3 (a) montre la visibilité obtenue pour les raies pompe-pompe, stokes-stokes et anti-stokes-anti-stokes en fonction de l’énergie (entre 0,25 et 3,5  $\mu\text{J}$ ) contenue dans une seule impulsion. On remarque une légère perte de visibilité avec l’augmentation de l’énergie. Les filtres utilisés ne sont pas parfaits et n’atténuent pas complètement les lignes non désirées. L’impact est plus fort pour les raies Stokes que pour les raies anti-Stokes et est plus prononcé avec l’augmentation de l’énergie. La largeur spectrale des raies impacte également la valeur de la visibilité. La largeur spectrale diminue pour les raies qui tendent vers le bleu et augmente pour les raies qui tendent vers le rouge. Pour la raie anti-Stokes, les valeurs de la visibilité sont comprises entre 0,98 et 0,9, pour la pompe les valeurs sont comprises entre 0,9 et 0,87, et pour la raie Stokes entre 0,83 et 0,75. Les barres d’erreur de chaque point de mesure restent cependant très faibles (inférieures à 0,02), ce qui implique une bonne stabilisation du montage expérimental et est corroboré par les mesures de phase relative présentées sur la figure 5.3 (b).

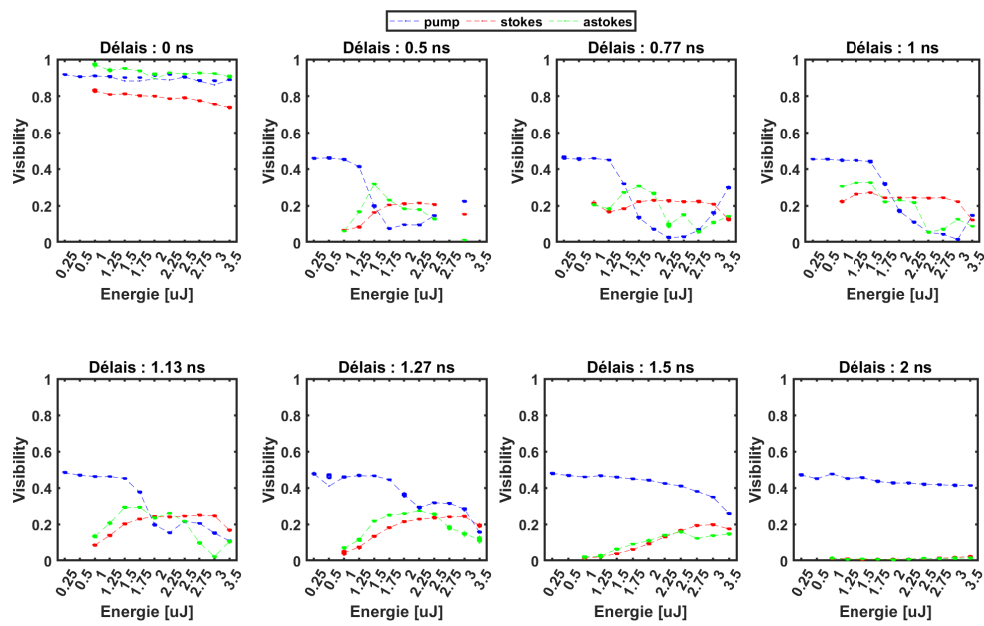
### Étude de la visibilité en fonction des délais

Par la suite, une étude qualitative a été réalisée en fonction de l'énergie des deux impulsions et du délai entre chaque impulsion. Dans cette configuration, les bornes de la visibilité  $V$  varient ;  $V$  est compris entre 0 et 0,5. En effet, la caméra intègre 4 impulsions : une première impulsion en avance, deux impulsions qui interfèrent et une dernière impulsion en retard. La première et la dernière impulsion ajoutent du bruit car elles ne peuvent pas interférer. Les résultats des mesures expérimentales sont présentés sur la figure 5.5 et la figure 5.6. La figure 5.7 montre quelques exemples de franges d'interférence obtenues pour une énergie de  $2 \mu\text{J}$  en fonction du délai.

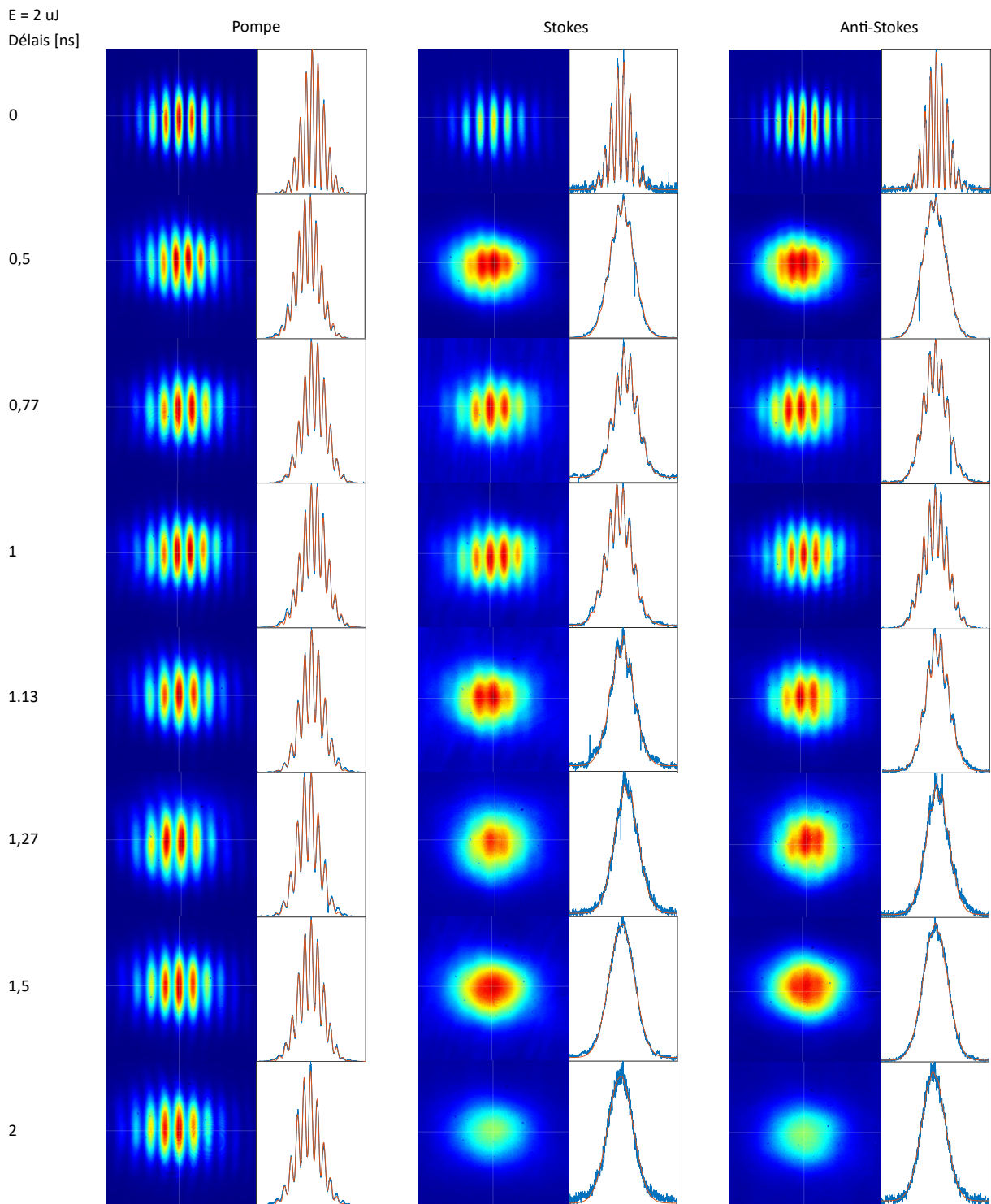


**Figure 5.5** – Visibilité et phase relative extraite des franges d'interférence de la pompe, du premier Stokes et du premier anti-Stokes pour des énergies allant de  $0,25$  à  $3 \mu\text{J}$  en fonction du délais.

## CHAPITRE 5. ÉTUDE DE LA COHÉRENCE RAMAN INTER-IMPULSIONNEL



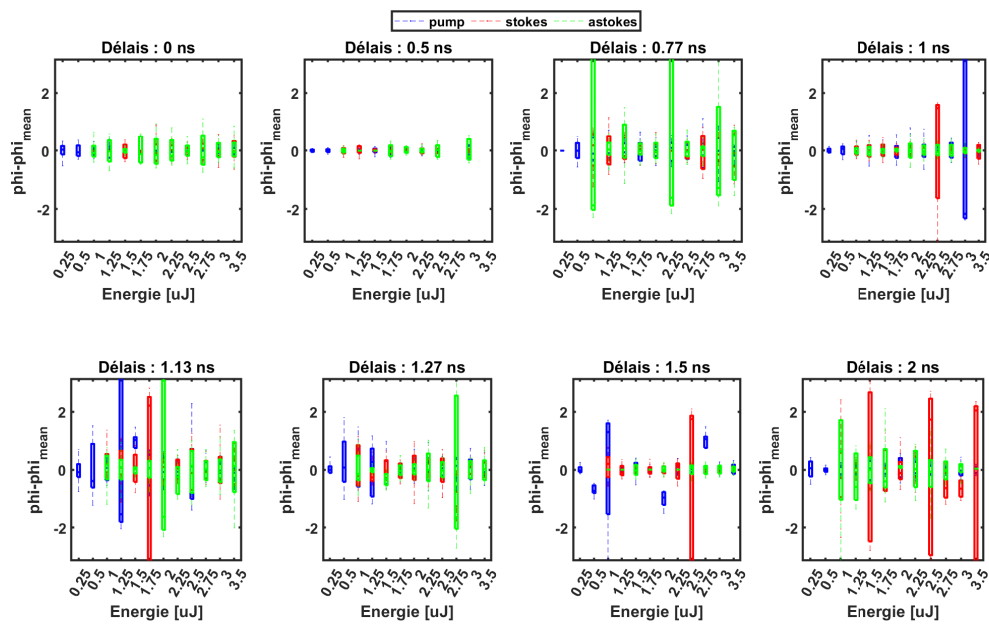
**Figure 5.6** – Visibilité extraite des franges d'interférence de la pompe, du premier Stokes et du premier anti-Stokes pour des délais compris entre 0 à 2 ns en fonction de l'énergie.



**Figure 5.7** – Exemples de Franges d’interférence obtenues pour une énergie de  $2 \mu\text{J}$  en fonction du délai. (A droite) Coupe (en bleu) obtenue au centre des franges d’interférence et ajustement (en rouge) utilisé pour en extraire la visibilité et la phase.



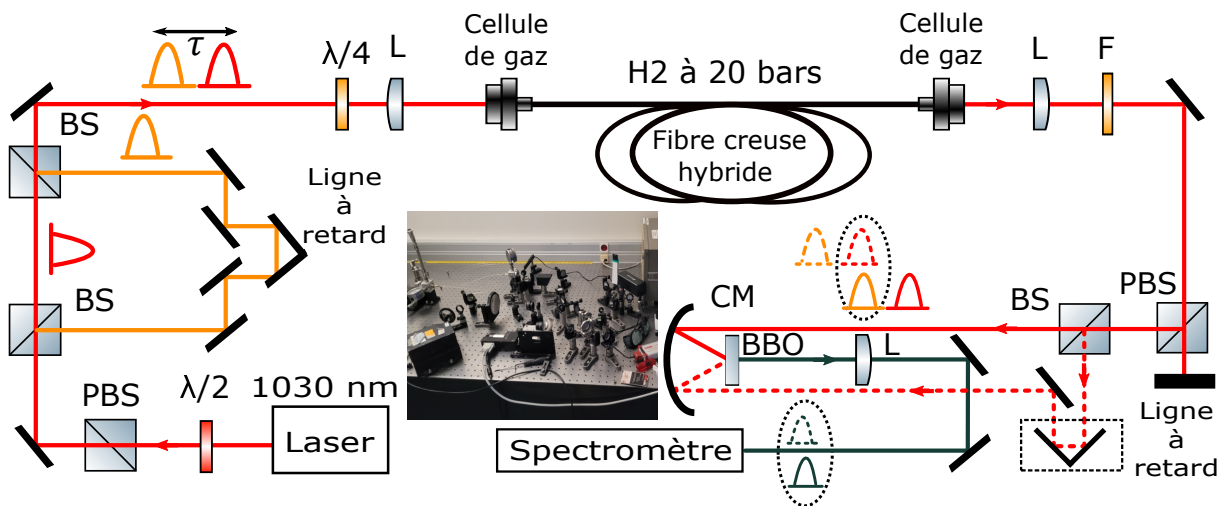
La visibilité est sondée pour des délais de 0 ns à 2 ns et des énergies de 0,25  $\mu\text{J}$  à 3,5  $\mu\text{J}$  pour la pompe, et de 1  $\mu\text{J}$  à 3,5  $\mu\text{J}$  pour le Stokes et l'anti-Stokes. On remarque que pour les grands délais (de 1 ns à 1,5 ns), la visibilité augmente progressivement avec l'augmentation de l'énergie jusqu'à un certain niveau. Le délai entre la première et la deuxième impulsion est suffisamment grand et l'énergie suffisamment faible pour que la cohérence du milieu engendrée par la première impulsion n'impacte pas significativement la structure temporelle de la deuxième impulsion. Il en résulte une augmentation du nombre de photons cohérents avec l'énergie et donc de la visibilité. À des délais plus courts et/ou à des énergies plus élevées, la situation est plus complexe. La cohérence engendrée par la première impulsion est suffisamment forte pour déformer temporellement la deuxième impulsion. Les structures temporelles des deux impulsions étant différentes, on observe donc une perte de visibilité avec l'augmentation de l'énergie et/ou la réduction du délai entre les deux impulsions. C'est particulièrement vrai pour la pompe qui subit une déplétion suite au transfert de son énergie vers les raies Raman ; ce mécanisme est répétable pour les raies Stokes et anti-Stokes. On observe aussi un regain de visibilité avec l'augmentation de l'énergie pour des délais compris entre 0,5 et 1 ns. La déformation de la structure temporelle de la première impulsion par sa propre cohérence et la stabilisation de la forme temporelle de la deuxième impulsion peuvent expliquer ce regain de visibilité. Pour des délais suffisamment longs (2 ns) devant le temps de cohérence de la molécule d'hydrogène, la visibilité devient nulle, la cohérence du milieu n'a pas d'impact sur la deuxième impulsion. Les raies Stokes et anti-Stokes des deux impulsions sont indépendantes et incohérentes entre elles, et en moyenne leur visibilité est très faible. Quant à la pompe, les deux impulsions sont affectées de la même manière et proviennent du même laser. On observe donc une visibilité constante autour de 0,45, légèrement décroissante avec l'énergie, comme expliqué précédemment. Des mesures sur la phase, présentées sur la figure 5.5 et la figure 5.8, ont également été réalisées, mais elles nous fournissent peu d'informations pertinentes.



