



HAL
open science

Nouvelles sources supercontinuum à fibre optique multimode effilée en verres dechalcogénures pour la gamme infrarouge moyen 2-20 μm

Esteban Serrano

► **To cite this version:**

Esteban Serrano. Nouvelles sources supercontinuum à fibre optique multimode effilée en verres dechalcogénures pour la gamme infrarouge moyen 2-20 μm . Optique [physics.optics]. Université Bourgogne Franche-Comté, 2024. Français. NNT : 2024UBFCK050 . tel-04885209

HAL Id: tel-04885209

<https://theses.hal.science/tel-04885209v1>

Submitted on 14 Jan 2025

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

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

THÈSE DE DOCTORAT DE L'ÉTABLISSEMENT UNIVERSITÉ BOURGOGNE FRANCHE-COMTÉ
PRÉPARÉE AU LABORATOIRE INTERDISCIPLINAIRE CARNOT DE BOURGOGNE
UMR 6303 CNRS – UBFC – Dijon - FRANCE

Ecole doctorale n°553

CARNOT-PASTEUR

Doctorat de Physique

Par

M. Esteban SERRANO

**Nouvelles sources supercontinuum à fibre optique multimode effilée en verres
de chalcogénures pour la gamme infrarouge moyen 2-20 μm**

Thèse présentée et soutenue à Dijon, le 17 octobre 2024

Composition du Jury :

M. Dudley John	Professeur, Université de Franche-Comté	Président du jury
M. Mussot Arnaud	Professeur, Université de Lille	Rapporteur
M. Zhang Xiang-Hua	Directeur de recherche CNRS, Université de Rennes 1	Rapporteur
Mme. Rutkowski Lucile	Chargée de recherche CNRS, Institut de Physique de Rennes	Examinatrice
Mme. Hildenbrand-Dhollande Anne	Responsable du groupe de développement laser, Institut franco-allemand de recherches de Saint-Louis (ISL)	Examinatrice
M. Kibler Bertrand	Directeur de recherche CNRS, Université de Bourgogne	Directeur de thèse
M. Smektala Frédéric	Professeur, Université de Bourgogne	Codirecteur de thèse

Remerciements

Lors d'un stage en 2019 au sein d'une certaine équipe Safir (ex-SLCO), j'ai pu synthétiser mon premier verre et l'étirer sous forme de fibre optique. En manipulant pour la première fois cet objet, j'ai pu avoir le déclic : je voulais devenir *chercheur en fibre optique* !

Cette thèse a donc été réalisée sous la direction de **Bertrand Kibler** et de **Frédéric Smektala** au sein du laboratoire Interdisciplinaire Carnot de Bourgogne et dans l'équipe Safir. Je vais donc commencer par les remercier tous les deux pour cet encadrement incroyable, me permettant ainsi de vivre ces trois années de thèse dans des conditions idéales. Merci à **Bertrand** pour m'avoir appris à devenir un jeune chercheur en physique et pour m'avoir encadré de la meilleure des manières. Je vais garder pour longtemps sa façon de travailler, avec toujours l'envie de tout vérifier et d'être le plus méticuleux possible. J'ai apprécié tous les échanges que l'on a pu avoir, que ce soit sur les simus, les manips ou l'optique non-linéaire. Les missions au Japon ou en Pologne auront été de belles aventures, dont je garderai des supers souvenirs ! Merci à **Frédéric** pour m'avoir inspiré à devenir chercheur dans le domaine des fibres optiques. Son enthousiasme et sa gentillesse mettent en confiance pour communiquer dans toutes circonstances.

Que dire sur l'équipe fibre et matériaux IR ? Je ne pouvais imaginer une meilleure équipe et des meilleurs collègues pour réaliser cette thèse. Merci à **Grégory Gadret** pour m'avoir appris tellement de choses, que ce soit sur les lasers, l'optique, l'histoire des sciences ou encore l'ornithologie... nos discussions vont beaucoup me manquer ! Merci à **Frédéric Désévéday** pour m'avoir transmis beaucoup également, que ce soit sur la science des matériaux ou sur la bibliographie (il n'y a pas une publi qu'il ne connaît pas !). On aura bien rigolé ensemble au labo (les mains dans la boîte à gants ou la tour de fibrage) ou en congrès. Merci également à **Clément Strutynski** pour son aide, son humour, et j'espère un jour être aussi créatif que lui dans les manips ! Un grand merci à **Claire-Hélène Brachais** pour toutes ces discussions que ce soit sur le vélo, Amboise ou les polymères ! Merci également à **Pierre Mathey** pour sa disponibilité et toutes nos discussions en salle laser et en dehors. Je ne peux remercier tout le monde individuellement alors merci à **Guy Millot**, **Julien Fatome**, **Christophe Finot**, **Erwan Lucas**, **Moïse Deroth**, **Christophe Aquilina**, **Kamal Hammani**, **Jean-Charles Jules**, **Yves Didelot** et tant d'autres. J'ai également eu la chance d'utiliser la chaîne laser de l'équipe PFL à la fin de ma thèse, alors un grand merci à **Olivier Faucher**, **Pierre Béjot** et **Franck Billard**. Pierre et Franck, j'ai beaucoup appris avec vous toujours dans la bonne humeur, et en plus on a obtenu un spectre jusqu'à 20 μm (à une semaine de la soutenance... mais ça reste entre nous !).

Mes remerciements vont également à toutes les personnes avec qui j'ai pu échanger au quotidien. Merci à l'équipe du Pr. **Ohishi** à Nagoya pour m'avoir accueilli et aidé à obtenir des résultats lors de mes missions au Japon. Merci à **Jonathan Clermont-de-Gallerande** pour m'avoir fait découvrir le Japon, vivement la prochaine fois ! Merci également à **Karol Tarnowski** pour les échanges que l'on a pu avoir lors des séjours à Wrocław, que ce soit sur les fibres optiques ou sur l'histoire de la Pologne. Un grand merci aussi à l'équipe de l'ISR de Rennes **Catherine Boussard-Plédel** et **David Le Coq** pour m'avoir transmis ces fibres Te-As-Se et Ge-Te-AgI, avec lesquelles, j'ai pu obtenir des résultats intéressants !

Je tiens à remercier les doctorants que j'ai pu côtoyer au laboratoire au cours de ces années, ceux qui sont devenus Docteurs, **Marianne**, **Rémi**, **Karolina**, **Anthony**... ou ceux qui vont le devenir **Damien**, **Mostafa**, **Antoine**, **Alexis**, **Ayesha**, **Arnaud**, **Anjana**, **Mathis**,

Remerciements

Lucille... Je tiens à ajouter quelques mots de plus sur mon partenaire de manip **Damien**. On aura passé des supers moments en salle laser, à optimiser ce fameux 15 microns, à discuter de tout, que ce soit à Dijon ou à Nagoya (où il faut être honnête, c'était intense !!). Une bien belle idée que l'on a eu de tester en septembre 2022 les tapers Ge-Se-Te...

Je veux également remercier toute l'équipe de l'Expérimentarium (**Coralie, Sophie, Lionel, Ju, Robin, Thibault, Elise**..) pour m'avoir appris à mieux communiquer mes travaux de recherche au grand public. C'était un plaisir immense de pouvoir échanger, avec des élèves du CM2 jusqu'au lycée, à propos de fibre optique et de laser à plusieurs couleurs dans l'infrarouge ! Je vais garder tellement de souvenirs que ce soient les semaines expé, le festival au Mans, ou encore cette fameuse journée grand public où ma tête était partout dans Dijon...

Le point culminant de ces années de travaux s'est déroulé le 17 octobre 2024 à Dijon lors de ma soutenance. Je tiens donc à remercier tous les membres de mon jury de thèse, **John Dudley, Arnaud Mussot, Xiang-Hua Zhang, Lucile Rutkowski** et **Anne Hildenbrand-Dhollande**.

Merci à mes amis qui ont également enduré cette thèse, **Greg, Luc, Marie, Quentin, Clément** et tant d'autres... Merci aussi à la team des biologistes avec qui on aura beaucoup rigolé tous ensemble (même si désolé, les physiciens sont les meilleurs !) : **Juliette, Madhy, Julie, Manon, Imane, Aude**...

Un grand merci à ma belle-famille, pour avoir été présente lors de ces années mais également le jour J avec **Camille, Paul, Karine** et **Olivier**. Merci à ma grande sœur **Amandine**, mon beau-frère **Axel** et mes nièces **Candice** et **Juliette** pour m'avoir écouté discuter de ma thèse encore et encore... Merci à mes parents qui m'ont permis d'être la personne que je suis aujourd'hui et de m'avoir permis de faire des études longues.

Pour terminer ces lignes, je dois remercier celle qui est devenue mon épouse au cours de cette thèse. **Jeanne**, merci pour tout ce que tu as fait pour moi, tu m'as tellement apporté sur tous les sujets et merci encore pour tes nombreuses corrections... Je ne vais pas développer plus, il faudrait de nouveau un manuscrit ! Vivement la suite nos aventures !

Pour ceux qui vont affronter les pages de ce manuscrit, bon courage et bon voyage dans la génération de supercontinuum dans l'infrarouge...

Merci à tous !

Pour mes grands-parents...