**Figure 5.8** – Phase relative extraite des franges d’interférence de la pompe, du premier Stokes et du premier anti-Stokes pour des délais compris entre 0 à 2 ns en fonction de l’énergie.

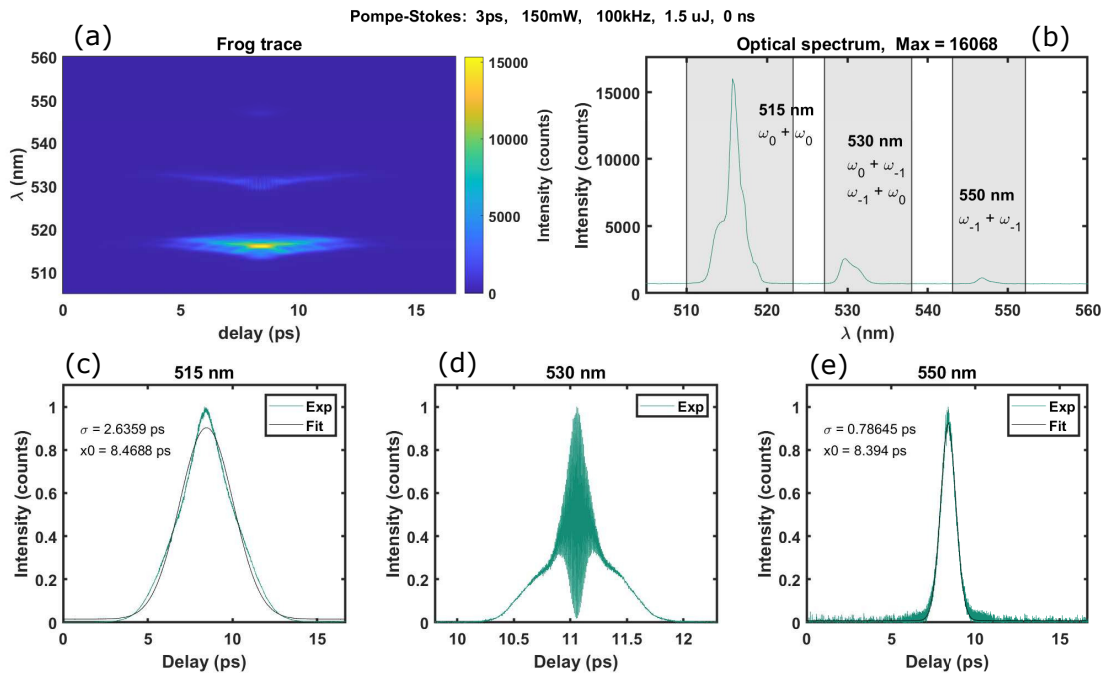
### 5.3 Analyse de la cohérence inter-impulsionnelle entre la pompe et la première raies Stokes

Par la suite, nous avons souhaité étudier la cohérence inter-pulse croisée de la pompe en fonction du délai entre les deux impulsions. L’objectif est de remonter à la cohérence de notre système, d’étudier les structures temporelles et de déduire le temps de cohérence du milieu. Le set-up utilisé (figure 5.9) est une combinaison du montage présenté au chapitre 4 et de celui utilisé pour étudier l’inter-pulse au début du chapitre 5. En amont de la fibre, le délai entre les deux impulsions a été ajusté à l’aide d’une ligne à retard. Nous avons utilisé la même fibre de 3 m remplie de 20 bars d’hydrogène que précédemment. En sortie de fibre, nous filtrons le peigne Raman en ne laissant passer que la pompe et la raie Stokes avec un filtre passe-bande (Thorlabs). Nous avons sélectionné une polarisation avec un PBS. Ensuite, nous croisons la première impulsion avec la deuxième en ajustant le retard choisi en amont de la fibre à l’aide d’une autre ligne à retard. Les faisceaux croisés sont focalisés dans un cristal non-linéaire BBO afin de permettre l’interférence de raies à différentes longueurs d’onde. Après le BBO, le spectre est collecté à l’aide d’un spectromètre.



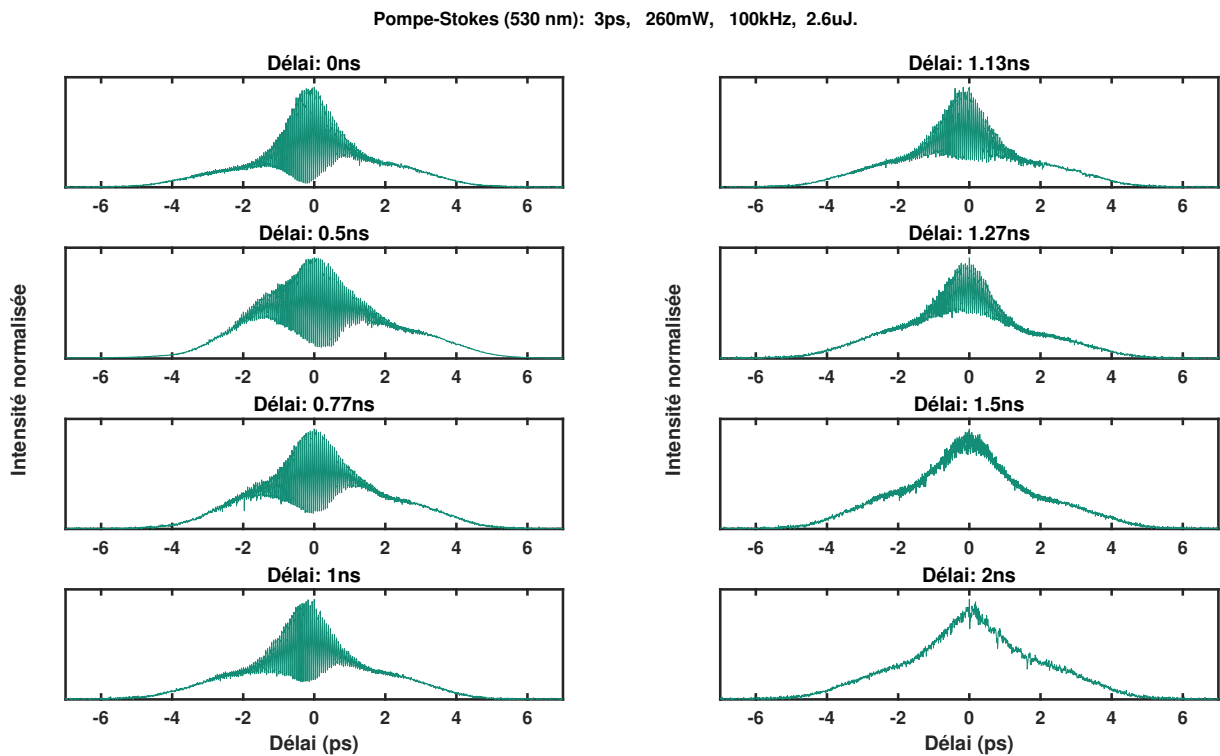
**Figure 5.9** – Configuration expérimentale utilisée pour caractériser la cohérence inter-impulsionnelle des peignes Raman. (Photo) Photographie du set-up expérimental centrée autour du spectromètre qui collecte le signal SFI.

La figure 5.10 présente un exemple de données collectées, pour une impulsion pompe en entrée de fibre de 3 ps, 1,5 μJ, cadencée à 100 kHz et pour un délai entre les deux impulsions de nul. Le spectre de somme de fréquences est présenté sur la figure 5.10 (b) lorsque les deux impulsions sont parfaitement superposées temporellement. Les traces temporelles des raies pompe-pompe, pompe-Stokes et Stokes-Stokes sont représentées sur la figure 5.10 (c-e). La figure 5.10 (a) présente elle la trace Frog complète associée aux trois raies.



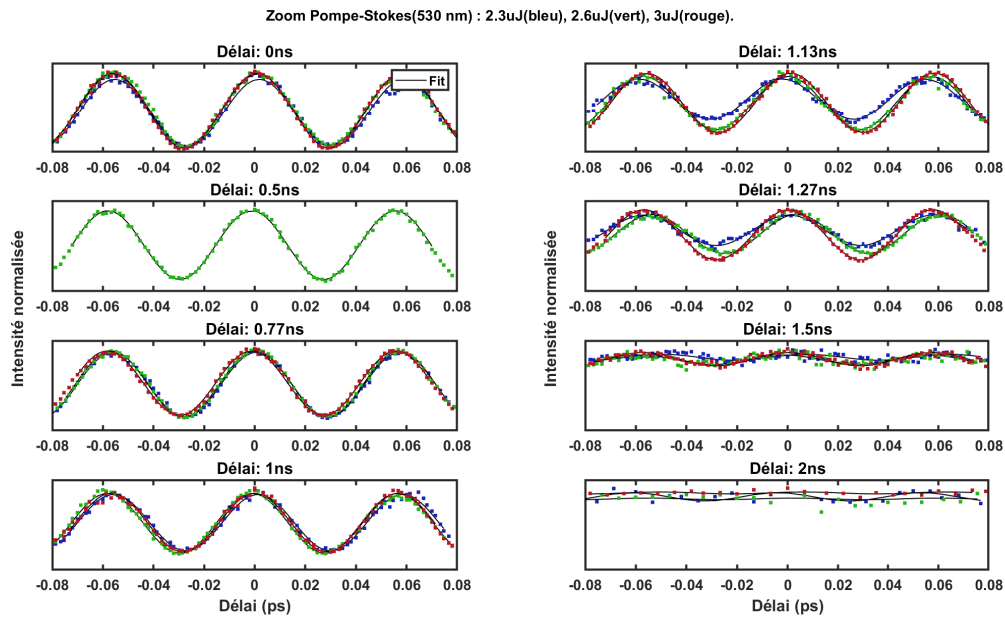
**Figure 5.10** – Exemple de trace temporelle expérimentale obtenue avec la configuration utilisée pour caractériser la cohérence inter-impulsionnelle des peignes Raman. (a) Trace Frog. (b) Spectre à somme de fréquence. (c) Trace temporelle pour la raie pompe-pompe. (d) Trace temporelle pour la raie pompe-Stokes. (e) Trace temporelle pour la raie Stokes-Stokes.

La campagne s'est concentrée sur l'étude de la cohérence de la raie Stokes pour des délais entre les deux impulsions compris entre 0 et 2 ns. L'énergie des impulsions a été limitée pour éviter une structuration temporelle des impulsions rendant inexploitable les traces d'autocorrélation et pour limiter la déplétion de la pompe. Trois campagnes ont été menées à des énergies par impulsion de 2, 3, 2, 6 et 3  $\mu$ J. La figure 5.11 montre les traces d'autocorrélation obtenues en fonction du délai pour la raie à 530 nm, qui correspond à la combinaison de la pompe  $\omega_0$  et de la raie Stokes  $\omega_{-1}$  pour une énergie de 2, 6  $\mu$ J à 3 ps. On observe une réduction du contraste avec le délai jusqu'à une perte complète du contraste vers 2 ns. Cela signifie qu'il n'y a pas de corrélation de phase entre les impulsions Stokes générées par des pulses différents. Le contraste observé pour les délais les plus courts est lui lié au temps de cohérence de la molécule d'hydrogène.



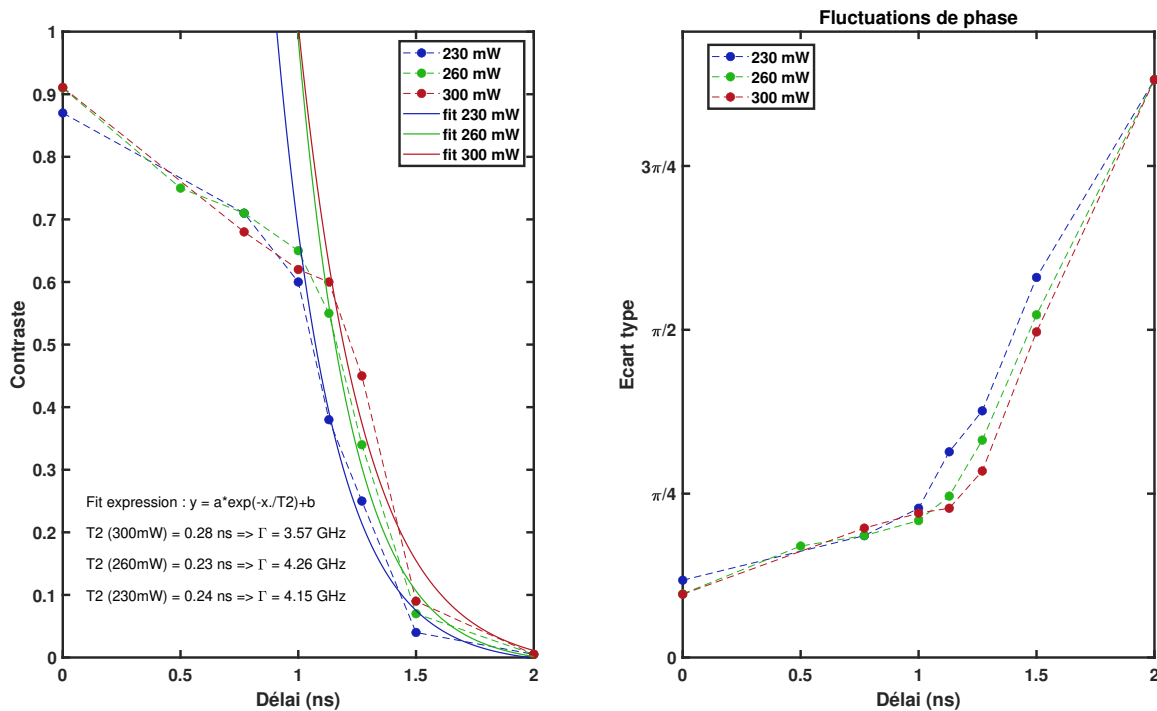
**Figure 5.11** – Traces temporelles expérimentales de l’interféromètre à somme de fréquences pour les raies pompe-Stokes fait avec  $E_L = 2,6 \mu\text{J}$  à  $\tau_L = 3 \text{ ps}$  et pour des délais entre les 2 impulsions compris entre 0 et 2 ns.

La figure 5.12 présente un zoom autour du zéro de délai de la trace d’autocorrélation pour les trois campagnes menées à trois valeurs d’énergie différentes. Un ajustement gaussien modulé par une sinusoïde permet de remonter à la valeur du contraste.



**Figure 5.12** – Zoom sur les traces temporelles expérimentales de l'interféromètre à somme de fréquences centrée autour de 0 pour la raie pompe-Stokes fait avec  $E_L = 2,3 \mu\text{J}$  (bleu),  $E_L = 2,6 \mu\text{J}$  (vert) et  $E_L = 3 \mu\text{J}$  (rouge) à  $\tau_L = 3 \text{ ps}$  et pour des délais entre les 2 impulsions compris entre 0 et 2 ns. (En noir) Ajustement avec une fonction gaussienne modulée par une sinusoïde.

Ces valeurs sont présentées sur la figure 5.13 (a). On remarque une première zone lorsque le délai est inférieur à 1 ns où les valeurs de contraste mesurées sont maximales (supérieures à 0,6) comme attendu. A noter que pour cette zone la première impulsion est suffisamment proche pour influencer la structure temporelle de la deuxième, impliquant qu'il est difficile d'aller plus loin dans l'analyse. Ensuite, une deuxième zone se distingue entre 1 et 2 ns de délai où les valeurs du contraste diminuent fortement. Un ajustement avec une exponentielle décroissante permet d'évaluer la valeur du temps de déphasage collisionnel  $T_2$ . Cette valeur est environ deux fois plus petite ( $T_2$  environ égal à 0,25) que celle calculée numériquement dans le modèle utilisé dans le chapitre 2. On observe aussi que ces valeurs de contraste sont légèrement plus élevées lorsque l'énergie augmente. En effet, avec l'énergie, un plus grand nombre de molécules du milieu deviennent cohérentes, impliquant un meilleur contraste comme cela a été rapporté dans l'article de Raymer [122]. Enfin, une troisième zone est à mentionner où les valeurs de contraste sont nulles lorsque le délai entre les impulsions est supérieur à 2 ns. Ici, la cohérence du milieu Raman est perdue et ne permet plus de moduler les impulsions. Finalement, la figure 5.13 (b) montre la correspondance entre le contraste et les valeurs de l'écart type des fluctuations de phase des impulsions calculées numériquement dans le chapitre 4, allant de moins de  $\pi/4$  pour la zone autour de 1 ns à plus de  $3\pi/4$  après 2 ns.



**Figure 5.13** – (a) Contraste extrait des ajustements pour les énergies  $E_L = 2, 3 \mu\text{J}$ ,  $E_L = 2, 6 \mu\text{J}$  et  $E_L = 3 \mu\text{J}$  en fonction du délai entre les deux impulsions. (b) Valeurs de l'écart type des fluctuations de phase associées aux mesures de contraste (Voir figure 4.10) .

## 5.4 Conclusion

Dans ce chapitre, en accord avec les résultats rapportés par Smithey *et al.* [122] et par Wang *et al.* [123], nous avons démontré que la cohérence inter-impulsionnelle persiste au-delà du temps de déphasage collisionnel. Cependant, nous observons que cette cohérence diminue exponentiellement avec l'augmentation du délai entre les impulsions. Le temps de décroissance est consistant avec le temps de cohérence des molécules du milieu Raman, démontrant ainsi que cette persistance est due à la survie d'un nombre d'états rovibrationnels moléculaires suffisant pour moduler l'impulsion de pompe à la fréquence du Stokes. Nous avons également observé un comportement complexe de la cohérence à partir des mesures spatiales de la visibilité, qui dépendent à la fois de l'énergie des impulsions et du délai entre elles. Ainsi, Pour exploiter la cohérence du milieu Raman et générer des impulsions parfaitement en phase, indispensables à la synthèse d'onde, l'utilisation de lasers à haute cadence est nécessaire. Enfin, les résultats indiquent qu'avec les paramètres actuels de notre laser pompe, un délai entre 1, 2 et 1, 3 ns représente la séparation temporelle maximale permettant de maintenir une cohérence inter-impulsionnelle, nécessitant donc une fréquence de répétition supérieure à 400 MHz.

# 6

## Conclusions et perspectives

Mes travaux de thèse se sont focalisés sur la conception et l'utilisation d'une plateforme capable de générer des peignes de fréquence cohérents en exploitant la diffusion Raman stimulée dans des fibres creuses. L'objectif était d'examiner la cohérence inter-impulsionnelle et intra-impulsionnelle du peigne Raman généré à partir d'un laser ultra-rapide picoseconde et d'une fibre monomode spécialement conçue, ainsi que d'évaluer les potentialités pour faire à terme la synthèse d'onde optique.

Dans ce contexte, le chapitre 1 nous a permis de poser les bases nécessaires à la compréhension du contexte général de cette thèse. Pour cela nous avons d'abord brièvement exposé les divers types de synthèse d'onde avant de nous concentrer plus spécifiquement sur la synthèse d'onde en optique et en particulier sur l'état de l'art permettant la génération de peignes de fréquence. Parmi les différentes techniques, l'approche basée sur la diffusion Raman stimulée en régime transitoire dans les fibres HCPCF a été retenue pour mes travaux de thèse. En effet, cette approche permet de combiner une bonne tenue en puissance (plusieurs dizaines de watt) et une large couverture spectrale Raman allant de l'UV à l'IR moyen ( $> 5$  octaves) tout en utilisant un montage expérimental relativement compact. Ce choix est renforcé par les évolutions de la technologie laser qui permettant d'ajuster simplement la durée d'impulsion, la longueur d'onde d'émission, l'énergie et la cadence, paramètres clés pour la génération des peignes Raman.



Puis, durant le chapitre 2 une étude approfondie du phénomène de la diffusion Raman stimulée en régime impulsionnel a été menée. Pour cela nous avons mis en évidence, par une résolution spatio-temporelle modale du champ Stokes, l'existence de trois régimes distincts (régime spontané, transitoire et permanent) qui sont délimités principalement par la valeur du gain Raman. Nous nous sommes ensuite focalisés sur le régime transitoire qui présente l'avantage d'amplifier le champ Stokes à partir du bruit du milieu en un unique paquet d'onde temporel. Une étude a permis d'identifier une zone d'intérêt pour la suite présentant un poids du premier mode STM par rapport aux suivants supérieur à 30 dB pour des impulsions d'énergie supérieures à  $0,5 \mu\text{J}$  et des durées d'impulsion inférieures à quelques dizaines de ns. L'aspect spatial pourra être optimisé par l'utilisation d'une fibre monomode, ces deux conditions étant nécessaire pour garantir la cohérence de notre champ Stokes. Pour approfondir notre compréhension sur la dynamique du champ Stokes à travers le milieu Raman lorsque l'interaction lumière-gaz devient suffisamment forte, nous avons alors développé un code numérique pour résoudre les équations de Maxwell-Bloch régissant le système Raman. À travers ces simulations, nous avons évalué l'impact de la déplétion du laser sur la structure temporelle du champ Stokes pour des impulsions pompe de  $3 - 10 \text{ ps}$  et de  $1 - 10 \mu\text{J}$ . Enfin, ce programme a été étendu au cas multi-impulsionnel. Il est à noter que notre modèle numérique pourra être amélioré en prenant en compte les fluctuations de phase du bruit du milieu ainsi qu'en étendant son utilisation avec la présence de la raie anti-Stokes induit par le bruit quantique.

Dans le chapitre 3 nous nous sommes attardés sur le développement et l'évolution des fibres optiques à cœur creux, en mettant un accent particulier sur les applications d'optiques non-linéaires. Ainsi après un rappel historique et une discussion sur les mécanismes de guidage par couplage inhibé, le chapitre a présenté la conception d'un nouveau type de fibre nommée fibre creuse hybride qui correspond à la combinaison d'une fibre creuse à maille tubulaire et à maille Kagomé. Cette fibre se distingue de l'état de l'art par ses faibles pertes linéiques (autour de quelques dB/km à 1030 nm) mais surtout par un guidage unimodal jusque là non atteignable (MPI jusqu'à  $-47 \text{ dB}$ ), renforçant la cohérence spatiale des peignes de fréquence Raman qui sera généré. Cette avancée, inspirée par le concept de gaine hybride, représente une étape significative dans le domaine des fibres optiques à cœur creux, ouvrant de nouvelles perspectives pour ces études non-linéaires mais aussi pour d'autres applications nécessitant une qualité de mode optimale comme le domaine des télécommunications optiques.

Puis, au cours du chapitre 4 nous avons examiné de manière précise la cohérence des lignes du peigne Raman générées par diffusion Raman stimulée dans la fibre creuse unimodale précé-

demment citée, en se concentrant sur le régime transitoire. L'étude a combiné aussi bien des approches expérimentales que numériques pour évaluer la cohérence intra-impulsionnelle des raies Raman. Un dispositif expérimental spécifique a ainsi été réalisé basé sur un interféromètre de type Mach-Zehnder. Les résultats ont alors montré que malgré l'impact des phénomènes parasites tels que l'effet Kerr et la déplétion de la pompe, la cohérence mutuelle des raies Stokes rotationnelles reste remarquablement élevée, avec des valeurs de contraste proches de l'unité et ce pour différentes combinaisons de raies Raman. Ces mesures ont été faites pour des durées d'impulsion pompe comprises entre 3 ps et 10 ps et des énergies comprises entre 2  $\mu$ J et 5  $\mu$ J. Cette cohérence a également été confirmée par un modèle théorique développé spécifiquement pour cette étude. De plus, l'impact de la déplétion de la pompe sur l'enveloppe temporelle des impulsions a été examinée, et les résultats expérimentaux ont été tous trouvés en bon accord avec les prédictions du modèle numérique pour des impulsions inférieures à 6  $\mu$ J. Cette étude a ainsi permis de fournir des connaissances précieuses sur la cohérence des peignes Raman générés par DRS pour la suite de mes travaux et a fait l'objet de 3 communications internationales ainsi que de 2 articles en cours de rédaction.

Enfin avec le chapitre 5 nous avons analysé la cohérence inter-impulsionnelle au sein du peigne Raman généré dans la fibre creuse. À travers un second banc expérimental inspiré du chapitre précédent, nous avons conduit deux expériences distinctes : l'une spatiale, visant à examiner la visibilité des franges d'interférence des raies pompe, Stokes et anti-Stokes, et l'autre temporelle, exploitant un interféromètre de Mach-Zehnder avec des lignes à retard. Au cours de cette étude nous avons constaté que les impulsions demeurent cohérentes entre elles dans une plage limitée de délais (entre 0 ns et 2 ns), cette cohérence diminuant rapidement avec l'augmentation du délai entre les impulsions. Cette décroissance de la cohérence inter-impulsionnelle est principalement attribuée au temps de cohérence des molécules du milieu Raman (environs de 2 ns dans le cas du gaz de dihydrogène). De plus, l'énergie des impulsions et le délai entre elles ont été identifiés comme des facteurs influençant la visibilité des franges d'interférence et par conséquent, la qualité de la cohérence. Nos observations révèlent un comportement complexe de la cohérence, en particulier lorsque les impulsions sont séparées par des délais proches ou inférieurs au temps de cohérence moléculaire. Cette complexité a été mise en évidence par les résultats numériques et les mesures expérimentales, où les déformations de la structure temporelles des impulsions ont rendu difficile l'analyse de la cohérence inter-impulsionnelle. De ces résultats, nous avons conclu que pour réaliser une synthèse d'onde efficace basée sur la DRS dans le régime transitoire, il est impératif de garantir une cohérence inter-impulsionnelle optimale. Cette étude souligne l'importance cruciale de contrôler soigneusement l'énergie des impulsions et les délais entre elles. Elle suggère également

que l'utilisation de lasers à haute cadence ( $> 400$  MHz) pourrait être une solution prometteuse pour exploiter pleinement la cohérence du milieu Raman et générer des impulsions parfaitement en phase, conditions nécessaires pour pouvoir moduler à la carte les impulsions à l'aide d'outils comme des modulateur acousto-optique et ouvrant ainsi la voie à des avancées significatives pour la synthèse d'onde en optique.

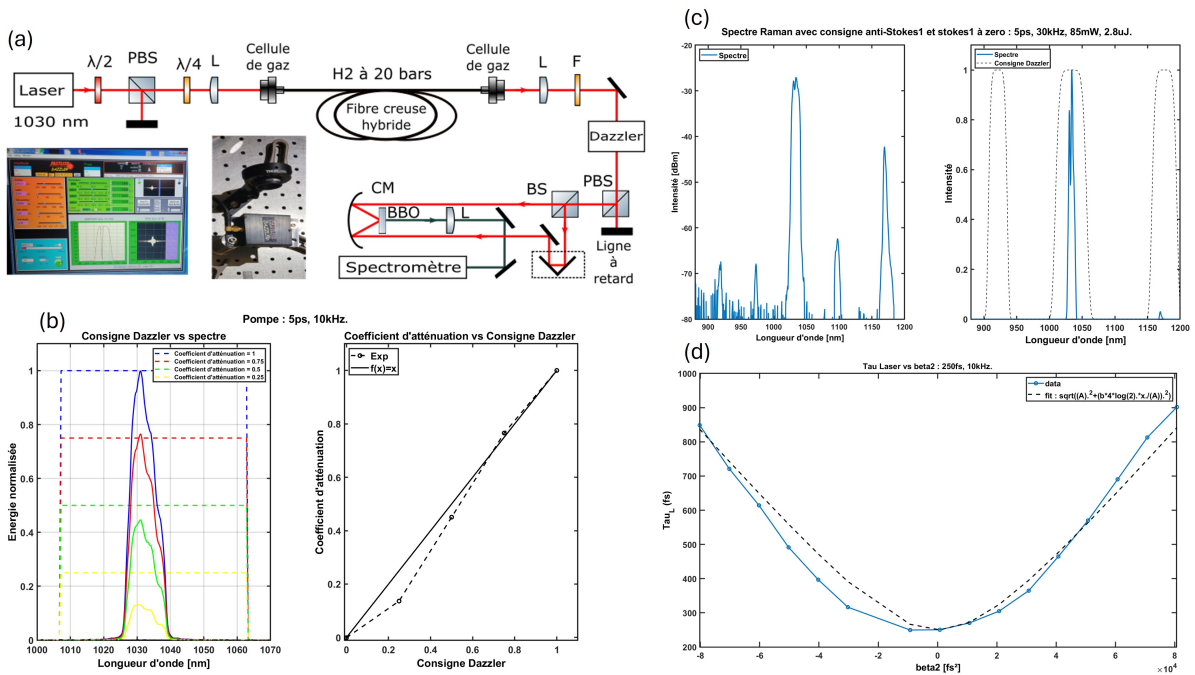
Après ces travaux de thèse, plusieurs perspectives sont à envisager dont certaines directions scientifiques sont ici mentionnées.