Introduction générale 1

Chapitre I – Fibres optiques pour l’infrarouge et génération de supercontinuum

1. Fibres optiques pour l’infrarouge.....	11
1.1. Introduction.....	11
1.2. Matériaux pour l’infrarouge.....	12
1.2.1. Transparence optique.....	12
1.2.2. Familles de verre pour l’infrarouge.....	13
1.2.3. Principales caractéristiques optiques.....	14
1.3. Fibres optiques pour l’infrarouge.....	17
1.3.1. Différents types de fibres optiques.....	17
1.3.2. Pertes optiques de la fibre optique.....	18
1.3.3. Dispersion de la fibre optique.....	19
2. Génération de supercontinuum.....	20
2.1. Processus et dynamique de génération de supercontinuum.....	20
2.1.1. En dispersion normale.....	20
2.1.2. En dispersion anormale.....	23
3. État de l’art de génération de supercontinuum dans l’infrarouge.....	26
3.1. Génération de supercontinuum dans les fibres tellurites et fluores.....	26
3.2. Génération de supercontinuum dans les fibres chalcogénures.....	27
3.2.1. Spectres les plus optimisés dans l’infrarouge moyen.....	28
3.2.2. Perspectives.....	30
3.3. Génération de supercontinuum avec des systèmes en cascade.....	30
4. Applications d’un supercontinuum dans l’infrarouge.....	31
5. Conclusion.....	32

Chapitre II – Techniques et dispositifs expérimentaux

1. Dispositifs expérimentaux.....	41
1.1. Sources laser utilisées.....	41
1.1.1. Source femtoseconde (cadence au kHz).....	41
1.1.2. Source femtoseconde (cadence jusqu’au MHz).....	42
1.2. Banc de génération et caractérisation de supercontinuum.....	44
1.2.1. Caractéristiques des optiques de couplage.....	45
1.2.2. Caractéristiques des densités optiques.....	47
1.2.3. Systèmes de caractérisation.....	47
1.2.4. Calibration des mesures.....	50
1.3. Fabrication et caractérisation d’une fibre chalcogénure effilée (taper).....	51
1.3.1. Fabrication d’un verre Ge-Se-Te.....	51
1.3.2. Mesure des indices de réfraction.....	52
1.3.3. Élaboration d’une fibre optique.....	54
1.3.4. Mesure des pertes optiques de la fibre.....	55
1.3.5. Fabrication d’une fibre effilée.....	56
2. Outils numériques.....	57
2.1. L’équation de Schrödinger non-linéaire généralisée.....	57

Table des matières

2.2. Résolution numérique.....	57
2.2.1. L'opérateur linéaire.....	58
2.2.2. L'opérateur non-linéaire.....	59
2.2.3. Cohérence du spectre.....	61
3. Conclusion.....	61

Chapitre III – Concept de fibre mono-indice effilée Ge-Se-Te pour la génération de supercontinuum

1. Introduction.....	67
2. Pompage avec une source femtoseconde (cadence au kHz).....	68
2.1. Caractéristiques de la fibre effilée Ge-Se-Te.....	68
2.2. Résultats.....	72
3. Pompage avec une source femtoseconde (cadence jusqu'au MHz).....	75
3.1. Mesures préliminaires.....	76
3.1.1. Influence du Raman dans la simulation numérique.....	79
3.2. Montée en puissance moyenne.....	80
3.2.1. Étude numérique du supercontinuum pour la puissance crête de 724 kW.....	81
3.3. Perspectives pour les fibres Ge-Se-Te.....	82
4. Conclusion.....	83

Chapitre IV – Généralisation du concept à d'autres verres et gammes spectrales

1. Introduction.....	89
2. Fibres effilées Te-As-Se.....	89
2.1. Généralités sur les verres Te-As-Se.....	89
2.2. Applications des fibres Te-As-Se.....	90
2.3. Génération de supercontinuum avec une source femtoseconde (cadence au kHz).....	91
2.3.1. Caractéristiques de la fibre Te-As-Se.....	91
2.3.2. Pompage avec une source femtoseconde (cadence au kHz).....	94
2.4. Génération de supercontinuum avec une source femtoseconde (cadence jusqu'au MHz).....	95
3. Fibres effilées TeO ₂ -ZnO-La ₂ O ₃	97
3.1. Généralités des verres TeO ₂ -ZnO-La ₂ O ₃	97
3.2. Matériels et méthodes.....	100
3.3. Résultats.....	100
3.3.1. Génération de supercontinuum.....	100
3.3.2. Montée en puissance moyenne.....	102
4. Fibres effilées SiO ₂	102
4.1. Propriétés de la fibre SiO ₂	103
4.2. Génération de supercontinuum.....	105
5. Conclusion.....	108

Chapitre V – Applications et perspectives des sources SC à fibre effilée mono-indice

1. Introduction.....	115
2. Utilisation des verres Ge-Te-AgI.....	115
2.1. Généralités sur les verres Ge-Te-AgI.....	115
2.2. Propriétés des fibres Ge-Te-AgI.....	117
2.3. Études de génération de supercontinuum.....	120
2.3.1. Génération de SC dans un verre massif Ge-Te-AgI.....	120
2.3.2. Génération de SC dans une fibre mono-indice non effilée Ge-Te-AgI.....	121
2.4. Perspectives avec des fibres effilées Ge-Te-AgI.....	123
3. Applications en spectroscopie d'absorption dans l'infrarouge moyen.....	126
3.1. Spectroscopie d'absorption par ondes évanescentes (FEWS).....	126
3.2. Matériels et méthodes.....	127
3.3. Résultats.....	129
3.3.1. FEWS avec une fibre effilée.....	129
3.3.2. FEWS avec une fibre double fonction.....	131
3.4. Perspectives des mesures FEWS.....	133
4. Conclusion.....	133

<u>Conclusion générale</u>	139
-----------------------------------	-----

<u>Liste des travaux publiés</u>	145
---	-----

Annexes

1. Supercontinuum dans des fibres Ge-Se-Te dans un système tout-fibré.....	147
2. Fibres tellurites à dispersion décalée et applications.....	161

Introduction générale

Introduction générale

L'infrarouge est une région du spectre électromagnétique couvrant les longueurs d'onde de 0,8 à 50 μm . Par conséquent, l'infrarouge est d'un grand intérêt dans de nombreux domaines. Nous pouvons définir trois sous-régions avec l'infrarouge proche NIR (0,8 - 2 μm), l'infrarouge moyen MIR (2 – 20 μm) et l'infrarouge lointain FIR (20 – 50 μm) (voir Figure 1) [1]. Les régions de l'infrarouge moyen et lointain sont très intéressantes en raison de deux facteurs clés : les fenêtres de transparence de l'atmosphère et la région des signatures spectroscopiques des molécules (*fingerprint region*). Dans la région spectrale de l'infrarouge moyen, la plupart des molécules ont une absorption spectrale intense et distincte. Ces bandes d'absorption y sont deux à trois ordres de grandeur plus importantes que les harmoniques et les bandes d'absorption dans la région du proche infrarouge [2]. Ce fait est dû à l'excitation des modes vibratoires lorsque les molécules s'étirent le long de leurs liaisons ou vibrent autour du centre de masse. La Figure 1 présente les principales liaisons chimiques et les fréquences associées des différentes absorptions. Ici, le graphique est présenté entre 3600 cm^{-1} et 500 cm^{-1} , soit environ de 2,8 μm à 20 μm [3]. L'absorption moléculaire forte et spécifique dans l'infrarouge moyen présente un intérêt indiscutable, pour identifier de manière non-destructive la présence d'un grand nombre de molécules dans un milieu avec une sensibilité élevée. Les applications sont nombreuses et dans plusieurs domaines, allant de l'alimentaire [4], au médical [5] ou encore à la surveillance écologique [6].

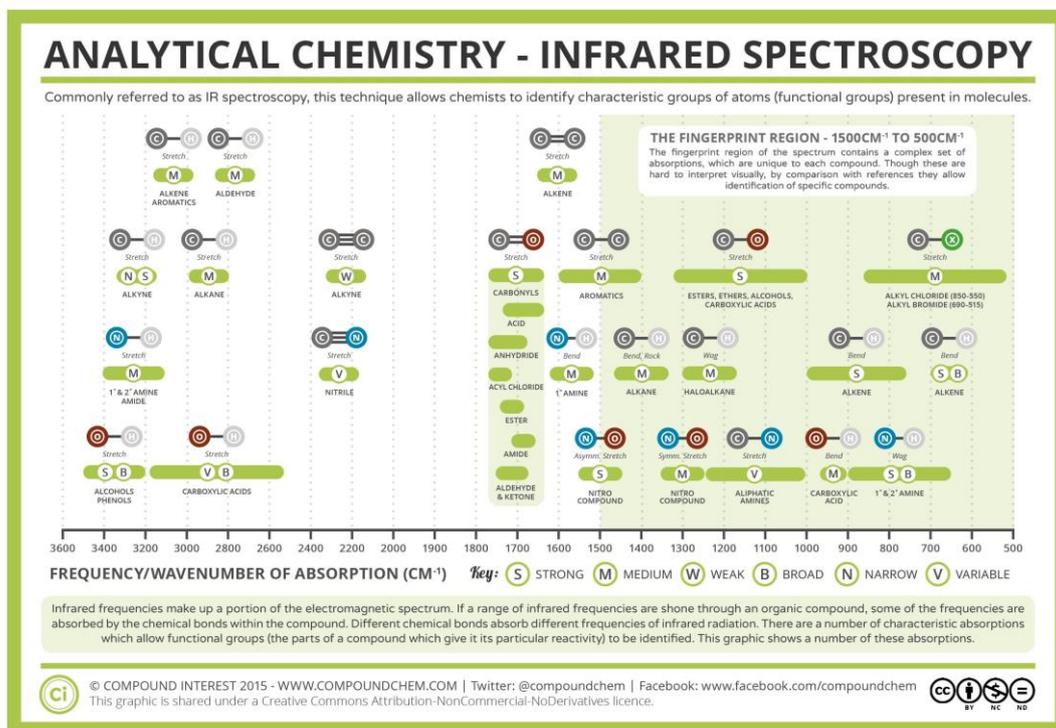


Figure 1 – Présentation des principales liaisons chimiques et leurs fréquences de résonance associées. Figure provenant de CompoundChem [7].

La spectroscopie d'absorption dans l'infrarouge moyen est une technique standard non destructive utilisée dans les différents laboratoires. Dans la plupart des systèmes de spectroscopie, des sources larges bandes dans l'infrarouge moyen sont utilisées. En effet, une source de lumière spectralement large permet de détecter plusieurs molécules distinctes simultanément. Généralement, les sources utilisées sont du type cops noir, présentant un faible coût et une compacité intéressante. Cependant, elles présentent plusieurs limites techniques. Ces émetteurs thermiques sont spatialement incohérents, omnidirectionnels et la puissance en sortie est relativement faible [8]. Citons par exemple, la puissance de la source commerciale Arcoptix ARCLIGHT-MIR (SiC global) émettant sur la gamme 1-25 μm associée au couplage dans une fibre multimode à cœur creux, celle-ci est de moins de 1 mW.