### **Amélioration du set-up expérimental et du programme numérique :**

Directement lié à ce qui a déjà été réalisé, le programme numérique nécessite quelques améliorations, telles que discutées dans le chapitre 2, notamment en y intégrant des fluctuations de phase du bruit du milieu et la prise en compte des autres raies Raman avec le formalisme approprié. De même, le dispositif expérimental peut être optimisé pour détecter les structures temporelles des raies Raman ainsi que leur cohérence, en étendant la plage spectrale à d'autres longueurs d'onde, notamment pour étudier les bandes vibrationnelles qui sont beaucoup plus larges spectralement.

### **Synthèse d'onde en utilisant un modulateur acousto-optique et un laser haut cadence :**

Nous avons aussi constaté dans le chapitre 5 la nécessité d'utiliser un laser à haute cadence ( $> 400$  MHz) pour tirer parti de la cohérence du milieu et générer des impulsions en phase (cohérence interne et inter-raies). Un tel dispositif devra donc être mise en place et étudié. Ensuite, il conviendra d'incorporer un dispositif permettant de contrôler les amplitudes et les phases des raies Raman, tels qu'un modulateur acousto-optique. En effet pour rappel, il est crucial de générer un peigne Raman suffisamment étendu pour obtenir les formes d'onde désirées mais aussi de venir contrôler leur phase et leur amplitude (adapter la fibre à l'utilisation, choix du gaz), idéalement sur une plage supérieure à 3 octaves. Dans cette optique, des tests préliminaires ont déjà été effectués et nous avons réussi à démontrer avec succès le contrôle des amplitudes des raies Raman en utilisant un modulateur acousto-optique (Dazzler) (voir figure 6.1). Par la suite, l'ajout d'un laser à haute cadence permettra de générer des raies Raman en phase et le contrôle des phases des raies Raman avec le modulateur acousto-optique nous permettra de vérifier le bon fonctionnement du synthétiseur d'ondes Raman.



**Figure 6.1** – (a) Montage expérimental intégrant un modulateur acousto-optique (Dazzler) utilisé pour moduler en amplitude et/ou en phase les lignes du peigne Raman. (b) Modulation de la puissance de la pompe à l'aide du Dazzler. (c) Atténuation complète du premier Stokes et du premier anti-Stokes. (d) Chirp ajouté à la pompe à l'aide du Dazzler.

### Exploration du Raman avec une source continu :

Dans un autre registre, des travaux antérieurs menés dans notre équipe [125] ont pu mettre en évidence les remarquables propriétés de la diffusion Raman pour faire du piégeage optique et/ou potentiellement du refroidissement moléculaire. Ce système innovant pour le piégeage et la diffusion Raman stimulée de molécules se base sur la structuration optique de l'hydrogène moléculaire dans une fibre à cœur creux. Le système crée alors un réseau de piégeage grâce à une saturation Raman spatialement modulée, où les molécules Raman-actives sont fortement localisées dans des sections de taille nanométrique. Seules ces molécules piégées participent à la diffusion Raman stimulée, générant un rayonnement laser continu à haute puissance dans le régime de Lamb-Dicke, avec un spectre d'émission sub-Doppler. De nombreux travaux expérimentaux et théoriques restent encore à explorer permettant d'ouvrir la voie à de nouvelles avancées dans la manipulation de la lumière et des molécules pour les technologies quantiques.

### **Paires de photon avec conversion de fréquence à la carte :**

Enfin, en optique quantique, les peignes Raman peuvent être une voie pour réaliser la conversion de fréquence tout en préservant la corrélation quantique [42] avec pour l'avantage de générer des paires de photons intriqués sur une large gamme spectrale et facilement ajustable. Notre plateforme optique basée sur la DRS dans des fibres creuses remplies d'hydrogène serait un outil idéal. Des travaux dans notre groupe sont d'ailleurs en cours pour montrer l'intrication des photons stokes et anti-stokes générés à partir d'un peigne Raman.



# Annexes

## Sommaire

---

A.1	Résolution numérique des équations différentielles de Maxwell-Bloch avec RK4 . . . . .	<b>150</b>
A.2	Codes numériques . . . . .	<b>155</b>
A.2.1	Code utilisé pour obtenir les STM . . . . .	155
A.2.2	Code principale utilisé pour résoudre Maxwell-Bloch . . . . .	157
A.2.3	Code numérique utilisé pour la prise et l'analyse des données expérimentales . . . . .	160

---

## A.1 Résolution numérique des équations différentielles de Maxwell-Block avec RK4

Pour un système d'équations différentielles d'ordre 1  $\vec{y}'(x) = \vec{f}(x, \vec{y})$ , on utilise la méthode itérative de Runge-Kutta d'ordre quatre (RK4) pour résoudre  $\vec{y}_{n+1}$  à chaque pas. Soit :

$$\begin{cases} \vec{k}_1 = h \vec{f}(x_n, \vec{y}_n), \\ \vec{k}_2 = h \vec{f}(x_{n+\frac{1}{2}}, \vec{y}_n + \frac{\vec{k}_1}{2}), \\ \vec{k}_3 = h \vec{f}(x_{n+\frac{1}{2}}, \vec{y}_n + \frac{\vec{k}_2}{2}), \\ \vec{k}_4 = h \vec{f}(x_{n+1}, \vec{y}_n + \vec{k}_3). \end{cases} \quad (\text{A.1})$$

avec

$$\vec{y}_{n+1} = \vec{Y}_n + \frac{1}{6}(\vec{k}_1 + 2\vec{k}_2 + 2\vec{k}_3 + \vec{k}_4) + O(h^5) \quad (\text{A.2a})$$

Pour un système à deux équations, l'algorithme s'écrit alors :

$$\begin{cases} k_1 = hf_1(x_n, y_{1,n}, y_{2,n}), \\ l_1 = hf_2(x_n, y_{1,n}, y_{2,n}), \\ k_2 = hf_1(x_n + \frac{h}{2}, y_{1,n} + \frac{k_1}{2}, y_{2,n} + \frac{l_1}{2}), \\ l_2 = hf_2(x_n + \frac{h}{2}, y_{1,n} + \frac{k_1}{2}, y_{2,n} + \frac{l_1}{2}), \\ k_3 = hf_1(x_n + \frac{h}{2}, y_{1,n} + \frac{k_2}{2}, y_{2,n} + \frac{l_2}{2}), \\ l_3 = hf_2(x_n + \frac{h}{2}, y_{1,n} + \frac{k_2}{2}, y_{2,n} + \frac{l_2}{2}), \\ k_4 = hf_1(x_n + h, y_{1,n} + k_3, y_{2,n} + l_3), \\ l_4 = hf_2(x_n + h, y_{1,n} + k_3, y_{2,n} + l_3). \end{cases} \quad (\text{A.3})$$

et

$$y_{1,n+1} = y_{1,n} + \frac{1}{6}(k_1 + 2(k_2 + k_3) + k_4) \quad (\text{A.4a})$$

$$y_{2,n+1} = y_{2,n} + \frac{1}{6}(l_1 + 2(l_2 + l_3) + l_4) \quad (\text{A.4b})$$

Si on applique la méthode RK4 à notre système d'équations 2.7, on obtient pour  $E_P$  et  $E_S$  à l'étape  $i$  :

$$\left\{ \begin{array}{l} k_{p1} = hz(-ik_2(\frac{\omega_L\nu_L}{\omega_S\nu_S})E_{S,i}Q_i), \\ k_{s1} = hz(-ik_2E_{L,i}Q_i^*), \\ k_{p2} = hz(-ik_2(\frac{\omega_L\nu_L}{\omega_S\nu_S})Q_i(E_{S,i} + \frac{k_{p1}}{2})), \\ k_{s2} = hz(-ik_2Q_i^*(E_{L,i} + \frac{k_{s1}}{2})), \\ k_{p3} = hz(-ik_2(\frac{\omega_L\nu_L}{\omega_S\nu_S})Q_i(E_{S,i} + \frac{k_{p2}}{2})), \\ k_{s3} = hz(-ik_2Q_i^*(E_{L,i} + \frac{k_{s2}}{2})), \\ k_{p4} = hz(-ik_2(\frac{\omega_L\nu_L}{\omega_S\nu_S})Q_i(E_{S,i} + k_{s3})), \\ k_{s4} = hz(-ik_2Q_i^*(E_{L,i} + k_{s3})). \end{array} \right. \quad (\text{A.5})$$

et

$$E_{P,i+1} = E_{P,i} + \frac{1}{6}(k_{p1} + 2(k_{p2} + k_{p3}) + k_{p4}) \quad (\text{A.6a})$$

$$E_{S,i+1} = E_{S,i} + \frac{1}{6}(k_{s1} + 2(k_{s2} + k_{s3}) + k_{s4}) \quad (\text{A.6b})$$

De même pour  $Q$  et  $n$  à l'étape  $i$ , on a :



$$\left\{ \begin{array}{l} k_{q1} = h\tau \left( -\frac{Q_i}{T_2} + ik_1^* E_{L,i} E_{S,i}^* n_i \right), \\ k_{n1} = h\tau \left( -\frac{(n_i - n_0)}{T_1} + 4\text{Imag}(k_1^* E_{L,i} E_{S,i}^* Q_i^*) \right), \\ k_{q2} = h\tau \left( -\frac{Q_i + \frac{k_{q1}}{2}}{T_2} + ik_1^* E_{L,i} E_{S,i}^* \left( n_i + \frac{k_{n1}}{2} \right) \right), \\ k_{n2} = h\tau \left( -\frac{(n_i + \frac{k_{n1}}{2} - n_0)}{T_1} + 4\text{Imag}(k_1^* E_{L,i} E_{S,i}^* (Q_i^* + \frac{k_{q1}}{2})) \right), \\ k_{q3} = h\tau \left( -\frac{Q_i + \frac{k_{q2}}{2}}{T_2} + ik_1^* E_{L,i} E_{S,i}^* \left( n_i + \frac{k_{n2}}{2} \right) \right), \\ k_{n3} = h\tau \left( -\frac{(n_i + \frac{k_{n2}}{2} - n_0)}{T_1} + 4\text{Imag}(k_1^* E_{L,i} E_{S,i}^* (Q_i^* + \frac{k_{q2}}{2})) \right), \\ k_{q4} = h\tau \left( -\frac{Q_i + k_{q3}}{T_2} + ik_1^* E_{L,i} E_{S,i}^* (n_i + k_{n3}) \right), \\ k_{n4} = h\tau \left( -\frac{(n_i + \frac{k_{n2}}{2} - n_0)}{T_1} + 4\text{Imag}(k_1^* E_{L,i} E_{S,i}^* (Q_i^* + k_{q3})) \right). \end{array} \right. \quad (\text{A.7})$$

et

$$Q_{i+1} = Q_i + \frac{1}{6}(k_{q1} + 2(k_{q2} + k_{q3}) + k_{q4}) \quad (\text{A.8a})$$

$$n_{i+1} = n_i + \frac{1}{6}(k_{n1} + 2(k_{n2} + k_{n3}) + k_{n4}) \quad (\text{A.8b})$$

Ci-dessous le script Matlab utilisé pour résoudre ce système d'équation :

```

1 function [M_Ep,M_Es,M_rho,M_n] = resol_Maxwell_Bloch_rk4(tau,htau,z,hz,
2   Ep_ini, Es_ini,rho_ini,n_ini,n0,T1,T2,B1,B2,k1)
3 % Resolution de Maxwell Bloch avec la methode rk4
4 %=====
5 %Initialisation des equations Maxwell Bloch
6 M_Ep = zeros( length(z),length(tau));
7 M_Ep(1,:) = Ep_ini;
8 M_Es = zeros( length(z),length(tau) );
9 M_Es(1,:) = Es_ini;
10 M_rho = zeros(length(z),length(tau) );
11 M_rho(:, :) = rho_ini;
12 M_n = zeros(length(z),length(tau) );
13 M_n(:, :) = n_ini;
14
```

```

15 tic
16 for i= 1:length(tau)-1
17
18     kr1 = htau*(1i*conj(k1)*M_Ep(1,i)*conj(M_Es(1,i))*M_n(1,i) - (M_rho
19         (1,i))/T2) ;
20     kn1 = htau*(4*imag(conj(k1)*M_Ep(1,i)*conj(M_Es(1,i))*conj(M_rho(1,i)
21         ))) -(M_n(1,i)-n0)./T1) ;
22
23     kr2 = htau*( 1i*conj(k1)*M_Ep(1,i)*conj(M_Es(1,i))*(M_n(1,i) + kn1
24         /2) - (M_rho(1,i)+kr1/2.)/T2 );
25     kn2 = htau*(4*imag(conj(k1)*M_Ep(1,i)*conj(M_Es(1,i))*conj(M_rho
26         (1,i)+kr1/2)) -(M_n(1,i)+(kn1/2) -n0)./T1) ;
27
28     kr3 = htau*( 1i*conj(k1)*M_Ep(1,i)*conj(M_Es(1,i))*(M_n(1,i) + kn2
29         /2) - (M_rho(1,i)+kr2/2.)/T2 );
30     kn3 = htau*(4*imag(conj(k1)*M_Ep(1,i)*conj(M_Es(1,i))*conj(M_rho(1,
31         i)+kr2/2)) -(M_n(1,i)+(kn2/2) -n0)./T1) ;
32
33     kr4 = htau*( 1i*conj(k1)*M_Ep(1,i)*conj(M_Es(1,i))*(M_n(1,i) + kn3)
34         - (M_rho(1,i)+kr3)/T2 );
35     kn4 = htau*(4*imag(conj(k1)*M_Ep(1,i)*conj(M_Es(1,i))*conj(M_rho(1,i)
36         +kr3)) -(M_n(1,i)+(kn3) -n0)./T1) ;
37
38     M_rho(1,i+1) = M_rho(1,i) + (kr1 + 2*(kr2 + kr3) + kr4)/6. ;
39     M_n(1,i+1) = M_n(1,i) + (kn1 + 2*(kn2 + kn3) + kn4)./6. ;
40 end
41
42 %=====
43 %Resolution des equations Maxwell Bloch
44 h=waitbar(0,'Please wait...');
45
46 for k = 2:length(z)
47
48     %Resolution des equations de Maxwell
49     kp1 = hz*( B1*M_rho(k-1,:).*M_Es(k-1,:) );
50     ks1 = hz*( B2*conj(M_rho(k-1,:)).*M_Ep(k-1,:) );
51
52     kp2 = hz*( B1*M_rho(k-1,:).(M_Es(k-1,.)+ ks1/2) );
53     ks2 = hz*( B2*conj(M_rho(k-1,:)).*(M_Ep(k-1,.) +kp1/2) );
54
55     kp3 = hz*( B1*M_rho(k-1,:).(M_Es(k-1,.)+ ks2/2) );
56     ks3 = hz*( B2*conj(M_rho(k-1,:)).*(M_Ep(k-1,.) +kp2/2) );

```

```

50   kp4 = hz*( B1*M_rho(k-1,:).*(M_Es(k-1,)+ ks3) );
51   ks4 = hz*( B2*conj(M_rho(k-1,:)).*(M_Ep(k-1,)+kp3) );
52
53   M_Ep(k,:) = M_Ep(k-1,:) + (kp1 + 2*(kp2 + kp3) + kp4)/6. ;
54   M_Es(k,:) = M_Es(k-1,:) + (ks1 + 2*(ks2 + ks3) + ks4)./6. ;
55
56   %Resolution des equations de Bloch
57   for i= 1:length(tau)-1
58
59       kr1 = htau.*(1i*conj(k1)*M_Ep(k,i)*conj(M_Es(k,i))*M_n(k,i) - (
M_rho(k,i))/T2) ;
60       kn1 = htau.*(4*imag(conj(k1)*M_Ep(k,i)*conj(M_Es(k,i))*conj(
M_rho(k,i))) -(M_n(k,i)-n0)./T1) ;
61
62       kr2 = htau.*( 1i*conj(k1)*M_Ep(k,i)*conj(M_Es(k,i))*(M_n(k,i) +
kn1/2) - (M_rho(k,i)+kr1/2.)/T2 ) ;
63       kn2 = htau.*(4*imag(conj(k1)*M_Ep(k,i)*conj(M_Es(k,i))*conj(
M_rho(k,i)+kr1/2)) -(M_n(k,i)+(kn1/2) -n0)./T1) ;
64
65       kr3 = htau.*( 1i*conj(k1)*M_Ep(k,i)*conj(M_Es(k,i))*(M_n(k,i) +
kn2/2) - (M_rho(k,i)+kr2/2.)/T2 ) ;
66       kn3 = htau.*(4*imag(conj(k1)*M_Ep(k,i)*conj(M_Es(k,i))*conj(
M_rho(k,i)+kr2/2)) -(M_n(k,i)+(kn2/2) -n0)./T1) ;
67
68       kr4 = htau.*( 1i*conj(k1)*M_Ep(k,i)*conj(M_Es(k,i))*(M_n(k,i) +
kn3) - (M_rho(k,i)+kr3)/T2 ) ;
69       kn4 = htau.*(4*imag(conj(k1)*M_Ep(k,i)*conj(M_Es(k,i))*conj(
M_rho(k,i)+kr3)) -(M_n(k,i)+(kn3) -n0)./T1) ;
70
71       M_rho(k,i+1) = M_rho(k,i) + (kr1 + 2*(kr2 + kr3) + kr4)/6. ;
72       M_n(k,i+1) = M_n(k,i) + (kn1 + 2*(kn2 + kn3) + kn4)./6. ;
73   end
74   waitbar(k/length(z))
75 end
76 close(h)
77
78 end

```

## A.2 Codes numériques

### A.2.1 Code utilisé pour obtenir les STM

Ci-dessous le script Matlab utilisé pour résoudre l'équation intégrale aux valeurs propres 2.13 servant à calculer les valeurs propres  $c_k^0$  et les fonctions propres  $\psi_k(\tau)$  :

```

1 tic
2 %=====
3 %===The time correlation function Gtau(tau a, tau b) calculation
   =====
4 %-17/02/202
5 %@Jim Ignacchiti
6 %version : optimisation du temps de calcul
7 %=====
8 g_tau_active =1; % 0 si on le prends pas en compte sinon une autre la
   valeur
9 nbpt = 400;
10 tau_L = 3e-9; %duree d'impulsion du laser en s
11 E = 2.5e-6;%:0.2e-6:1e-6; %J
12 L =3 ; %3 %m
13 A_eff = 7.75e-10; %m2
14 Pressure = 20 ;%20; % en bars
15 [gamma,gr] = Gamma_and_Gain_vs_Pressure_for_H2("rot",Pressure); %1 for
   vib and 2 for rot
16 gamma = gamma*1e6; % en hz
17 gr = gr*1e-2;% en m/W
18 %Gnet = sqrt(4*log(2)/pi)*gr*L*I0;
19 tmax= 8*tau_L;
20 tmin= 0;
21 pas_t = (tmax-tmin)/(nbpt-1);
22 t = tmin:pas_t:tmax;
23 G_tau = zeros(length(t),length(t)); %fonction de correlation temporelle
24 f_tau = zeros(length(t),length(t));
25 g_tau = zeros(length(t),length(t));
26 I = zeros(1,length(t));
27 g = zeros(1,length(t));
28 q_f_tau = zeros(1,length(t));
29 q_tau1_tau2 = zeros(length(t),length(t));
30
31 I0 = E/(tau_L*A_eff); % W/m2
32 I(:) = I0.*(1/(sqrt(pi/(4*log(2))))).*exp(-4*log(2).*((t(:)-0.5*tmax)./
   tau_L).^2) ; %
33 g(:) = gr*I(:);

```

```

34
35 for i = 2:length(t)
36     q_f_tau(i) = 2*gamma*L*pas_t*trapz(g(1:i)); %q(tau,0);
37 end
38
39 for i = 1:length(t)
40     for j = i:length(t)
41         f_tau(i,j)= exp(-gamma*(t(i)+t(j))).*(sqrt( q_f_tau(i) )*besseli
42         (1, sqrt(q_f_tau(i)) ).*besseli(0, sqrt(q_f_tau(j) )) - sqrt(q_f_tau(
43         j) )*besseli(1, sqrt(q_f_tau(j)) ).*besseli(0, sqrt(q_f_tau(i)) ));
44         f_tau(j,i)= -f_tau(i,j);
45         q_tau1_tau2(i,j) = -2*gamma*L*pas_t*trapz(g(i:j));
46         q_tau1_tau2(j,i)=-q_tau1_tau2(i,j);
47     end
48 end
49
50 if(g_tau_active ~= 0)
51     for i = 1:length(t)
52         for j = i:length(t)
53             iprime = i;
54             if (iprime == 1 )
55                 g_tau(i,j) = 0;
56             else
57                 g_tau(i,j) = 2*gamma*trapz(t(1):pas_t:t(iprime),exp(2*
58                 gamma.*t(1:iprime)-gamma*(t(i)+t(j))).*(sqrt( q_tau1_tau2(i,1:iprime)
59                 ) .*besseli(1, sqrt(q_tau1_tau2(i,1:iprime) ) ).*besseli(0, sqrt(
60                 q_tau1_tau2(j,1:iprime) )) - sqrt(q_tau1_tau2(j,1:iprime) ).*besseli
61                 (1, sqrt(q_tau1_tau2(j,1:iprime) ) ).*besseli(0, sqrt(q_tau1_tau2(i
62                 ,1:iprime) ) ))          ) ;
63                 g_tau(j,i) = -g_tau(i,j);
64             end
65         end
66     end
67 end
68
69 for i = 1:length(t)
70     for j = i:length(t)
71         if(i~=j)
72             G_tau(i,j) =gamma*sqrt(g(i))*sqrt(g(j))*(( f_tau(i,j)+ g_tau
73             (i,j) )./q_tau1_tau2(i,j));
74             G_tau(j,i) = G_tau(i,j);
75         end
76     end
77 end

```

```

69 end
70
71 for i = 1:length(t)
72     if(i == 1)
73         G_tau(i,i) = (G_tau(i+1,i)+G_tau(i,i+1))/2 ;
74     elseif(i == nbpt)
75         G_tau(i,i) = (G_tau(i-1,i)+G_tau(i,i-1))/2 ;
76     else
77         G_tau(i,i) = (G_tau(i-1,i)+G_tau(i+1,i)+G_tau(i,i-1)+G_tau(i,i
+1))/4 ;
78     end
79 end
80
81 eigM(:, :) = G_tau(:, :);
82 [eF, eV] = eig(eigM);

```

## A.2.2 Code principale utilisé pour résoudre Maxwell-Bloch

Ci-dessous le script Matlab principal utilisé pour résoudre les équations de Maxwell-Bloch 2.7 :

```

1 %=====
2 %==Population and coherence calculation for SRS for experimental data
3 %-19/09/2022
4 %Resolution des equations differentielles avec rk4 basee sur les
   equations
5 %de Raymer avec ajout de depopulation (T1) et de la coherence (T2),
   systeme
6 %a deux niveaux pour le Raman
7 %@Jim Ignacchiti
8 %=====
9 coef_gr = 3.2 ; %coef deduit des data experimentaux
10 %=====
11 %delai entre le pulse 1 et 2
12 delay = 1e-9; %delay en s entre le 1er et 2 eme pulse
13 %=====
14 %=====
15 %constantes
16 c = 3e8; %m/s
17 hbar = 1.05457182e-34; %m2kg/s
18 %=====
19 %Milieu Raman : gaz de H2
20 A_eff = 7.75e-10; %m2 % aire effective de la fibre
21 P_bars = 20 ; % pression en bars
22 rho_Hydro = 0.0827 ; %kg/m3 a 1 bars et a 20C

```

```

23 mua_Hydro = 2*1.66054e-27 ;% masse atomique de H2 en kg
24 N = (rho_Hydro/mua_Hydro)*P_bars; %densite de particules en m-3 a P_bars
    et a 20C
25 [gamma,gr_th] = Gamma_and_Gain_vs_Pressure_for_H2("rot",P_bars); % P en
    bars avec gamma en MHz et gr en cm/W
26 gamma = gamma*1e6; % en hz
27 gr_th = gr_th*1e-2;% gain raman en m/W ou m/j.s-1
28 gr = gr_th*coef_gr;
29 T2 = 1/gamma ;%temps de decoherence
30 T1 = 4.4e-7; % 1/s temps de depopulation
31 n0 = -1; %etat initial sans perturbation entre -1 et 1
32 %=====
33 %Pump and Stokes
34 lambda_p = 1030e-9; %m
35 np =1.002506656847473; %indice optique pompe 1030 LP01 =
    1.002506656847473
36 ns =1.002474704917719; %indice optique stokes 1100 LP01 =
    1.002474704917719
37 v_p = c/np; %group velocity = c/ng(omega);
38 f_p = c/lambda_p ; %
39 omega_p= 2*pi*f_p ; %
40 lambda_s = 1100e-9; % m
41 v_s = c/ns; %group velocity = c/ng(omega);
42 f_s = c/lambda_s ; %
43 omega_s= 2*pi*f_s ; %
44 %=====
45 %k1 et k2
46 phi_k1 = 0;
47 k1_t= sqrt( (gr*gamma*(c)^3)/(8*pi*pi*N*hbar*omega_s*v_s)) ;
48 k1 = k1_t*exp(1i*phi_k1);
49 c_k2 = (2*pi*N*hbar*omega_s*v_s)/(c*c) ;
50 k2 = c_k2*conj(k1);
51 B1 =0.0 -1*1i*k2*(omega_p*v_p)/(omega_s*v_s) ; % -ik2*(wlv1/wsvs) dans
    Ep'
52 B2 =0.0 -1*1i*k2 ; % -ik2 dans Es'
53 %Laser
54 tau_L = 3e-12; %duree d'impulsion du laser en s
55 %=====
56 %Temps local de l'impulsion
57 htau = 10e-15;
58 tau=-4*tau_L:htau:4*tau_L;
59 %=====
60 %Fibre

```

```

61 L = 3; % taille de la fibre en m
62 hz = L*0.001;
63 z=0:hz:L;
64 %=====
65 %Pulse gaussien
66 f_rep = 250e3 ; % frequence du laser
67 I_gaussienne = @(t ,tau_L) sqrt(4*log(2))/(tau_L*sqrt(pi)).*exp(-4*log
    (2).*((t)./tau_L).^2);
68 I_sech2 = @(t ,tau_L) sech(1.763.*(t)./tau_L).^2;
69 f_sech2 = trapz(tau, I_sech2(tau ,tau_L));
70 %=====
71 %intensite du pulse
72 Enp0 = 10e-6; %energie du pulse J = kg.m2
73 phi_p = 0;
74 Ip0 = 2*pi*Enp0/(c*A_eff);
75 Ens_1 = 0.5*hbar *omega_s;% energie d'un demi-photon stokes qui
    provient du vide
76 phi_s = 0;
77 Is0 = 2*pi*Ens_1/(c*A_eff);
78 P_moy = Enp0*f_rep;
79 %=====
80 %Initialisation
81 I_shape = "gauss" ; %gauss ou sech2
82 if(I_shape == "gauss" )
83     Ep_ini = sqrt( Ip0*I_gaussienne(tau,tau_L) ).*exp(1i*phi_p);%champs
    initial pompe
84     Es_ini= sqrt( Is0*I_gaussienne(tau,tau_L) ).*exp(1i*phi_s);%champs
    initial stokes
85 end
86 if(I_shape == "sech2" )
87     Ep_ini = sqrt(Ip0.*(1/(f_sech2 )).*I_sech2(tau ,tau_L)).*exp(1i*
    phi_p) ;
88     Es_ini = sqrt(Is0.*(1/(f_sech2 )).*I_sech2(tau ,tau_L)).*exp(1i*
    phi_s) ;
89 end
90
91 rand_amp_rho = 0.0; %rand(length(z),1)./100;
92 rand_phi_rho = 0; %rand(length(z),1)*2*pi;
93 rho_ini = zeros( length(z),length(tau)); %Coherence initial
94 %rho_ini = rand_amp_rho.*exp(1i*rand_phi_rho );
95 rho_ini(:,1) = rand_amp_rho.*exp(1i*rand_phi_rho );
96 n_ini = zeros( length(z),length(tau)); %Population initial
97 n_ini(:, :) = n0;

```



```

98
99 %=====
100 %=====
101 %resolution de block optique
102 tic
103 [M_Ep,M_Es,M_rho,M_n]= resol_Maxwell_block_rk4(tau,htau,z,hz,Ep_ini,
      Es_ini,rho_ini,n_ini,n0,T1,T2,B1,B2,k1);
104 toc
105 %=====
106 %Calcul des intensites
107 Ip = (c/(2*pi))*M_Ep.*conj(M_Ep);
108 Is = (c/(2*pi))*M_Es.*conj(M_Es);
109 Itot = Ip+Is;
110 %Plot%=====