Le développement de la technologie laser à partir des années 1960 a permis des avancées considérables. Les lasers possèdent des propriétés intéressantes, ils sont unidirectionnels, ont une excellente qualité de faisceau, une forte cohérence spatiale et une forte puissance [9]. De nombreux travaux ont permis d'obtenir des sources larges bandes à partir d'une source laser puissante quasi-monochromatique. En effet, depuis la première génération de supercontinuum (SC) démontrée dans les années 1970 par Alfano et Shapiro, les sources SC ont été beaucoup étudiées [10]. Un SC est une source laser qui voit son spectre s'élargir spectralement via différents phénomènes non-linéaires. Différents milieux ont été utilisés pour générer des sources larges bandes, que ce soit des milieux solides, liquides ou gazeux. Les premiers résultats sur fibres ont été obtenus dans des fibres silice en 1978, avec un spectre allant de 0,7 à 2,1 μm [11]. Ces différents développements ont menés par la suite, à la génération du « laser blanc » [12].

Durant la dernière décennie, plusieurs dispositifs optiques non-linéaires ont été testés afin de générer des sources larges bandes dans l'infrarouge moyen. C'est notamment le cas avec l'utilisation de cristaux non-linéaires. Lesko *et al.* [13], ont reporté une source large bande, sur 6 octaves depuis 350 nm jusqu'à 22,5 μm via l'utilisation de cristaux de LiNbO_3 , GaSe et CdSiP_2 . Pigeon *et al.* [14] ont également obtenu un SC allant de 2 à 20 μm dans 67 mm de cristal GaAs avec des impulsions de 3 ps, une puissance de 2 GW et une longueur d'onde de 9,3 μm . L'utilisation d'autres plateformes non-linéaires a également intéressée les équipes de recherche, et notamment avec les guides d'onde [15–17]. Récemment, un spectre SC allant de 3 à 13 μm , a d'ailleurs été reporté dans un guide d'onde SiGe, riche en germanium avec une pompe à 8,5 μm . Les plateformes photoniques au silicium (Si) présentent des avantages certains, grâce notamment à une technologie de fabrication mature. Ces résultats ouvrent la voie pour la génération de spectre large spectralement dans l'infrarouge, avec des dispositifs compacts sur puce.

La fabrication et la mise en forme de fibres optiques depuis les années 1970, ont également permis de surmonter certains défis pour la génération de SC. Un très large éventail de matériaux a été exploré pour produire des fibres pour l'infrarouge moyen, avec le développement des verres chalcogénures, de tellurites ou encore de fluorure [18]. Les pertes optiques des fibres optiques sont généralement plus faibles que les guides d'onde, permettant ainsi l'utilisation d'une plus grande longueur d'interaction. Plusieurs travaux ont été menés pour contrôler les propriétés de dispersion des fibres, par la fabrication de fibres avec des profils spéciaux (fibre à saut d'indice ou fibre microstructurée). Ces fibres spéciales associées à des sources de fortes puissances ont permis des avancées considérables dans l'infrarouge moyen. Petersen *et al.* [19] ont reporté en 2014, le premier spectre obtenu avec une fibre allant au-delà de 13 μm . Depuis, plusieurs équipes de recherche tentent de développer des sources SC dans le MIR avec des fibres. Ces sources répondent à diverses propriétés (cohérence, largeur spectrale, planéité ou encore puissance moyenne) nécessaires pour des applications spécifiques [8,20–24]. À noter que la plupart des sources SC commerciales sont situées dans la région spectrale de 2 à 5 μm . Nous pouvons mentionner une source SC fibrée commercialisée par Norblis, allant de 2 à 10 μm avec 50 mW en puissance [25]. Depuis plus récemment, l'entreprise Thorlabs commercialise une source basée sur un SC fibré associé à un cristal ZGP, générant un spectre allant de 3,5 à 11 μm pour une puissance de plus de 20 mW [26]. Il existe donc une dynamique internationale, dans le domaine de la génération de SC sur fibre pour l'infrarouge moyen. Le développement de ces sources SC permet d'avoir une brillance importante, de 5 ordres de grandeur supérieure à celle des sources corps noir, et de 1 à 2 ordres de grandeur à celle des sources synchrotron dans l'infrarouge. Ces sources plus compactes sont qualifiées par Petersen *et al.* [27], comme des sources « synchrotron-sur-table » Ces sources SC présentent donc des avantages certains, en comparaison aux sources corps noir. Zorin *et al.* [8] ont d'ailleurs comparé ces sources SC avec des systèmes plus standards et ont montré l'intérêt notamment pour la spectroscopie dans l'infrarouge [28].

Cette thématique de recherche de génération de SC dans l'infrarouge moyen est beaucoup étudiée au sein de l'équipe SAFIR du laboratoire ICB. En effet, depuis plusieurs années, des efforts sont menés sur la mise en forme de verres pour l'infrarouge et de fibres optiques chalcogénures spéciales.

Ainsi différents profils ont été fabriqués, avec des fibres à saut d'indice et des fibres microstructurées à cœur suspendu. L'utilisation de ces fibres avec des sources lasers aux durées d'impulsion ps ou fs et des longueurs d'onde de pompe différentes a permis de générer des SC de plus en plus large spectralement. La Figure 2 illustre l'évolution des principaux résultats obtenus dans des fibres chalcogénures au sein de l'équipe. Un spectre recouvrant la gamme de l'infrarouge moyen a pu être obtenu grâce à l'utilisation d'une fibre optique à saut d'indice optimisée ainsi qu'une source laser de forte puissance crête [29]. C'est dans ce contexte, au sein de l'équipe SAFIR, que s'inscrivent les travaux de recherche de cette thèse, débutée à l'automne 2021.

Les objectifs de cette thèse sont : (i) de développer des sources SC allant le plus loin possible dans l'infrarouge moyen pour recouvrir toute la bande 2-20 μm ; (ii) de maximiser le couplage de l'énergie dans la fibre optique permettant alors une montée en puissance significative par rapport à l'état de l'art ; (iii) et de réaliser une preuve de concept de spectroscopie d'absorption sur cette bande spectrale 2-20 μm . Les travaux de recherche menés dans cette thèse ont donc une forte composante expérimentale, que ce soit par l'utilisation de différentes chaînes laser dans le MIR ainsi que la mise en forme de fibres optiques effilées. Des simulations numériques sont également réalisées pour confirmer les différents résultats expérimentaux.

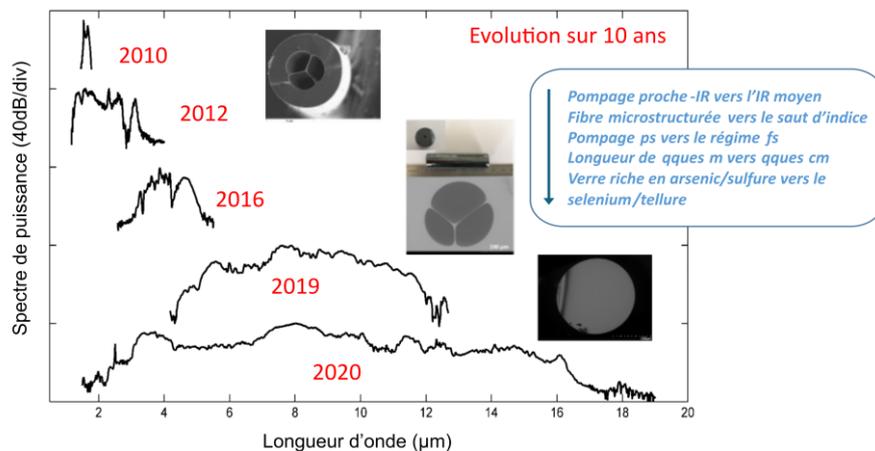


Figure 2 – État de l'art des SC obtenus dans des fibres chalcogénures au sein du laboratoire ICB et de l'équipe SAFIR [29–32].

Dans le Chapitre I, nous présentons les propriétés principales des fibres optiques pour l'infrarouge et plus spécifiquement sur la génération de SC. Un état de l'art portant sur les sources SC dans l'infrarouge est également réalisé, ainsi que la présentation de quelques applications possibles avec ce type de sources.

Le Chapitre II présente les différentes techniques et dispositifs expérimentaux utilisés au cours de ces travaux de recherche. La description et la caractérisation du banc optique de génération de SC sont réalisées, ainsi que la fabrication et caractérisation d'une fibre chalcogénure effilée. Enfin, nous présentons les différents outils numériques utilisés pour modéliser les SC.

Le Chapitre III explore la génération de SC dans des fibres Ge-Se-Te, avec différentes sources de pompage laser, afin d'obtenir un spectre large dans l'infrarouge avec une forte puissance moyenne. Les fibres optiques utilisées dans ces expériences sont des fibres mono-indices. Cela signifie qu'il n'y a pas de structure interne dans la fibre (cœur/gaine ou microstructure), le guidage de la lumière se fait aux interfaces verre/air. Plusieurs sources laser ont été utilisées, avec des cadences de répétition différentes. Des élargissements spectraux importants ont ainsi été obtenus avec également de fortes puissances moyennes, avec de simples fibres Ge-Se-Te effilées.

Le Chapitre IV étudie le concept de fibre effilée mono-indice pour la génération de SC, dans d'autres verres et gammes spectrales. Une nouvelle composition de verre chalcogénures est utilisée avec le système vitreux Te-As-Se. Des spectres larges spectralement sont obtenus avec ces fibres, mais des problèmes d'endommagements dus au laser sont également relevés. Une autre famille de verre est également utilisée, avec les verres tellurites. Une nouvelle fois, une simple fibre effilée est utilisée pour générer des spectres larges avec une forte puissance en sortie de fibre. Dans une tout autre gamme spectrale, une fibre silice commerciale effilée est utilisée avec notre chaîne laser travaillant jusqu'au MHz.

Avec le Chapitre V, nous explorons les possibilités de génération de SC, dans des fibres Ge-Te-AgI, que ce soit expérimentalement ou numériquement. Dans une deuxième partie, nous présentons des premières mesures de spectroscopie d'absorption par ondes évanescentes (FEWS), au moyen de fibres effilées Te-As-Se. L'absorption entre 9 et 10 μm de l'éthanol est alors étudiée avec une fibre à double fonction optique (génération de SC et FEWS).

En annexe, je présente deux autres études réalisées au cours de cette thèse. Une première annexe présente les résultats expérimentaux mais également numériques de génération de SC avec un système tout-fibré faisant intervenir diverses fibres Ge-Se-Te. La deuxième annexe traite de l'analyse de fibres tellurites à dispersion décalée et leurs potentielles applications. Dans ces deux études, j'ai réalisé les différentes simulations numériques.