```

### A.2.3 Code numérique utilisé pour la prise et l'analyse des données expérimentales

Ci-dessous le script Matlab utilisé pour automatiser la prise de données expérimentales (Section 4.3) :

```

1 %=====
2 %Version need for speed => pas variable 01/03/2023 Jim Ignacchiti
3 %=====
4 clear all
5 close all
6 clc
7 %=====
8 %parametres
9 Imax = 16.25; % Position de la platine par rapport a la valeur max pics
      observee en mm
10 integrationTime = 20000; %us % integration time for ocean optics.
11 mode = 3; % range du scan
12 %=====
13 if(mode == 1) %scan large pour 3 ps
14     min =Imax-1.25;
15     max =Imax+1.25;
16     pas = 0.1;
17 elseif(mode == 2) %%scan court pour 3 ps
18     min =16;
19     max= 16.5;
20     pas = 0.002;
21 elseif(mode == 3) %%pas variable pour 3 ps

```

```

22     min =Imax-1.25;
23     max= Imax+1.25;
24     pas = 0.001;
25     min_r =16;
26     max_r= 16.5;
27     pas_r = 0.00025;
28 end
29 P_ini = max; % position initial de la platine avant le scan
30 %=====
31 %nb de point et temps de l'acquisition
32 P_depart = P_ini ;
33 if(mode == 3) %pas variable
34     nbpt1 = double(int16(abs((max-max_r))/pas)) ;
35     nbpt2 = double(int16(abs((max_r-min_r))/pas_r));
36     nbpt3 = double(int16(abs((min_r-min))/pas)) ;
37     nbpt = nbpt1+nbpt2+nbpt3;
38     position_platine = zeros(1, nbpt);
39     position_platine(1,1:nbpt1) = P_depart-double(1:nbpt1)*pas;
40     position_platine(1,nbpt1+1:nbpt1+nbpt2) = position_platine(1,nbpt1)-
double(1:nbpt2)*pas_r;
41     position_platine(1,nbpt1+nbpt2+1:nbpt) = position_platine(1,nbpt1+
nbpt2)-double(1:nbpt3)*pas;
42 else %pas lineaire
43     nbpt = double(int16(abs((max-min))/pas));
44     position_platine = zeros(1, nbpt);
45     position_platine(1,:) = P_depart-double(1:nbpt)*pas;
46 end
47
48 disp("nbpt : "+nbpt);
49 disp("temps d'integration : "+ integrationTime+" us");
50 t_acqui = (1e-6*integrationTime*nbpt + 2 + 0.14*nbpt)/60; % en min
51 disp("temps d'acquisition : "+t_acqui +" min");
52 return
53 %=====
54 %choix de sauvegarde des data
55 save_dirc = 1;
56 if(save_dirc == 1)
57     path = "C:\Users\ignacchiti\Desktop\Manip_Coherence\test\" ;
58     delete 'C:\Users\ignacchiti\Desktop\Manip_Coherence\test\*.txt'
59 else
60     path = "C:\Users\ignacchiti\Desktop\Manip_Coherence\2000\" ;
61 end
62 %=====

```

```

63 %=====
64 %Parametre du spectro
65 spectrometerObj = icdevice('C:\Users\ignacchiti\Desktop\Polyspace\R2019b
    \toolbox\instrument\instrument\drivers\OceanOptics_OmniDriver.mdd');
66 connect(spectrometerObj);
67 spectrometerIndex = 0;
68 channelIndex = 0;
69 % Enable flag.
70 enable = 1;
71
72 %% Set the parameters for spectrum acquisition.
73 % Set integration time.
74 invoke(spectrometerObj, 'setIntegrationTime', spectrometerIndex,
    channelIndex, integrationTime);
75 % Enable correct for detector non-linearity.
76 invoke(spectrometerObj, 'setCorrectForDetectorNonlinearity',
    spectrometerIndex, channelIndex, enable);
77 % Enable correct for electrical dark.
78 %invoke(spectrometerObj, 'setCorrectForElectricalDark',
    spectrometerIndex, channelIndex, enable);
79
80 %=====
81 %=====
82 %Parametre de la platine
83 %% Setup configuration
84 %stageType = 'M-404.1PD';
85
86 axesSettings = 'Common'; % 'Common' 'C-887'
87 axis = '1';
88
89 %% Load PI MATLAB Driver GCS2
90 Controller = PI_GCS_Controller();
91 a = Controller.EnumerateUSB();
92 disp(a);
93 %% Start connection
94 controllerSerialNumber = '0135500562';
95 PIdevice = Controller.ConnectUSB ( controllerSerialNumber );
96 % query controller identification string
97 connectedControllerName = PIdevice.qIDN();
98 % initialize PIdevice object for use in MATLAB
99 PIdevice = PIdevice.InitializeController();
100
101 %% Startup stage

```

```

102 % switch servo on for axis
103 switchOn      = 1;
104 PIdevice.SVO( axis, switchOn );
105
106 %% Get min/max position limits
107 % determine the allowed travel range of the stage
108 minimumPosition = PIdevice.qTMN ( axis );
109 maximumPosition = PIdevice.qTMX ( axis );
110 travelRange = ( maximumPosition - minimumPosition );
111 dMin = PIdevice.qTMN(axis);
112 dMax = PIdevice.qTMX(axis);
113 %=====
114 %=====
115 %programme principal
116 PIdevice.VEL(axis, 0.25);
117 PIdevice.MOV(axis, P_depart);
118
119 while( PIdevice.qPOS(axis) ~= P_depart) %si position atteinte lancer
    le scan
120     pause (1);
121 end
122
123 wavelengths = invoke(spectrometerObj, 'getWavelengths',
    spectrometerIndex, channelIndex);
124 writematrix(wavelengths, path+"lambda_spectre.txt");
125 parametres = ["nbpt : "+nbpt; "temps d'integration : "+ integrationTime
    +" us" ] ;
126 writematrix(parametres, path+"parametres.txt");
127
128 for i= 1:nbpt
129     disp(num2str(i)+"/"+num2str(nbpt) );
130     PIdevice.MOV(axis, position_platine(1,i));
131     pause (integrationTime*1e-6);
132     spectralData = invoke(spectrometerObj, 'getSpectrum',
    spectrometerIndex);
133     data_w = [PIdevice.qPOS(axis) spectralData'] ;
134     dlmwrite(path+"full_scan_spectre_vs_position"+" .txt", data_w, '-
    append', 'delimiter', '\t', 'newline', 'pc') ;
135 end
136 PIdevice.MOV(axis, Imax); % apres le scan , la platine se positionner a
    la valeur max du pics observee
137 %=====
138 %Fin

```

```
139 %% Clean up PI device.  
140 Controller.Destroy;  
141 clear Controller;  
142 clear Pdevice;  
143 %% Clean up spectro.  
144 disconnect(spectrometerObj);  
145 delete (spectrometerObj);
```

# B

## Bibliographie

### Sommaire

---

Références . . . . .	166
Liste des travaux . . . . .	176

---

# Références

- [1] VANKKA, J. & HALONEN, K. A. *Direct digital synthesizers : theory, design and applications* (Springer Science & Business Media, 2001) (cf. p. 22).
- [2] AHRENS, J. *Analytic methods of sound field synthesis* (Springer Science & Business Media, 2012) (cf. p. 22).
- [3] SALEH, B. E. & TEICH, M. C. *Fundamentals of photonics* (John Wiley & Sons, 2019) (cf. p. 22).
- [4] COOK, P. R. *Real sound synthesis for interactive applications* (CRC Press, 2002) (cf. p. 23).
- [5] RAZAVI, B. *Fundamentals of microelectronics* (John Wiley & Sons, 2021) (cf. p. 23).
- [6] PROAKIS, J. G., SALEHI, M., ZHOU, N. & LI, X. *Communication systems engineering* (Prentice Hall New Jersey, 1994) (cf. p. 23).
- [7] LEE, T. H. *The design of CMOS radio-frequency integrated circuits* (Cambridge university press, 2003) (cf. p. 23).
- [8] ZEWAHL, A. H. Laser femtochemistry. *Science* **242**, 1645-1653 (1988) (cf. p. 24).
- [9] PAPADOGIANNIS, N., WITZEL, B., KALPOUZOS, C. & CHARALAMBIDIS, D. Observation of attosecond light localization in higher order harmonic generation. *Physical Review Letters* **83**, 4289 (1999) (cf. p. 24).
- [10] CORKUM, P. Attosecond pulses at last. *Nature* **403**, 845-846 (2000) (cf. p. 24).
- [11] LEONE, S. R. Profile of Pierre Agostini, Anne L'Huillier, and Ferenc Krausz : 2023 Nobel laureates in Physics. *Proceedings of the National Academy of Sciences* **121**, e2321587121 (2024) (cf. p. 24).
- [12] UIBERACKER, M. *et al.* Attosecond real-time observation of electron tunnelling in atoms. *Nature* **446**, 627-632 (2007) (cf. p. 25).
- [13] HENTSCHEL, M. *et al.* Attosecond metrology. *Nature* **414**, 509-513 (2001) (cf. p. 25).
- [14] PAUL, P.-M. *et al.* Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation. *Science* **292**, 1689-1692 (2001) (cf. p. 25).

- [15] CHAN, H.-S. *et al.* Synthesis and measurement of ultrafast waveforms from five discrete optical harmonics. *Science* **331**, 1165-1168 (2011) (cf. p. 25).
- [16] BENOIT, A., HUSAKOU, A., BEAUDOU, B., DEBORD, B., GEROME, F. & BENABID, F. Raman-Kerr comb generation based on parametric wave mixing in strongly driven Raman molecular gas medium. *Physical Review Research* **2**, 023025 (2020) (cf. p. 25, 31).
- [17] KIPPENBERG, T. J., HOLZWARTH, R. & DIDDAMS, S. A. Microresonator-based optical frequency combs. *science* **332**, 555-559 (2011) (cf. p. 25).
- [18] SOKOLOV, A. V., WALKER, D. R., YAVUZ, D. D., YIN, G. Y. & HARRIS, S. E. Raman generation by phased and antiphased molecular states. *Physical review letters* **85**, 562 (2000) (cf. p. 25).
- [19] NAZARKIN, A., KORN, G., WITTMANN, M. & ELSAESSER, T. Generation of multiple phase-locked Stokes and anti-Stokes components in an impulsively excited Raman medium. *Physical review letters* **83**, 2560 (1999) (cf. p. 25, 26).
- [20] KAWANO, H., HIRAKAWA, Y. & IMASAKA, T. Generation of high-order rotational lines in hydrogen by four-wave Raman mixing in the femtosecond regime. *IEEE journal of quantum electronics* **34**, 260-268 (1998) (cf. p. 25, 26).
- [21] SALI, E., MENDHAM, K. J., TISCH, J. W., HALFMANN, T. & MARANGOS, J. P. High-order stimulated Raman scattering in a highly transient regime driven by a pair of ultrashort pulses. *Optics letters* **29**, 495-497 (2004) (cf. p. 25, 26).
- [22] ZHAVORONKOV, N. & KORN, G. Generation of single intense short optical pulses by ultrafast molecular phase modulation. *Physical Review Letters* **88**, 203901 (2002) (cf. p. 26).
- [23] HARRIS, S. & SOKOLOV, A. Broadband spectral generation with refractive index control. *Physical Review A* **55**, R4019 (1997) (cf. p. 26).
- [24] HARRIS, S. & SOKOLOV, A. Subfemtosecond pulse generation by molecular modulation. *Physical review letters* **81**, 2894 (1998) (cf. p. 26).
- [25] KAWANO, H., HIRAKAWA, Y. & IMASAKA, T. Generation of more than 40 rotational Raman lines by picosecond and femtosecond Ti : sapphire laser for Fourier synthesis. *Applied Physics B : Lasers & Optics* **65** (1997) (cf. p. 26).
- [26] BENABID, F., ANTONOPOULOS, G., KNIGHT, J. & RUSSELL, P. S. J. Stokes amplification regimes in quasi-cw pumped hydrogen-filled hollow-core photonic crystal fiber. *Physical review letters* **95**, 213903 (2005) (cf. p. 26, 29).
- [27] COUNY, F., BENABID, F., ROBERTS, P., LIGHT, P. & RAYMER, M. Generation and photonic guidance of multi-octave optical-frequency combs. *Science* **318**, 1118-1121 (2007) (cf. p. 26, 30, 69, 70, 81).



- [28] WANG, Y., WU, C., COUNY, F., RAYMER, M. & BENABID, F. Quantum-fluctuation-initiated coherence in multioctave Raman optical frequency combs. *Physical review letters* **105**, 123603 (2010) (cf. p. [26](#), [34](#), [35](#)).
- [29] DEL'HAYE, P., SCHLIESSER, A., ARCIZET, O., WILKEN, T., HOLZWARTH, R. & KIPPENBERG, T. J. Optical frequency comb generation from a monolithic microresonator. *Nature* **450**, 1214-1217 (2007) (cf. p. [27](#)).
- [30] LEVY, J. S., GONDARENKO, A., FOSTER, M. A., TURNER-FOSTER, A. C., GAETA, A. L. & LIPSON, M. CMOS-compatible multiple-wavelength oscillator for on-chip optical interconnects. *Nature photonics* **4**, 37-40 (2010) (cf. p. [27](#)).
- [31] BENABID, F., BOUWMANS, G., KNIGHT, J., RUSSELL, P. S. J. & COUNY, F. Ultrahigh efficiency laser wavelength conversion in a gas-filled hollow core photonic crystal fiber by pure stimulated rotational Raman scattering in molecular hydrogen. *Physical review letters* **93**, 123903 (2004) (cf. p. [27](#), [29](#), [68](#)).
- [32] BENABID, F., KNIGHT, J. & RUSSELL, P. S. J. Particle levitation and guidance in hollow-core photonic crystal fiber. *Optics express* **10**, 1195-1203 (2002) (cf. p. [27](#)).
- [33] DUNCAN, M. D., MAHON, R., TANKERSLEY, L. & REINTJES, J. Transient stimulated Raman amplification in hydrogen. *JOSA B* **5**, 37-52 (1988) (cf. p. [28](#)).
- [34] RABINOWITZ, P., KALDOR, A., BRICKMAN, R. & SCHMIDT, W. Waveguide H<sub>2</sub> Raman laser. *Applied optics* **15**, 2005-2006 (1976) (cf. p. [28](#)).
- [35] BENABID, F., KNIGHT, J. C., ANTONOPOULOS, G. & RUSSELL, P. S. J. Stimulated Raman scattering in hydrogen-filled hollow-core photonic crystal fiber. *Science* **298**, 399-402 (2002) (cf. p. [29](#), [68-70](#), [83](#)).
- [36] COUNY, F., BENABID, F. & LIGHT, P. Subwatt threshold cw Raman fiber-gas laser based on H<sub>2</sub>-filled hollow-core photonic crystal fiber. *Physical Review Letters* **99**, 143903 (2007) (cf. p. [29](#)).
- [37] BENOIT, A. *et al.* Over-five octaves wide Raman combs in high-power picosecond-laser pumped H<sub>2</sub>-filled inhibited coupling Kagome fiber. *Optics Express* **23**, 14002-14009 (2015) (cf. p. [30](#), [31](#)).
- [38] HOSSEINI, P., ABDOLVAND, A. & RUSSELL, P. S. J. Generation of spectral clusters in a mixture of noble and Raman-active gases. *Optics Letters* **41**, 5543-5546 (2016) (cf. p. [31](#)).
- [39] MRIDHA, M. K., NOVOA, D., HOSSEINI, P. & RUSSELL, P. S. J. Thresholdless deep and vacuum ultraviolet Raman frequency conversion in hydrogen-filled photonic crystal fiber. *Optica* **6**, 731-734 (2019) (cf. p. [31](#), [32](#)).