Les travaux expérimentaux présentés dans ce manuscrit ont bénéficié des équipements de la plateforme technologique SMARTLIGHT (Investissements d'Avenir, EQUIPEX+ Smartlight, contrat n°ANR-21-ESRE-0040).

Bibliographie

1. H. Chen, L. Gao, Z. Qin, Y. Ge, K. Khan, Y. Song, G. Xie, S. Xu, and H. Zhang, "Recent advances of low-dimensional materials in Mid- and Far-infrared photonics," *Applied Materials Today* **21**, 100800 (2020).
2. M. G. Allen, "Diode laser absorption sensors for gas-dynamic and combustion flows," *Meas. Sci. Technol.* **9**, 545–562 (1998).
3. "Spectrabase," <https://spectrabase.com/>.
4. M. L. Brandily, V. Monbet, B. Bureau, C. Boussard-Plédel, O. Loréal, J. L. Adam, and O. Sire, "Identification of foodborne pathogens within food matrices by IR spectroscopy," *Sensors and Actuators B: Chemical* **160**, 202–206 (2011).
5. M. Le Corvec, F. Charpentier, A. Kachenoura, S. Bensaid, S. Henno, E. Bardou-Jacquet, B. Turlin, V. Monbet, L. Senhadji, O. Loréal, O. Sire, J. F. Betagne, H. Tariel, and F. Lainé, "Fast and Non-Invasive Medical Diagnostic Using Mid Infrared Sensor," *IRBM* **37**, 116–123 (2016).
6. B. Napier, O. Bang, C. Markos, P. Moselund, L. Huot, F. J. M. Harren, A. Khodabakhsh, H. Martin, F. O. Briano, L. Balet, S. Lecomte, C. R. Petersen, N. Israelsen, D. Bastviken, M. Gålfalk, Ł. Kubiszyn, and P. Warzybok, "Ultra-broadband infrared gas sensor for pollution detection: the TRIAGE project," *J. Phys. Photonics* **3**, 031003 (2021).
7. "IR Spectroscopy," <https://www.compoundchem.com/2015/02/05/irspectroscopy/>.
8. I. Zorin, P. Gattinger, A. Ebner, and M. Brandstetter, "Advances in mid-infrared spectroscopy enabled by supercontinuum laser sources," *Opt. Express* **30**, 5222 (2022).
9. P. Shukla, J. Lawrence, and Y. Zhang, "Understanding laser beam brightness: A review and new prospective in material processing," *Optics & Laser Technology* **75**, 40–51 (2015).
10. R. R. Alfano and S. L. Shapiro, "Emission in the Region 4000 to 7000 Å Via Four-Photon Coupling in Glass," *Phys. Rev. Lett.* **24**, 584–587 (1970).
11. C. Lin, V. T. Nguyen, and W. G. French, "Wideband near-i.r. continuum (0.7–2.1 μm) generated in low-loss optical fibres," *Electronics Letters* **14**, 822–823 (1978).
12. A. Kudlinski and A. Mussot, "Sources supercontinuum à fibre optique - La révolution du laser blanc," 18 (2011).
13. D. M. B. Lesko, H. Timmers, S. Xing, A. Kowligy, A. J. Lind, and S. A. Diddams, "A six-octave optical frequency comb from a scalable few-cycle erbium fibre laser," *Nat. Photonics* **15**, 281–286 (2021).
14. J. J. Pigeon, S. Y. Tochitsky, C. Gong, and C. Joshi, "Supercontinuum generation from 2 to 20 μm in GaAs pumped by picosecond CO₂ laser pulses," *Opt. Lett.*, OL **39**, 3246–3249 (2014).
15. C.-S. Brès, A. Della Torre, D. Grassani, V. Brasch, C. Grillet, and C. Monat, "Supercontinuum in integrated photonics: generation, applications, challenges, and perspectives," *Nanophotonics* **12**, 1199–1244 (2023).
16. A. Della Torre, M. Sinobad, R. Armand, B. Luther-Davies, P. Ma, S. Madden, A. Mitchell, D. J. Moss, J.-M. Hartmann, V. Reboud, J.-M. Fedeli, C. Monat, and C. Grillet, "Mid-infrared supercontinuum generation in a low-loss germanium-on-silicon waveguide," *APL Photonics* **6**, 016102 (2021).
17. D. Ren, C. Dong, and D. Burghoff, "Integrated nonlinear photonics in the longwave-infrared: A roadmap," *MRS Communications* (2023).
18. G. Tao, H. Ebendorff-Heidepriem, A. M. Stolyarov, S. Danto, J. V. Badding, Y. Fink, J. Ballato, and A. F. Abouraddy, "Infrared fibers," *Adv. Opt. Photon.* **7**, 379 (2015).
19. C. R. Petersen, U. Møller, I. Kubat, B. Zhou, S. Dupont, J. Ramsay, T. Benson, S. Sujecki, N. Abdel-Moneim, Z. Tang, D. Furniss, A. Seddon, and O. Bang, "Mid-infrared supercontinuum covering the 1.4–13.3 μm molecular fingerprint region using ultra-high NA chalcogenide step-index fibre," *Nature Photon* **8**, 830–834 (2014).
20. T. Cheng, K. Nagasaka, T. H. Tuan, X. Xue, M. Matsumoto, H. Tezuka, T. Suzuki, and Y. Ohishi, "Mid-infrared supercontinuum generation spanning 2 to 15.1 μm in a chalcogenide step-index fiber," *Opt. Lett.* **41**, 2117 (2016).
21. Z. Zhao, B. Wu, X. Wang, Z. Pan, Z. Liu, P. Zhang, X. Shen, Q. Nie, S. Dai, and R. Wang, "Mid-infrared supercontinuum covering 2.0–16 μm in a low-loss telluride single-mode fiber: Mid-infrared

- supercontinuum covering 2.016 μm in a low-loss telluride single-mode fiber," *Laser & Photonics Reviews* **11**, 1700005 (2017).
22. D. D. Hudson, S. Antipov, L. Li, I. Alamgir, T. Hu, M. E. Amraoui, Y. Messaddeq, M. Rochette, S. D. Jackson, and A. Fuerbach, "Toward all-fiber supercontinuum spanning the mid-infrared," *Optica* **4**, 1163 (2017).
 23. M. Zhong, X. Liang, J. Xiao, G. Wu, K. Jiao, X. Wang, T. Xu, J. Liu, Z. Zhao, X. Wang, R. Wang, Y. Zhou, P. Zhang, Y. Liu, and Q. Nie, "Ultra - large mode area mid - infrared fiber based on chalcogenide glasses extrusion," *J. Am. Ceram. Soc.* **104**, 343–349 (2021).
 24. C. R. Petersen, R. D. Engelsholm, C. Markos, L. Brilland, C. Caillaud, J. Trolès, and O. Bang, "Increased mid-infrared supercontinuum bandwidth and average power by tapering large-mode-area chalcogenide photonic crystal fibers," *Opt. Express* **25**, 15336 (2017).
 25. "Source Norblis," <https://norblis.com/index.php/products/aurora-supercontinuum-laser>.
 26. R. Salem, S. Backus, D. Liu, C. Wan, S. Domingue, M. Kirchner, A. Cable, and P. Fendel, "5-11 μm Supercontinuum Generation Using Cascaded Nonlinearities in Fluoride Fiber and ZGP," in *Conference on Lasers and Electro-Optics (2021), Paper STh1L.5* (Optica Publishing Group, 2021), p. STh1L.5.
 27. C. R. Petersen, P. M. Moselund, L. Huot, L. Hooper, and O. Bang, "Towards a table-top synchrotron based on supercontinuum generation," *Infrared Physics & Technology* **91**, 182–186 (2018).
 28. I. Zorin, J. Kilgus, K. Duswald, B. Lendl, B. Heise, and M. Brandstetter, "Sensitivity-Enhanced Fourier Transform Mid-Infrared Spectroscopy Using a Supercontinuum Laser Source," *Appl Spectrosc* **74**, 485–493 (2020).
 29. A. Lemièrre, R. Bizot, F. Désévéday, G. Gadret, J.-C. Jules, P. Mathey, C. Aquilina, P. Béjot, F. Billard, O. Faucher, B. Kibler, and F. Smektala, "1.7–18 μm mid-infrared supercontinuum generation in a dispersion-engineered step-index chalcogenide fiber," *Results in Physics* **26**, 104397 (2021).
 30. A. Lemièrre, F. Désévéday, P. Mathey, P. Froidevaux, G. Gadret, J.-C. Jules, C. Aquilina, B. Kibler, P. Béjot, F. Billard, O. Faucher, and F. Smektala, "Mid-infrared supercontinuum generation from 2 to 14 μm in arsenic- and antimony-free chalcogenide glass fibers," *J. Opt. Soc. Am. B* **36**, A183 (2019).
 31. I. Savelli, O. Mouawad, J. Fatome, B. Kibler, F. Désévéday, G. Gadret, J.-C. Jules, P.-Y. Bony, H. Kawashima, W. Gao, T. Kohoutek, T. Suzuki, Y. Ohishi, and F. Smektala, "Mid-infrared 2000-nm bandwidth supercontinuum generation in suspended-core microstructured Sulfide and Tellurite optical fibers," *Opt. Express, OE* **20**, 27083–27093 (2012).
 32. M. El-Amraoui, J. Fatome, J. C. Jules, B. Kibler, G. Gadret, C. Fortier, F. Smektala, I. Skripatchev, C. F. Polacchini, Y. Messaddeq, J. Troles, L. Brilland, M. Szpulak, and G. Renversez, "Strong infrared spectral broadening in low-loss As-S chalcogenide suspended core microstructured optical fibers," *Opt. Express* **18**, 4547 (2010).

Chapitre I

Fibres optiques pour l'infrarouge et génération de supercontinuum

Résumé du chapitre : Ce chapitre présente des notions sur les fibres optiques pour la génération de supercontinuum (SC) dans l'infrarouge. Les mécanismes nécessaires à la génération de SC sont également présentés ainsi qu'un état de l'art sur les différents SC obtenus dans l'infrarouge moyen. Enfin, quelques applications sont présentées.

Table des matières

1.	Fibres optiques pour l'infrarouge	11
1.1.	Introduction.....	11
1.2.	Matériaux pour l'infrarouge.....	12
1.2.1.	Transparence optique.....	12
1.2.2.	Familles de verre pour l'infrarouge	13
1.2.3.	Principales caractéristiques optiques	14
1.3.	Fibres optiques pour l'infrarouge.....	17
1.3.1.	Différents types de fibres optiques	17
1.3.2.	Pertes optiques de la fibre optique.....	18
1.3.3.	Dispersion de la fibre optique.....	19
2.	Génération de supercontinuum.....	20
2.1.	Processus et dynamique de génération de supercontinuum	20
2.1.1.	En dispersion normale	20
2.1.2.	En dispersion anormale	23
3.	État de l'art de génération de supercontinuum dans l'infrarouge.....	26
3.1.	Génération de supercontinuum dans les fibres tellurites et fluores.....	26
3.2.	Génération de supercontinuum dans les fibres chalcogénures.....	27
3.2.1.	Spectres les plus optimisés dans l'infrarouge moyen	28
3.2.2.	Perspectives	30
3.3.	Génération de supercontinuum avec des systèmes en cascade	30
4.	Applications d'un supercontinuum dans l'infrarouge	31
5.	Conclusion.....	32

1. Fibres optiques pour l'infrarouge

1.1. Introduction

Au cours des 25 dernières années, différents groupes de recherche du monde entier ont déployé de nombreux efforts et mené des recherches intensives sur la génération de supercontinuum (SC), en ciblant notamment une émission de lumière très large, en particulier dans l'infrarouge (IR). Bien que les gammes spectrales UV et visible soient également intéressantes de ce point de vue, nous nous concentrerons ici uniquement sur la gamme spectrale de l'infrarouge. Ces différents travaux ont été basés, d'une part, sur la compréhension profonde des effets optiques non-linéaires dans les fibres optiques. D'autre part, ces études se sont aussi concentrées sur une activité intense dédiée à la maîtrise de la synthèse et des propriétés des matériaux, avec la fabrication de fibres optiques à partir de propriétés opto-géométriques appropriées. Tout cela est lié à la maturation de technologies de pointe liées aux lasers à impulsions ultracourtes délivrant des puissances crête élevées permettant d'initier des interactions non linéaires dans les guides d'ondes [1–3].

La combinaison de ces différentes recherches a permis cette formidable évolution des fibres pour supercontinuum, depuis la toute première tentative en 1976 par Lin et Stolen. En effet, le premier supercontinuum obtenu était de seulement quelques centaines de nm dans le domaine visible d'une fibre en silice [4,5]. En effet, il a été nécessaire de pouvoir comprendre, contrôler et surmonter les défauts inhérents à la conversion non-linéaire à large bande pendant la propagation de l'impulsion dans une fibre optique. Autrement dit, différents paramètres ont été étudiés, à savoir l'optimisation de la densité de puissance spectrale, le seuil d'endommagement, la cohérence et les problèmes de stabilité. Et aujourd'hui, même si tous les objectifs ne sont pas encore atteints, des sources supercontinuum commerciales sont disponibles, avec suffisamment de robustesse et de fiabilité pour être utilisées par des non-experts de l'optique non-linéaire. Ces sources commerciales sont essentiellement basées sur des fibres de silice ou de fluorure. Pour ces sources supercontinuum pompées dans le proche infrarouge, une puissance de sortie moyenne de l'ordre du watt est disponible sur une plage allant de 0,4 μm à 2,4 μm pour les fibres de silice, et atteignant 4,8 μm pour les fibres de fluorure. Récemment, les fibres de chalcogénure ont commencé à être utilisées, dans un montage en cascade impliquant la combinaison d'une fibre de silice, d'une fibre de fluorure et d'une fibre de chalcogénure, pompées par un laser à fibre dopé à l'erbium. Cette configuration permet de couvrir une gamme de longueurs d'onde de 8 μm , de 2 μm à 10 μm . Ainsi, cela correspond à une partie seulement de la bande de l'infrarouge moyen (2-20 μm), avec une faible puissance (de l'ordre de 16 mW) [1]. Bien que des sources SC à base de fibres aient été mises sur le marché, elles présentent toujours une faible conversion d'énergie et une extension limitée dans l'infrarouge moyen. En revanche, d'autres problèmes subsistent, comme la densité de puissance, la stabilité des impulsions, le degré de cohérence et le contrôle de la polarisation. En particulier, leur architecture compacte reste basée sur des sources laser de pompage dans le proche infrarouge, combinées à des fibres en silice ou/et en fluorure. Malgré l'abondante littérature sur le sujet, le potentiel des fibres infrarouges moyennes pour la génération de SC n'a pas encore été entièrement exploré. Ainsi des améliorations significatives sont encore possibles pour permettre la création de nouveaux systèmes dans un avenir proche. Récemment, des sources SC atteignant la limite de 18 μm ont été démontrées [6] et des efforts sont déployés pour aller plus loin dans la gamme THz, avec pour objectif d'atteindre la limite fondamentale de 30 μm des verres de tellure.

Dans ce qui suit, l'état de l'art des réalisations dans le domaine des fibres infrarouges pour la génération de supercontinuum sera présenté. Les fibres infrarouges intéressantes de ce point de vue sont essentiellement des fibres non basées sur la silice, mais sur les trois principales familles de verre présentant une transparence infrarouge étendue, à savoir les verres d'oxyde lourd (tellurites, germanates...), de fluorure et de chalcogénure. En fonction de la composition du verre, différentes gammes spectrales peuvent être couvertes par les fibres correspondantes. Les verres d'oxyde lourd ou de fluorure conviennent à la génération de SC dans la gamme de 1 à 5 μm , tandis que les verres de chalcogénure sont dédiés à l'infrarouge moyen pour couvrir la gamme de 2 à 20 μm et même au-delà.

1.2. Matériaux pour l'infrarouge

1.2.1. Transparence optique

La transparence optique demeure une caractéristique fondamentale pour définir un verre. Ainsi, chaque verre va transmettre sur une plage variée de longueurs d'onde. Cette plage est désignée comme la fenêtre de transmission du verre. Cette fenêtre de transmission est comprise entre la bande interdite, qui se trouve aux courtes longueurs d'onde, et l'absorption multiphonon aux grandes longueurs d'onde.

1.2.1.1. *Bande interdite*

La bande interdite reflète les transitions électroniques des électrons entre la bande de valence et la bande de conduction du matériau. Ces transitions ne se produisent que si l'énergie du photon dépasse la différence entre l'énergie de la bande de conduction et celle de la bande de valence. Dans les matériaux vitreux, des états électroniques non localisés sont présents, situés juste au-dessus de la bande de valence et immédiatement en-dessous de la bande de conduction. L'énergie de la bande interdite E_{gap} est définie de la manière suivante :

$$E_g = \frac{hc}{\lambda_g} \quad (I.1)$$

Avec h la constante de Planck, c la célérité de la lumière dans le vide.

1.2.1.2. *Absorption multiphonon*

L'absorption multiphonon, limitant la transmission aux grandes longueurs d'onde, provient de l'interaction de la lumière avec les modes de vibration des différentes liaisons chimiques des molécules présentes dans le verre. Nous pouvons relier ces vibrations directement à la masse des différents atomes. En réalisant une analogie avec un oscillateur harmonique, nous pouvons comparer deux atomes à un système masse-ressort de masses respectives m_1 et m_2 , la fréquence de résonance ν pourra se mettre sous la forme :

$$\nu = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{k}{\mu}} \quad \text{avec} \quad \frac{1}{\mu} = \frac{1}{m_1} + \frac{1}{m_2} \quad (I.2)$$

où k est la constante de force des liaisons atomiques et μ la masse réduite du système.

Nous remarquons que plus les atomes seront lourds, plus l'absorption multiphonon sera déplacée aux grandes longueurs d'onde dans l'infrarouge. Les verres de chalcogénures composés d'atomes « lourds », comme le Tellure ($M_{\text{Te}} = 127,60 \text{ g.mol}^{-1}$) ou le Sélénium par exemple ($M_{\text{Se}} = 78,96 \text{ g.mol}^{-1}$), auront tendance à décaler l'absorption dans l'infrarouge plus loin que dans le cas des verres d'oxydes, à cause de la faible masse molaire de l'atome d'Oxygène ($M_{\text{O}} = 16,00 \text{ g.mol}^{-1}$).

1.2.1.3. *Autres sources d'absorption*

D'autres absorptions peuvent dégrader la transmission d'un verre. En effet, la présence d'impuretés dans le matériau peut provoquer des bandes d'absorption dans le spectre. Ces impuretés peuvent provenir des précurseurs utilisés pour la fabrication du verre ou de l'environnement extérieur, comme la présence d'eau dans l'atmosphère par exemple. Le Tableau **I.1** présente les longueurs d'onde des principales bandes d'absorption que nous pouvons identifier dans les verres de chalcogénures.

1.2.1.4. *Diffusion*

La transmission du verre peut également être diminuée par la diffusion. Il existe deux types de diffusion de la lumière. La première, appelée diffusion élastique, n'a pas d'impact sur l'énergie de l'onde lumineuse, tandis que la seconde nommée diffusion inélastique, modifie l'énergie de l'onde lumineuse diffusée. Dans la diffusion élastique, nous pouvons en distinguer trois types : la diffusion de Rayleigh et la diffusion de Mie, qui dépendent de la longueur d'onde, ainsi qu'une diffusion qui est indépendante de la longueur d'onde.

La diffusion de Rayleigh prédomine aux courtes longueurs d'ondes et conditionne le minimum théorique d'atténuation possible de la fibre optique. Cette diffusion est proportionnelle à λ^{-4} [11].

La diffusion de Mie est également plus importante aux courtes longueurs d'ondes car elle est proportionnelle à λ^{-2} . Elle apparaît lorsque la taille des centres diffusants est comparable à celle de la longueur d'onde. À l'inverse de la diffusion de Rayleigh, cette diffusion peut être limitée lors des étapes de fabrication [12].

La dernière diffusion, indépendante de la longueur d'onde, peut être expliquée par un effet lentille engendré par des bulles ou des cristaux dans le matériau [13].