- [40] MRIDHA, M. K., NOVOA, D. & RUSSELL, P. S. J. Dominance of backward stimulated Raman scattering in gas-filled hollow-core photonic crystal fibers. *Optica* **5**, 570-576 (2018) (cf. p. 32).
- [41] TYUMENEV, R., RUSSELL, P. S. J. & NOVOA, D. Narrowband vacuum ultraviolet light via cooperative Raman scattering in dual-pumped gas-filled photonic crystal fiber. *ACS Photonics* **7**, 1989-1993 (2020) (cf. p. 32, 33).
- [42] TYUMENEV, R., HAMMER, J., JOLY, N., RUSSELL, P. S. J. & NOVOA, D. Tunable and state-preserving frequency conversion of single photons in hydrogen. *Science* **376**, 621-624 (2022) (cf. p. 33, 34, 148).
- [43] RAMAN, C. V. & KRISHNAN, K. S. A new type of secondary radiation. *Nature* **121**, 501-502 (1928) (cf. p. 39).
- [44] SMEKAL, A. Zur quantentheorie der dispersion. *Naturwissenschaften* **11**, 873-875 (1923) (cf. p. 39).
- [45] HERZBERG, G. Spectra of diatomic molecules. *Molecular Spectra & Molecular Structure* **1**, 127 (1950) (cf. p. 40).
- [46] FARKAS, A. Orthohydrogen, parahydrogen and heavy hydrogen. (*No Title*) (1935) (cf. p. 40).
- [47] BISCHEL, W. K. & DYER, M. J. Wavelength dependence of the absolute Raman gain coefficient for the Q (1) transition in H<sub>2</sub>. *JOSA B* **3**, 677-682 (1986) (cf. p. 41, 50).
- [48] DICKE, R. The effect of collisions upon the Doppler width of spectral lines. *Physical Review* **89**, 472 (1953) (cf. p. 42).
- [49] COUNY, F. *Photonic solutions towards optical waveform synthesis* thèse de doct. (University of Bath, 2008) (cf. p. 42).
- [50] LALLEMAND, P., SIMOVA, P. & BRET, G. Pressure-induced line shift and collisional narrowing in hydrogen gas determined by stimulated Raman emission. *Physical Review Letters* **17**, 1239 (1966) (cf. p. 42).
- [51] MINCK, R., HAGENLOCKER, E. & RADO, W. Stimulated pure rotational Raman scattering in deuterium. *Physical review letters* **17**, 229 (1966) (cf. p. 44).
- [52] RAYMER, M. & WALMSLEY, I. in *Progress in optics* 181-270 (Elsevier, 1990) (cf. p. 47-50, 52).
- [53] RAYMER, M., WALMSLEY, I., MOSTOWSKI, J. & SOBOLEWSKA, B. Quantum theory of spatial and temporal coherence properties of stimulated Raman scattering. *Physical Review A* **32**, 332 (1985) (cf. p. 49, 52, 55).
- [54] RAYMER, M. & MOSTOWSKI, J. Stimulated Raman scattering : unified treatment of spontaneous initiation and spatial propagation. *Physical Review A* **24**, 1980 (1981) (cf. p. 49, 50).

- [55] RAYLEIGH, L. XVIII. On the passage of electric waves through tubes, or the vibrations of dielectric cylinders. *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science* **43**, 125-132 (1897) (cf. p. 67).
- [56] BARROW, W. Transmission of electromagnetic waves in hollow tubes of metal. *Proceedings of the Institute of Radio Engineers* **24**, 1298-1328 (1936) (cf. p. 67).
- [57] CARSON, J. R., MEAD, S. P. & SCHELKUNOFF, S. Hyper-frequency wave guides—mathematical theory. *Bell System Technical Journal* **15**, 310-333 (1936) (cf. p. 67).
- [58] SOUTHWORTH, G. Hyper-frequency wave guides—general considerations and experimental results. *Bell System Technical Journal* **15**, 284-309 (1936) (cf. p. 67).
- [59] EAGLESFIELD, C. Optical pipeline : a tentative assessment. *Proceedings of the IEE-Part B : Electronic and Communication Engineering* **109**, 26-32 (1962) (cf. p. 67).
- [60] MARCATILI, E. A. & SCHMELTZER, R. A. Hollow metallic and dielectric waveguides for long distance optical transmission and lasers. *Bell System Technical Journal* **43**, 1783-1809 (1964) (cf. p. 67, 72).
- [61] YABLONOVITCH, E. Inhibited spontaneous emission in solid-state physics and electronics. *Physical review letters* **58**, 2059 (1987) (cf. p. 67).
- [62] JOHN, S. Strong localization of photons in certain disordered dielectric superlattices. *Physical review letters* **58**, 2486 (1987) (cf. p. 67).
- [63] RUSSELL, P. Photonic crystal fibers. *science* **299**, 358-362 (2003) (cf. p. 67).
- [64] BIRKS, T. A., KNIGHT, J. C. & RUSSELL, P. S. J. Endlessly single-mode photonic crystal fiber. *Optics letters* **22**, 961-963 (1997) (cf. p. 67).
- [65] MORTENSEN, N., NIELSEN, M. D., FOLKENBERG, J. R., PETERSSON, A. & SIMONSEN, H. R. Improved large-mode-area endlessly single-mode photonic crystal fibers. *Optics Letters* **28**, 393-395 (2003) (cf. p. 67).
- [66] DUDLEY, J. M., GENTY, G. & COEN, S. Supercontinuum generation in photonic crystal fiber. *Reviews of modern physics* **78**, 1135 (2006) (cf. p. 67).
- [67] GEROME, F., AUGUSTE, J.-L. & BLONDY, J.-M. Design of dispersion-compensating fibers based on a dual-concentric-core photonic crystal fiber. *Optics Letters* **29**, 2725-2727 (2004) (cf. p. 67).
- [68] CREGAN, R. *et al.* Single-mode photonic band gap guidance of light in air. *science* **285**, 1537-1539 (1999) (cf. p. 67).
- [69] ROBERTS, P. *et al.* Ultimate low loss of hollow-core photonic crystal fibres. *Optics express* **13**, 236-244 (2005) (cf. p. 68, 85).
- [70] YEY, P. & YARIV, A. Bragg reflection waveguides. *Optics Communications* **19**, 427-430 (1976) (cf. p. 68).

- [71] JOHNSON, S. G. *et al.* Low-loss asymptotically single-mode propagation in large-core OmniGuide fibers. *Optics express* **9**, 748-779 (2001) (cf. p. 68).
- [72] KONOROV, S., FEDOTOV, A. & ZHELTIKOV, A. Enhanced four-wave mixing in a hollow-core photonic-crystal fiber. *Optics letters* **28**, 1448-1450 (2003) (cf. p. 68).
- [73] KONOROV, S. *et al.* Self-phase modulation of submicrojoule femtosecond pulses in a hollow-core photonic-crystal fiber. *Applied physics letters* **85**, 3690-3692 (2004) (cf. p. 68).
- [74] OUZOUNOV, D. G. *et al.* Generation of megawatt optical solitons in hollow-core photonic band-gap fibers. *Science* **301**, 1702-1704 (2003) (cf. p. 68).
- [75] ALHARBI, M. *et al.* Hypocycloid-shaped hollow-core photonic crystal fiber Part II : Cladding effect on confinement and bend loss. *Optics Express* **21**, 28609-28616 (2013) (cf. p. 69).
- [76] GÉRÔME, F., JAMIER, R., AUGUSTE, J.-L., HUMBERT, G. & BLONDY, J.-M. Simplified hollow-core photonic crystal fiber. *Optics letters* **35**, 1157-1159 (2010) (cf. p. 69, 70).
- [77] PRYAMIKOV, A. D., BIRIUKOV, A. S., KOSOLAPOV, A. F., PLOTNICHENKO, V. G., SEMJONOV, S. L. & DIANOV, E. M. Demonstration of a waveguide regime for a silica hollow-core microstructured optical fiber with a negative curvature of the core boundary in the spectral region  $> 3.5 \mu\text{m}$ . *Optics express* **19**, 1441-1448 (2011) (cf. p. 69, 70, 84).
- [78] WANG, Y., WHEELER, N. V., COUNY, F., ROBERTS, P. & BENABID, F. Low loss broadband transmission in hypocycloid-core Kagome hollow-core photonic crystal fiber. *Optics letters* **36**, 669-671 (2011) (cf. p. 69, 70, 82, 83).
- [79] YU, F., WADSWORTH, W. J. & KNIGHT, J. C. Low loss silica hollow core fibers for 3–4  $\mu\text{m}$  spectral region. *Optics express* **20**, 11153-11158 (2012) (cf. p. 70).
- [80] KOLYADIN, A. N., KOSOLAPOV, A. F., PRYAMIKOV, A. D., BIRIUKOV, A. S., PLOTNICHENKO, V. G. & DIANOV, E. M. Light transmission in negative curvature hollow core fiber in extremely high material loss region. *Optics express* **21**, 9514-9519 (2013) (cf. p. 70).
- [81] HAYES, J. R., POLETTI, F., ABOKHAMIS, M. S., WHEELER, N. V., BADDELA, N. K. & RICHARDSON, D. J. Anti-resonant hexagram hollow core fibers. *Optics Express* **23**, 1289-1299 (2015) (cf. p. 70).
- [82] UEBEL, P. *et al.* Broadband robustly single-mode hollow-core PCF by resonant filtering of higher-order modes. *Optics letters* **41**, 1961-1964 (2016) (cf. p. 70, 88).

- [83] HAYES, J. R. *et al.* Antiresonant hollow core fiber with an octave spanning bandwidth for short haul data communications. *Journal of Lightwave Technology* **35**, 437-442 (2017) (cf. p. 70).
- [84] DEBORD, B. *et al.* Ultralow transmission loss in inhibited-coupling guiding hollow fibers. *Optica* **4**, 209-217 (2017) (cf. p. 70, 81, 87).
- [85] GAO, S.-f. *et al.* Hollow-core conjoined-tube negative-curvature fibre with ultralow loss. *Nature communications* **9**, 2828 (2018) (cf. p. 70, 84, 87, 90).
- [86] AMRANI, F. *et al.* Low-loss single-mode hybrid-lattice hollow-core photonic-crystal fibre. *Light : Science & Applications* **10**, 1-12 (2021) (cf. p. 70, 84, 96).
- [87] SAKR, H. *et al.* Hollow core NANFs with five nested tubes and record low loss at 850, 1060, 1300 and 1625nm in *Optical Fiber Communication Conference* (2021), F3A-4 (cf. p. 70, 84).
- [88] JASION, G. T. *et al.* 0.174 dB/km hollow core double nested antiresonant nodeless fiber (DNANF) in *2022 Optical Fiber Communications Conference and Exhibition (OFC)* (2022), 1-3 (cf. p. 70, 84).
- [89] ZEISBERGER, M., HARTUNG, A. & SCHMIDT, M. A. Understanding dispersion of revolver-type anti-resonant hollow core fibers. *Fibers* **6**, 68 (2018) (cf. p. 71).
- [90] ZEISBERGER, M. & SCHMIDT, M. A. Analytic model for the complex effective index of the leaky modes of tube-type anti-resonant hollow core fibers. *Scientific reports* **7**, 11761 (2017) (cf. p. 72, 106).
- [91] DUGUAY, M., KOKUBUN, Y., KOCH, T. & PFEIFFER, L. Antiresonant reflecting optical waveguides in SiO<sub>2</sub>-Si multilayer structures. *Applied Physics Letters* **49**, 13-15 (1986) (cf. p. 73).
- [92] BENABID, F. & ROBERTS, P. Linear and nonlinear optical properties of hollow core photonic crystal fiber. *Journal of Modern Optics* **58**, 87-124 (2011) (cf. p. 78).
- [93] JOHNSON, S. G. & JOANNOPOULOS, J. D. Block-iterative frequency-domain methods for Maxwell's equations in a planewave basis. *Optics express* **8**, 173-190 (2001) (cf. p. 79).
- [94] PEARCE, G., HEDLEY, T. & BIRD, D. Adaptive curvilinear coordinates in a plane-wave solution of Maxwell's equations in photonic crystals. *Physical Review B* **71**, 195108 (2005) (cf. p. 79).
- [95] SAITOH, K. & KOSHIBA, M. Full-vectorial imaginary-distance beam propagation method based on a finite element scheme : application to photonic crystal fibers. *IEEE Journal of Quantum Electronics* **38**, 927-933 (2002) (cf. p. 79).
- [96] HSU, C. W., ZHEN, B., STONE, A. D., JOANNOPOULOS, J. D. & SOLJAČIĆ, M. Bound states in the continuum. *Nature Reviews Materials* **1**, 1-13 (2016) (cf. p. 80).