Tableau I.1 – Longueurs d'onde des principales bandes d'absorption des impuretés que nous pouvons identifier dans les verres de chalcogénures [7–10].

Espèce moléculaire absorbante	Longueur d'onde d'absorption (μm)
O-H	2,92
Se-H	2,32
	3,55
	4,15
	4,57
	4,90
S-H	7,8
	3,64
H ₂ O (eau moléculaire)	4,00
	2,29
CO ₂	6,30
	4,26

1.2.2. Familles de verre pour l'infrarouge

La transparence intrinsèque des verres dépend donc de leur composition chimique comme vu aux points précédents. Bien entendu, la qualité optique finale des verres est fortement liée à leur synthèse. Pour atteindre la transparence intrinsèque, il faut pouvoir fabriquer des verres de grande pureté. En principe, plus les éléments entrant dans la composition du verre sont lourds, plus l'énergie fondamentale des phonons (E_p) est faible et, par conséquent, plus l'absorption multiphonon est décalée [14–16]. En règle générale, l'énergie des phonons du verre de silice, liée à la force de liaison entre le silicium et l'oxygène, est $E_p = 1100 \text{ cm}^{-1}$. Ainsi cela conduit à une longueur d'onde d'absorption multiphonon d'environ $3 \mu\text{m}$, pour un échantillon de plusieurs millimètres d'épaisseur.

Les verres de tellurite, basés sur l'oxyde de tellure (TeO_2) présentent une énergie de phonon autour de $E_p = 700 \text{ cm}^{-1}$ et une coupure multiphonon autour de $6 \mu\text{m}$. Le verre est synthétisé dans des conditions sèches, pour éviter les absorptions extrinsèques dues à la pollution de l'eau, qui peuvent limiter la fenêtre de transparence dès $2,8 \mu\text{m}$ [17]. Il existe de nombreuses compositions dans divers systèmes chimiques, la plus courante étant la famille TZN dans le système $\text{TeO}_2 - \text{ZnO} - \text{Na}_2\text{O}$ [18,19].

Dans le cas des verres fluorés, deux compositions ont attiré l'attention des groupes de recherche, le fluorozirconate (à base de ZrF_4) et le fluoroindate (à base d' InF_3) avec une énergie de phonon autour de $E_p = 500 \text{ cm}^{-1}$ et une coupure multiphonon entre 8 et $9 \mu\text{m}$ sur verre massif. La principale composition commerciale est le verre ZBLAN dans le système $\text{ZrF}_4 - \text{BaF}_2 - \text{LaF}_3 - \text{LaF}_3 - \text{NaF}$. Par ailleurs, ces verres sont également de bons hôtes pour le dopage aux terres rares en raison du fort caractère ionique de leurs liaisons chimiques, contrairement aux verres de silice qui ont un caractère ionique moins poussé. Les principaux défis liés à leur synthèse et à l'étirage des fibres, consistent à éviter l'eau ou la poussière, qui entraînent la cristallisation du verre, ainsi qu'une dégradation de la transparence dans l'infrarouge. Leur

synthèse est donc réalisée dans une atmosphère sèche et propre (boîtes à gants, salles blanches) [20,21]. En comparaison aux silicates, aux tellurites (et oxydes lourds en général) ou encore aux chalcogénures, il y a peu de compositions compatibles au procédé de fibrage avec les verres fluorés.

Dans le cas des verres chalcogénures, c'est le remplacement de l'oxygène par le soufre, le sélénium ou le tellure dans le réseau vitreux qui pousse l'énergie des phonons vers des valeurs plus basses, autour de $E_p = 350$ à 200 cm^{-1} . Même si le sélénium pur permet d'atteindre un verre à partir de lui-même, les éléments chalcogénures sont en général associés à un ou plusieurs éléments semi-métalliques comme le gallium, le germanium, l'arsenic, l'antimoine, etc. La coupure multiphonon est alors repoussée vers les grandes longueurs d'onde et permet d'atteindre des longueurs d'onde supérieures à $8 \mu\text{m}$ et jusqu'à $20 \mu\text{m}$, voire plus. La contrepartie est un déplacement du band-gap vers les grandes longueurs d'onde par rapport aux verres d'oxyde, déplacement qui rend ces verres colorés en jaune à rouge pour les sulfures et non transparents dans le visible (noirs) pour les sélénures et les tellurures. Là encore, la présence d'eau doit être évitée, de même que celle de l'oxygène, qui altère fortement la transmission infrarouge lorsqu'il est présent. Ceci explique que la synthèse soit généralement réalisée en ampoule scellée sous vide, avec purification préalable des produits de départ. De nombreuses compositions sont disponibles pour ces verres, le verre de référence étant l' As_2S_3 [7,22]. La Figure I.1 présente les transmissions des principales familles de verre dans l'infrarouge.

Ces trois familles de verres sont souvent appelées verres mous ou verres à faible T_g , en raison de leur faible température de transition vitreuse (T_g) par rapport à celle de la silice. En effet, leur T_g se situe entre 100°C et 400°C en fonction de la composition donnée (voir Tableau I.2), alors que la T_g de la silice est d'environ 1200°C . Cette température de transition vitreuse représente la température à partir de laquelle le verre commence à se ramollir. Nous pouvons noter qu'en dessous de cette température, la viscosité est supérieure à 10^{15} poises, rendant le matériau figé. La viscosité à la T_g est de 10^{13} poises et pour une température supérieure la viscosité diminue, ainsi les atomes peuvent créer un réseau ordonné, c'est ce qu'on appelle la cristallisation. C'est d'ailleurs en-dessous de cette viscosité (donc au-dessus de cette température T_g) que les procédés de mise en forme ont lieu, en particulier le fibrage.

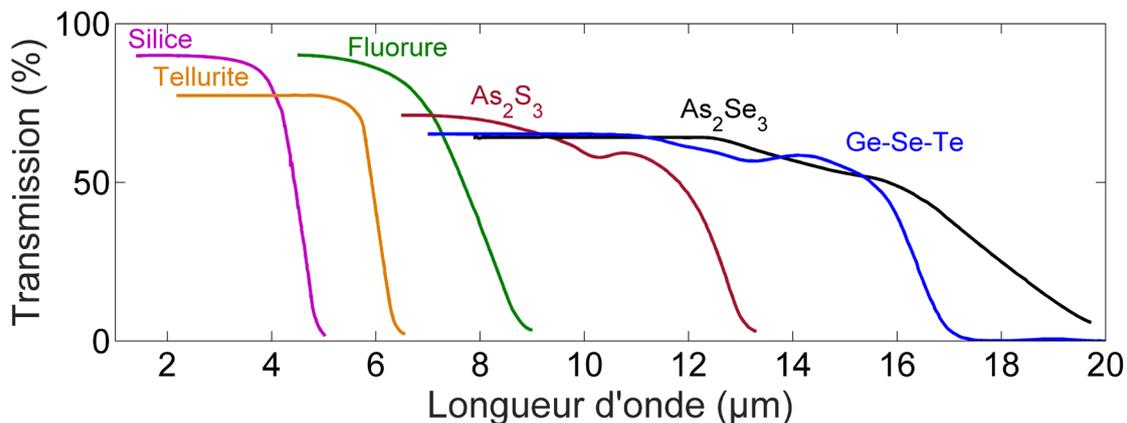


Figure I.1 - Fenêtres de transmission des principales familles de verre, oxydes, fluorures et chalcogénures (As_2S_3 , As_2Se_3 et Ge-Se-Te).

1.2.3. Principales caractéristiques optiques

Le verre est un matériau diélectrique signifiant qu'il ne possède pas de porteurs de charges libres. Les charges présentes dans le matériau sont engagées dans des liaisons chimiques, les rendant incapables de se déplacer à une échelle macroscopique. En présence d'un champ électrique, les charges au sein du verre subissent des déplacements transitoires, s'éloignant légèrement de leur position initiale. Ces déplacements élémentaires se traduisent par l'émergence de moments dipolaires électriques induits dans le matériau, où les charges positives se déplacent d'un côté, tandis que les charges négatives se déplacent de l'autre. En d'autres termes, l'effet d'un champ électrique sur un diélectrique est de provoquer

une polarisation. Si le champ possède une intensité faible, la réponse du matériau va être linéaire et la polarisation induite sera donc proportionnelle au champ. À l'inverse, lorsque l'intensité du champ devient importante, cette polarisation induite ne va plus être proportionnelle et la réponse du matériau devient non-linéaire. Cette polarisation peut s'exprimer de la façon suivante :

$$\vec{P} = \epsilon_0 \left(\chi^{(1)} \cdot \vec{E} + \chi^{(2)} \cdot \vec{E}^2 + \chi^{(3)} \cdot \vec{E}^3 + \dots + \chi^{(n)} \cdot \vec{E}^n \right) \quad (I.3)$$

$$\vec{P} = \vec{P}^{(1)} + \left(\vec{P}^{(2)} + \vec{P}^{(3)} + \dots + \vec{P}^{(n)} \right) \quad (I.4)$$

$$\vec{P} = \vec{P}_L + \vec{P}_{NL} \quad (I.5)$$

où $\chi^{(n)}$ représente la susceptibilité diélectrique du $n^{\text{ème}}$ ordre. Dans l'équation (I.5), le terme P_L représente la polarisation linéaire et P_{NL} la polarisation non-linéaire.

Pour un matériau amorphe comme le verre, la centro-symétrie de la matrice implique l'annulation des susceptibilités diélectriques des ordres pairs. Le principal terme responsable des effets non-linéaires dans un verre ou une fibre optique est donc le terme d'ordre trois ($\chi^{(3)}$). La non-linéarité intrinsèque du verre est caractérisée par l'indice de réfraction non linéaire (n_2) en m^2/W .

Lorsqu'une onde électromagnétique interagit avec les électrons des couches externes d'un matériau diélectrique, la réaction du milieu dépend généralement de la fréquence de l'onde propagée ω . Cette caractéristique se manifeste au travers de l'indice de réfraction du milieu $n(\omega)$, c'est la dispersion chromatique. Ce phénomène physique est relié aux fréquences de résonance auxquelles le milieu absorbe la radiation électromagnétique via des oscillations d'électrons. En se plaçant loin des fréquences de résonance du milieu, l'indice de réfraction peut être approximé par l'équation de Sellmeier [16] :

$$n^2(\omega) = 1 + \sum_{j=1}^n \frac{B_j \omega_j^2}{\omega_j^2 - \omega^2} \quad (I.6)$$

où ω_j sont les pulsations de résonance du matériau dans le vide et les coefficients B_j représentent les forces associées aux résonances.