- [97] Von NEUMANN, J. & WIGNER, E. P. Über merkwürdige diskrete Eigenwerte. *The Collected Works of Eugene Paul Wigner : Part A : The Scientific Papers*, 291-293 (1993) (cf. p. 80).
- [98] CAPASSO, F., SIRTORI, C., FAIST, J., SIVCO, D. L., CHU, S.-N. G. & CHO, A. Y. Observation of an electronic bound state above a potential well. *Nature* **358**, 565-567 (1992) (cf. p. 80).
- [99] COUNY, F., BENABID, F., ROBERTS, P., BURNETT, M. & MAIER, S. Identification of Bloch-modes in hollow-core photonic crystal fiber cladding. *Optics Express* **15**, 325-338 (2007) (cf. p. 82).
- [100] DEBORD, B. et al. Hypocycloid-shaped hollow-core photonic crystal fiber Part I : Arc curvature effect on confinement loss. *Optics Express* **21**, 28597-28608 (2013) (cf. p. 83).
- [101] MAUREL, M. et al. Optimized inhibited-coupling Kagome fibers at Yb-Nd : Yag (8.5 dB/km) and Ti : Sa (30 dB/km) ranges. *Optics Letters* **43**, 1598-1601 (2018) (cf. p. 83, 87).
- [102] DEBORD, B. et al. 7.7 dB/km transmission loss at 750 nm inhibited-coupling guiding hollow-core photonic crystal fibers in *The European Conference on Lasers and Electro-Optics* (2017), CJ\_8\_4 (cf. p. 84).
- [103] CHEN, P. & FOKOUA. Hollow Core DNANF Optical Fiber with <0.11 dB/km Loss. *Optical Fiber Communication Conference* (2024) (cf. p. 84).
- [104] MIYA, T., TERUNUMA, Y., HOSAKA, T. & MIYASHITA, T. Ultimate low-loss single-mode fibre at 1.55  $\mu$ m. *Electronics Letters* **4**, 106-108 (1979) (cf. p. 84).
- [105] POLETTI, F. Nested antiresonant nodeless hollow core fiber. *Optics express* **22**, 23807-23828 (2014) (cf. p. 85, 90).
- [106] FOKOUA, E. N., CHEN, Y., RICHARDSON, D. J. & POLETTI, F. *Microbending effects in hollow-core photonic bandgap fibers* in *ECOC 2016 ; 42nd European Conference on Optical Communication* (2016), 1-3 (cf. p. 85).
- [107] MELLI, F., ROSA, L. & VINCETTI, L. Analytical Formulas for Micro-Bending and Surface Scattering Loss Estimation in Tube Lattice Fibers. *Journal of Lightwave Technology* (2023) (cf. p. 85).
- [108] NICHOLSON, J., YABLON, A. D., RAMACHANDRAN, S. & GHALMI, S. Spatially and spectrally resolved imaging of modal content in large-mode-area fibers. *Optics express* **16**, 7233-7243 (2008) (cf. p. 86).
- [109] GAO, S.-f., WANG, Y.-y., LIU, X.-l., HONG, C., GU, S. & WANG, P. Nodeless hollow-core fiber for the visible spectral range. *Optics letters* **42**, 61-64 (2017) (cf. p. 87).

- [110] CHAFER, M. *et al.* 1-km hollow-core fiber with loss at the silica Rayleigh limit in the green spectral region. *IEEE Photonics Technology Letters* **31**, 685-688 (2019) (cf. p. 87).
- [111] JASION, G. T. *et al.* Hollow core NANF with 0.28 dB/km attenuation in the C and L bands in *Optical Fiber Communication Conference* (2020), Th4B-4 (cf. p. 87).
- [112] BRADLEY, T. D. *et al.* Record low-loss 1.3 dB/km data transmitting antiresonant hollow core fibre in *2018 European Conference on Optical Communication (ECOC)* (2018), 1-3 (cf. p. 87).
- [113] SAKR, H. *et al.* Record low loss hollow core fiber for the 1 $\mu$ m region in *The European Conference on Lasers and Electro-Optics* (2019), ce\_5\_5 (cf. p. 87).
- [114] BENABID, F., GEROME, F., ARMANI, F., DELAHAYE, F. & DEBORD, B. *Method and device for manufacturing a hollow-core optical fibre* US Patent App. 17/593,258. Mai 2022 (cf. p. 87).
- [115] BRADLEY, T. D. *et al.* Optical properties of low loss (70dB/km) hypocycloid-core kagome hollow core photonic crystal fiber for Rb and Cs based optical applications. *Journal of Lightwave Technology* **31**, 3052-3055 (2013) (cf. p. 88).
- [116] HABIB, M. S., ANTONIO-LOPEZ, J., MARKOS, C., SCHÜLZGEN, A. & AMEZCUA-CORREA, R. Single-mode, low loss hollow-core anti-resonant fiber designs. *Optics express* **27**, 3824-3836 (2019) (cf. p. 90).
- [117] DEBORD, B., AMRANI, F., VINCETTI, L., GÉRÔME, F. & BENABID, F. Hollow-core fiber technology : the rising of "gas photonics". *Fibers* **7**, 16 (2019) (cf. p. 92).
- [118] KERGOUSTIN, D. *Sources optiques infrarouges impulsionnelles ultra-courtes et spectralement ultra-larges générées par effet Raman dans les fibres creuses* thèse de doct. (Limoges, 2019) (cf. p. 105).
- [119] AGRAWAL, G. P. Nonlinear fiber optics third edition. *Optics And Photonics*, 31 (2001) (cf. p. 106).
- [120] TREBINO, R. *et al.* Measuring ultrashort laser pulses in the time-frequency domain using frequency-resolved optical gating. *Review of Scientific Instruments* **68**, 3277-3295 (1997) (cf. p. 110).
- [121] VEIRS, D. K. & ROSENBLATT, G. M. Raman line positions in molecular hydrogen : H<sub>2</sub>, HD, HT, D<sub>2</sub>, DT, and T<sub>2</sub>. *Journal of molecular spectroscopy* **121**, 401-419 (1987) (cf. p. 115).
- [122] SMITHEY, D., BELSLEY, M., WEDDING, K. & RAYMER, M. Near quantum-limited phase memory in a Raman amplifier. *Physical review letters* **67**, 2446 (1991) (cf. p. 127, 141, 142).

- [123] HUSAKOU, A., WANG, Y.-Y., ALHARBI, M. & BENABID, F. Spatiotemporal dynamics of Raman coherence in hollow-core fibers for a pump-probe setup. *Physical Review A* **97**, 023814 (2018) (cf. p. [127](#), [142](#)).
- [124] CARMAN, R. L., SHIMIZU, F., WANG, C. & BLOEMBERGEN, N. Theory of Stokes pulse shapes in transient stimulated Raman scattering. *Physical Review A* **2**, 60 (1970) (cf. p. [127](#)).
- [125] ALHARBI, M., HUSAKOU, A., CHAFER, M., DEBORD, B., GÉRÔME, F. & BENABID, F. Raman gas self-organizing into deep nano-trap lattice. *Nature communications* **7**, 12779 (2016) (cf. p. [147](#)).



# Liste des Travaux

## Conférences internationales à comité de lecture

- IGNACCHITI, J., KERGOUSTIN, D., AMRANI, F., DEBORD, B., GÉRÔME, F. & BENABID, F. *Quantum seeded Sub-20 fs pulse train generation using transient SRS in H2-filled inhibited coupling HC-PCF* in *2021 Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO)* (2021), 1-2.
- IGNACCHITI, J., REIGUE, A., AMRANI, F., DEBORD, B., GÉRÔME, F. & BENABID, F. *Strong phase-locking in quantum seeded of Raman comb* in *CLEO : Science and Innovations* (2022), SF4H-6.
- IGNACCHITI, J., REIGUE, A., AMRANI, F., DEBORD, B., GÉRÔME, F. & BENABID, F. *Experimental realization of a coherent Raman comb* in *The European Conference on Lasers and Electro-Optics* (2023), cd\_8\_3.

## Reuves internationales à comité de lecture

- KERGOUSTIN, D., IGNACCHITI, J., AMRANI, F., DEBORD, B., GÉRÔME, F. & BENABID, F. *Tunable and spectrally-structured multi-octave light source*, Article en cours de rédaction (2024).
- IGNACCHITI, J., REIGUE, A., DEBORD, B., GÉRÔME, F. & BENABID, F. *Experimental realization of a coherent Raman comb in an HCPCF fiber and in the transient regime*, Article en cours de rédaction (2024).

## Contrôle et caractérisation de la cohérence Raman induite par bruit quantique dans des fibres creuses remplies de gaz

**Résumé :** Ces travaux de thèse portent sur la conception, la mise en œuvre et l'utilisation d'une plateforme expérimentale et de simulations numériques visant à exciter et amplifier la cohérence Raman de façon contrôlée à partir du bruit quantique. L'objectif est d'explorer la diffusion Raman stimulée dans des fibres creuses comme un moyen de générer des peignes de fréquences optiques cohérents, avec une largeur spectrale multiple-octaves, et ainsi créer un outil pour produire des fonctions d'ondes optiques arbitraires, telles que des impulsions attosecondes ou des lasers à modes verrouillés. Le principe repose sur l'excitation d'un gaz contenu dans une fibre à cristal photonique à cœur creux (HCPCF) par des impulsions laser ultrabrèves de telle sorte qu'un seul des modes spatio-temporels cohérents et indépendants de l'émission spontanée de la radiation Stokes soit excité et amplifié. Cette approche novatrice assure une modulation de phase du champ du laser d'excitation à des fréquences très élevées et sans bruit de phase. Elle se distingue des techniques existantes, telles que la modulation moléculaire, par l'absence de besoin d'un deuxième laser. Cependant, cette méthode nécessite un guide optique unimodal et un gain Raman exceptionnellement élevé. Dans ce contexte, ces travaux se sont ainsi focalisés sur la génération et la mesure de la cohérence intra et inter-impulsionnelle du peigne Raman afin d'évaluer son potentiel pour les applications mentionnées précédemment. Pour ce faire, un modèle théorique de la diffusion Raman stimulée en régime impulsionnel a été développé, soulignant l'intérêt du régime transitoire, qui amplifie le champ Stokes en un seul mode temporel. Des simulations numériques ont ensuite détaillé la dynamique du champ Stokes à travers le milieu Raman, en prenant en compte des facteurs tels que la déplétion du laser. Par ailleurs, une fibre optique à cœur creux hybride a été spécifiquement développée, offrant de faibles pertes linéiques (quelques dB/km à 1030 nm) et un guidage unimodal exceptionnel (MPI jusqu'à -47 dB), assurant ainsi la cohérence spatiale du peigne Raman. Deux bancs expérimentaux ont ensuite été réalisés pour examiner la cohérence du peigne, en commençant par l'aspect intra-impulsionnel. Un laser infrarouge réglable en durée d'impulsion, en énergie et en taux de répétition a été couplé dans la fibre remplie de dihydrogène pour générer le peigne, puis analysé à la sortie avec un interféromètre Mach-Zehnder à haute résolution temporelle ( $\sim$  fs) et large plage dynamique (environ 50 ps). Les résultats ont montré qu'en travaillant dans la gamme 3 – 10 ps et 1 – 10  $\mu$ J, les effets parasites, comme l'effet Kerr, sont minimisés, et la cohérence mutuelle est proche de l'unité pour toutes les raies de Stokes et anti-Stokes du 1er ordre, comme confirmé par les calculs numériques. L'étude de la cohérence inter-impulsionnelle a révélé un comportement complexe pour des impulsions espacées de moins de 1 ns et une diminution de la cohérence suivant la valeur du temps de relaxation de la cohérence ( $\sim$  2 ns) pour des délais plus longs entre les impulsions. Ces résultats soulignent l'importance de contrôler l'énergie et le délai des impulsions pour maintenir une haute cohérence, et suggèrent que des lasers d'excitation à des cadences de l'ordre de 400 MHz ou plus peuvent générer des lasers à modes verrouillés basés sur notre approche. En conclusion, les avancées réalisées durant cette thèse sur les propriétés de cohérence des peignes de fréquence montrent le potentiel de la diffusion Raman stimulée dans les HCPCFs pour la synthèse d'ondes optiques, et ouvrent la voie à d'autres applications comme la conversion de fréquence pour l'optique quantique, le piégeage optique et le refroidissement moléculaire.

---

**Mots clés :** Fibres creuses, diffusion Raman stimulée, peignes de fréquence, cohérence Raman, synthèse d'onde optique.

## Control and characterization of Raman coherence induced by quantum noise in gas-filled hollow core fibers

**Abstract :** This thesis addresses the design, implementation, and use of an experimental and numerical simulation platform aimed at exciting and amplifying Raman coherence in a controlled manner from quantum noise. The long term objective is to explore stimulated Raman scattering in hollow-core fiber as a means to generate coherent optical frequency combs with a multi-octave spectral width, thus creating a tool for generating arbitrary optical wave functions, such as attosecond pulses, or mode-locked lasers. The principle is based on the excitation of a gas contained in a hollow-core photonic crystal fiber (HCPCF) by ultrashort laser pulses, in such a way that only one of the coherent and independent spatiotemporal modes of the spontaneous Stokes radiation is excited and amplified. This innovative approach ensures phase modulation of the excitation laser field at very high frequencies without phase noise. It differs from existing techniques, such as molecular modulation, by eliminating the need for a second laser. However, this method requires a single-mode optical guide and exceptionally high Raman gain. In this context, this work focuses then on the generation and measurement of the intra and inter-pulse coherence of the Raman comb to evaluate its potential for the aforementioned applications. To this end, a theoretical model of stimulated Raman scattering in the impulsive regime was developed, highlighting the interest of the transient regime, which amplifies the Stokes field in a single temporal mode. Numerical simulations then detailed the dynamics of the Stokes field through the Raman medium, taking into account factors such as laser depletion. Furthermore, a specific hybrid hollow-core optical fiber was developed, offering low linear losses (a few dB/km at 1030 nm) and exceptional single-mode guidance (MPI up to  $-47$  dB), thus ensuring the spatial coherence of the Raman comb. Two experimental setups were then realized to examine the comb's coherence, starting with the intra-pulse aspect. An infrared laser adjustable in pulse duration, energy, and repetition rate was coupled into the hydrogen-filled fiber to generate the comb, then analyzed at the output with a Mach-Zehnder interferometer with high temporal resolution ( $\sim$  fs) and wide dynamic range (approximately 50 ps). The results showed that working in the range of 3 – 10 ps and 1 – 10  $\mu$ J minimizes parasitic effects such as the Kerr effect, and the mutual coherence is close to unity for all first-order Stokes and anti-Stokes lines, as confirmed by numerical calculations. The study of inter-pulse coherence revealed a complex behavior for pulses spaced less than 1 ns apart and a decrease in coherence corresponding to the coherence relaxation time ( $\sim$  2 ns) for longer delays between pulses. These results highlight the importance of controlling the energy and delay of pulses to maintain high coherence and suggest that excitation lasers with repetition rates around 400 MHz or more can generate mode-locked lasers based on our approach. In conclusion, the advances made during this thesis on the coherence properties of frequency combs demonstrate the potential of stimulated Raman scattering in HCPCFs for optical wave synthesis and pave the way for other applications such as frequency conversion for quantum optics, optical trapping, and molecular cooling.

---

**Keywords :** Hollow-core fibers, stimulated Raman scattering, frequency combs, Raman coherence, optical wave synthesis.