L'indice de réfraction linéaire du matériau dépend donc de la vitesse à laquelle l'onde électromagnétique se propage en son sein. Il en résulte que, pour une impulsion polychromatique se propageant dans un milieu dispersif, les différentes composantes spectrales vont se propager à des vitesses différentes. Cette dispersion chromatique du milieu (D_m) peut se calculer de la manière suivante :

$$D_m = -\frac{\lambda}{c} \frac{d^2 n}{d\lambda^2} \quad (I.7)$$

avec λ la longueur d'onde, c la célérité de la lumière et n l'indice de réfraction linéaire du milieu approximé avec l'équation de Sellmeier. Cette dispersion D_m s'exprime en $ps.nm^{-1}.km^{-1}$ et correspond à l'étalement temporel de l'impulsion par nanomètre de largeur spectrale et par kilomètre de fibre. En fonction du signe de D , nous pouvons distinguer trois régimes de dispersion :

- Si $D_m < 0$, la dispersion est dite « normale ». Dans ce régime les hautes-fréquences (courtes longueurs d'onde) se propagent plus lentement que les basses-fréquences (hautes longueurs d'onde).
- Si $D_m > 0$, la dispersion est dite « anormale ». Les hautes-fréquences de l'impulsion se propagent plus vite que les basses-fréquences.

- Si $D_m = 0$, régime de dispersion nulle qui est spécifique à chaque matériau. Il existe donc une longueur d'onde où la dispersion s'annule, c'est le *zero dispersion wavelength* (ZDW). À cette longueur d'onde toutes les composantes spectrales se propagent à la même vitesse.

La dispersion chromatique induite par le matériau, telle qu'elle a été décrite jusqu'à présent, ne constitue pas la seule contribution à la dispersion totale d'une fibre optique. En effet, il est essentiel de prendre en compte la dispersion introduite par le guide. Dans la suite de ce chapitre, la dispersion totale de la fibre optique sera décrite.

La composition chimique détermine donc l'indice de réfraction linéaire (n) et la dispersion chromatique du matériau. Le Tableau I.2 donne quelques valeurs typiques pour n , n_2 , le ZDW du matériau, ainsi que la coupure multiphonon, la longueur d'onde du band-gap (λ_{gap}) et la T_g , pour plusieurs compositions de verre de référence des principales familles de verre. La variation de l'indice de réfraction non-linéaire en fonction de l'indice linéaire pour les principales familles de verre est illustrée en Figure I.2.

Tableau I.1 – Principales propriétés optiques et température de transition vitreuse pour certains verres dans le moyen-infrarouge.

	$n @ 1 \mu\text{m}$	$n_2 @ 1.06 \mu\text{m}$	ZDW du matériau (μm)	λ_{gap} (μm)	λ_{mp} (μm)	T_g ($^\circ\text{C}$)
Base InF_3	$\sim 1,5$	$\sim 3 \cdot 10^{-20}$ ($\sim n_2[\text{SiO}_2]$)	$\sim 1,6$	$\sim 0,25$	~ 8	~ 250
Base TeO_2	~ 2	$\sim 2 \cdot 10^{-19}$ ($\sim 10 \times n_2[\text{SiO}_2]$)	$\sim 2,2$	$\sim 0,4$	~ 6	~ 280
As_2S_3	$\sim 2,47$	$\sim 5 \cdot 10^{-18}$ ($\sim 100 \times n_2[\text{SiO}_2]$)	5	0,62	10	200

Comme nous pouvons l'identifier avec la figure ci-dessous, les indices non-linéaires augmentent avec l'indice linéaire. La silice, ainsi que les verres de fluorure, possèdent un indice n_2 bas ($\sim 2,6 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$). Dans le cas des verres de tellurite, nous trouvons un ordre de grandeur en plus en comparaison de la silice et pour les verres de chalcogénures, le n_2 est compris entre 10^{-18} et $10^{-17} \text{ m}^2/\text{W}$. Ces derniers possèdent donc des propriétés non-linéaires plus importantes en comparaison de la silice.

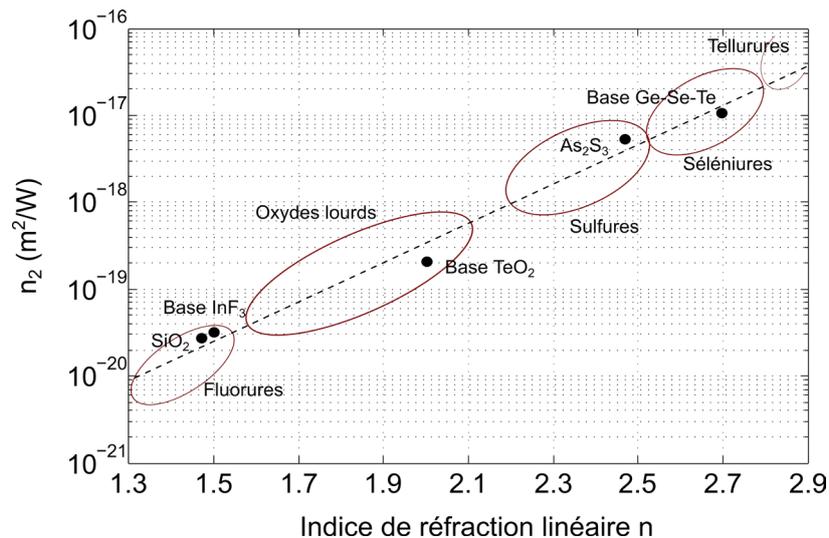


Figure I.2 – Indice de réfraction non-linéaire en fonction de l'indice de réfraction linéaire pour les principales familles de verre.

1.3. Fibres optiques pour l'infrarouge

La qualité optique et le contrôle des paramètres opto-géométriques sont d'une importance primordiale dans la fabrication des fibres supercontinuum infrarouges. Nous ne développerons pas ici les stratégies de synthèse des verres adoptées pour les différentes familles de verre. Ces dernières présentent chacune leurs propres caractéristiques liées à la purification des éléments bruts (traitement réactif, distillation...), aux conditions de synthèse (creusets, air sec, vide...), au procédé (trempe à l'état fondu, extrusion...). Le lecteur est renvoyé vers les différentes descriptions disponibles dans la littérature [7,15,19,20]. Ces conditions de synthèse déterminent la qualité optique intrinsèque du verre. Elles permettent notamment de se débarrasser des bandes d'absorption extrinsèques inadaptées, qui pourraient altérer la fenêtre de transmission du verre, en étant préjudiciables aux interactions optiques non linéaires et à la propagation de la lumière si elles sont trop fortes.

1.3.1. Différents types de fibres optiques

Une fibre optique peut être considérée comme un guide d'onde à géométrie cylindrique composé de deux matériaux vitreux ayant des indices optiques différents : le cœur et la gaine. Le cœur, avec un indice optique plus élevé que celui de la gaine, est le milieu à travers lequel l'onde lumineuse se propage sous certaines conditions. La gaine, quant à elle, sert à confiner la lumière. Il existe plusieurs profils d'indice possible comme illustre la Figure I.3. Le profil standard est le saut d'indice (Fig.I.3 (a)) avec un indice de cœur qui est constant sur la surface. Nous trouvons également les fibres microstructurées avec des trous d'air dans le verre (Fig.I.3 (b)) ou alors les fibres effilées (taper) avec une section fine appelée waist (Fig.I.3 (c)).

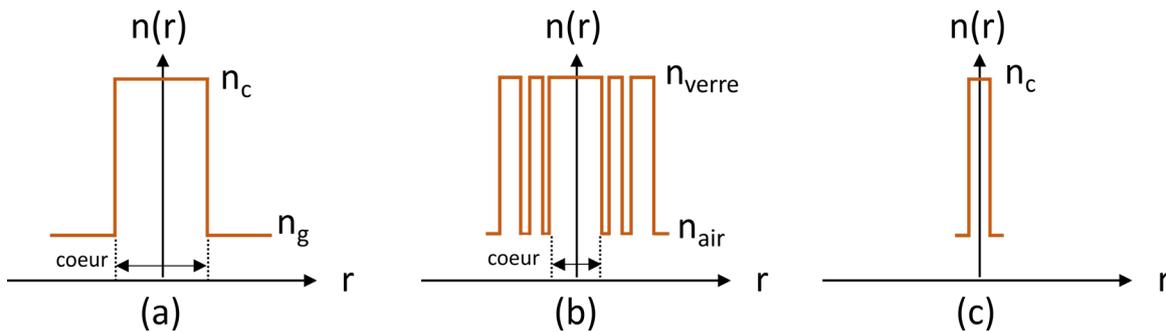


Figure I.3 - Différents profils d'indice : (a) fibre à saut d'indice, (b) fibre microstructurée et (c) fibre effilée (taper).

La Figure I.4 présente des profils de fibres optiques expérimentaux pour des fibres chalcogénures. En fonction du profil de fibre utilisé, un paramètre va être fortement impacté, celui de l'ouverture numérique (ON). Pour rappel, dans une fibre standard à saut d'indice la valeur de l'ouverture numérique est calculée à partir de la différence d'indice de réfraction entre le cœur et la gaine de la manière suivante :

$$ON = \sqrt{n_c^2 - n_g^2} \quad (I.8)$$

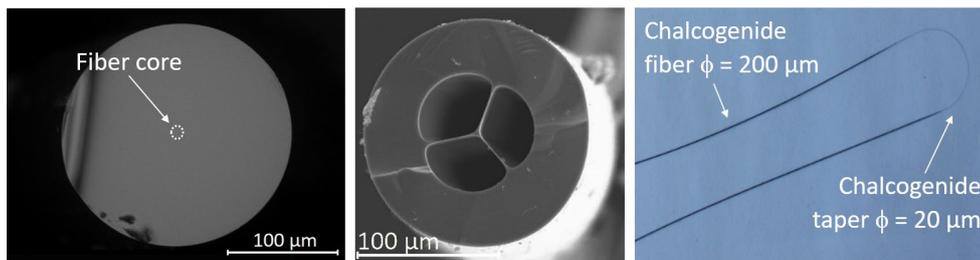


Figure I.4 - Vue en coupe d'une fibre à saut d'indice chalcogénure [24], vue en coupe d'une fibre à cœur suspendu [25] et photographie d'une fibre effilée en chalcogénure.

Cette valeur d'ouverture numérique est importante car elle est liée à la fréquence normalisée V . En effet, avec une approche ondulatoire de la lumière, il existe des conditions d'interférence entre les différentes ondes. Il en résulte un ensemble de solutions vérifiant les équations de Maxwell. Une onde vérifiant ces équations est appelée un mode optique. La fréquence normalisée V s'établit de la façon suivante :

$$V = \frac{2\pi}{\lambda} a \cdot ON \quad (I.9)$$

Pour une longueur d'onde λ et un rayon de cœur a . Une fibre optique à saut d'indice est considérée comme monomode pour $V < 2,405$. Si V est supérieure à cette valeur, plusieurs modes vont se propager, la fibre est donc considérée comme multimode. Chaque mode possède une fréquence de coupure pour laquelle en-dessous de cette valeur, celui-ci n'est plus guidé. Pour une fibre fortement multimode, il est possible d'approximer le nombre de modes guidés de la manière suivante :

$$N_{modes} \approx \frac{V^2}{2} \quad (I.10)$$

1.3.2. Pertes optiques de la fibre optique

Lors de la propagation d'un signal lumineux au sein d'une fibre optique, l'intensité va diminuer à cause de différents phénomènes. En injectant une puissance initiale (P_{in}) dans une fibre optique de longueur L , la puissance en sortie de fibre (P_{out}) s'obtiendra de la manière suivante [11]:

$$P_{out} = P_{in} \exp(-\alpha L) \quad (I.11)$$

avec α la constante d'atténuation mesurée pour la fibre optique par la mesure du cut-back (voir Chapitre II). Usuellement α est exprimé en dB/km. La relation entre α en dB et en unité linéaire est donnée de la façon suivante :

$$\alpha_{dB} = -\frac{10}{L} \log\left(\frac{P_{out}}{P_{in}}\right) = 4,343\alpha \quad (I.12)$$

La perte de propagation linéaire au sein de la fibre optique provient principalement de l'absorption du matériau ou à la diffusion de la lumière aux interfaces des différents matériaux. Lorsqu'un faisceau lumineux est injecté dans une fibre optique, il subit également une perte par réflexion de Fresnel sur la face d'entrée. Ainsi, seulement un pourcentage de la puissance initiale (P_{in}) est couplée dans la fibre (P_c). Cette puissance couplée va ensuite être transmise à la sortie de la fibre optique et subir à nouveau les pertes de Fresnel à l'interface verre/air. Ce coefficient de Fresnel R_F pour une incidence normale est donné par la relation :

$$R_F = \left| \frac{n_1 - n_2}{n_1 + n_2} \right|^2 \quad (1.13)$$

avec n_1 l'indice du milieu 1 et n_2 l'indice du milieu 2. Ces pertes de Fresnel vont être d'autant plus importantes que la différence d'indice entre les deux milieux est élevée. Par exemple, pour un verre de sulfure As_2S_3 ayant un indice de réfraction de 2,42 à la longueur d'onde de 2,5 μm , le coefficient R_F sera de 17%.

La Figure I.5 (a) présente les pertes optiques entrant en jeu lors de la transmission d'un signal optique dans une fibre optique monomode en silice. La fenêtre de transparence de la fibre est encadrée par la bande interdite et l'absorption multiphonon. En comparaison, nous présentons en Figure I.5 (b), la courbe d'atténuation d'une fibre tellurite à saut d'indice. Nous identifions bien l'absorption multiphonon plus loin dans l'infrarouge (vers 4 μm). Nous pouvons également noter un fond continu en dessous de 0,5 dB/m entre 1,5 et 2,8 μm . Ce fond continu est bien plus élevé que dans le cas de la fibre silice, où l'atténuation est mesurée en dB/km. Les pertes sont bien plus élevées dans les fibres pour

l'infrarouge mais cela ne pose pas un obstacle majeur pour la génération de supercontinuum car une courte longueur de fibre est nécessaire (< 10 cm), la non-linéarité étant plus élevée.

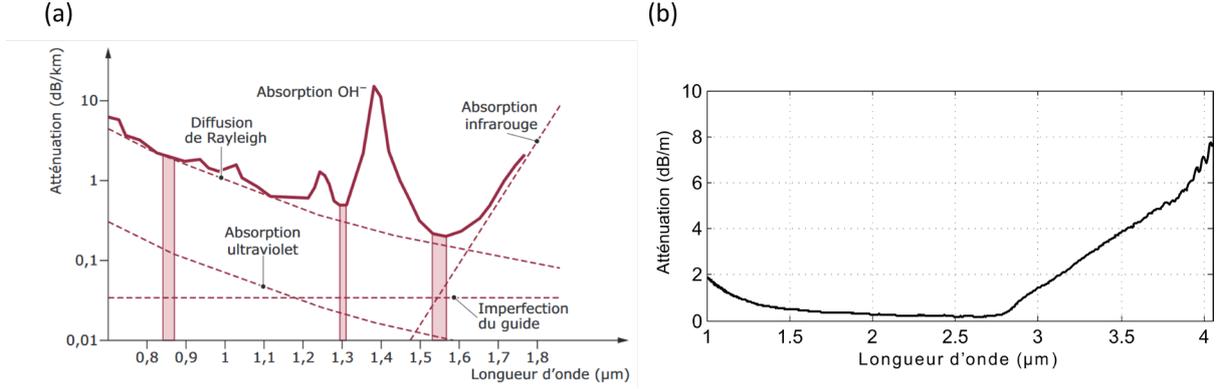


Figure I.5 – Courbe d'atténuation caractéristique (a) d'une fibre monomode en silice [26] et (b) d'une fibre tellurite TZL [27].

1.3.3. Dispersion de la fibre optique

Dans le cas des fibres optiques, la dispersion chromatique globale est la somme de la dispersion du matériau (D_m) et la dispersion introduite par le guide (D_g). Nous avons donc une dispersion globale D s'écrivant de la manière suivante :

$$D = D_m + D_g \quad (I.14)$$

Pour la propagation d'une onde au sein d'une fibre optique, nous pouvons définir une constante de propagation β :

$$\beta(\omega) = n_{eff}(\omega) \frac{\omega}{c} \quad (I.15)$$

Lors de la propagation d'impulsions courtes, la dispersion joue un rôle très important car les différentes composantes spectrales se déplacent à des vitesses différentes déterminées par $c/n(\omega)$. Les effets de dispersion de la fibre optique sont pris en compte par le développement en série de Taylor de la constante de propagation β autour de la fréquence centrale (ω_0) du spectre de l'impulsion :

$$\beta(\omega) = n(\omega) \frac{\omega}{c} = \beta_0 + \beta_1(\omega - \omega_0) + \frac{1}{2}\beta_2(\omega - \omega_0)^2 + \frac{1}{6}\beta_3(\omega - \omega_0)^3 + \dots \quad (I.16)$$

où $\beta_n = \left(\frac{d^n \beta}{d\omega^n}\right)$ avec $n=0,1,2,\dots$

Les premiers coefficients β_1 et β_2 peuvent être reliés à l'indice de phase (n_{eff}) de la manière suivante :

$$\beta_1 = \frac{1}{v_g} = \frac{n_g}{c} = \frac{1}{c} \left(n_{eff} + \omega \frac{\partial n_{eff}}{\partial \omega} \right) \quad (I.17)$$

$$\beta_2 = \frac{1}{c} \left(2 \frac{\partial n_{eff}}{\partial \omega} + \omega \frac{\partial^2 n_{eff}}{\partial \omega^2} \right) \quad (I.18)$$

avec la vitesse de groupe v_g et l'indice de groupe n_g . β_1 est inversement proportionnel à la vitesse de groupe et représente donc la vitesse de l'enveloppe de l'impulsion. Le terme β_2 est le coefficient de dispersion de vitesse de groupe (GVD, group velocity dispersion). Nous exprimons souvent dans la littérature ce paramètre sous la forme :

$$D = \frac{\partial \beta_1}{\partial \lambda} = -\frac{2\pi c}{\lambda^2} \beta_2 \quad (I.19)$$

La dispersion de la fibre optique est un facteur important à prendre en compte pour la génération de supercontinuum. En fonction du régime de dispersion normale $D < 0$ ou anormale $D > 0$, la dynamique de formation va être différente, comme nous allons le voir dans la suite de ce chapitre. Selon la géométrie choisie, les différents profils permettent essentiellement de gérer la dispersion chromatique et la position du ZDW afin de mieux s'adapter à la longueur d'onde du laser d'entrée. Le ZDW peut être fortement déplacé vers des longueurs d'onde plus faibles (par exemple, de l'infrarouge moyen au proche infrarouge) lorsque le diamètre du cœur de la fibre est réduit dans le cas d'une fibre à cœur suspendu par exemple [24]. Le profil de la fibre à saut d'indice a lui, un impact plus faible sur la position du ZDW en raison d'une différence d'indice plus faible. Nous pouvons obtenir avec une conception de fibre appropriée, une dispersion dite « all-normal » ou un profil présentant un ou même plusieurs ZDW [24]. Des fibres étirées peuvent permettre d'obtenir facilement des guides d'ondes présentant une dispersion variable [28,29]. Alors que les fibres à saut d'indice et les fibres microstructurées sont directement étirées sur une tour de fibrage à partir d'une préforme, les fibres effilées (taper) sont généralement traitées ultérieurement. En effet, cela permet de réduire davantage le diamètre des fibres optiques telles qu'elles sont étirées car, souvent, un étirage direct ne permet pas d'atteindre les petits diamètres (de l'ordre de quelques microns ou dizaines de microns) requis.

2. Génération de supercontinuum

En section (1.2.3), il a été vu que les effets non-linéaires dans les matériaux vitreux et donc les fibres optiques ont pour origine la susceptibilité d'ordre 3. Ce $(\chi^{(3)})$ est responsable de phénomènes comme la génération de troisième harmonique, de mélange à quatre ondes et de réfraction non-linéaire [11]. Pour comprendre la dynamique de formation d'un supercontinuum, il faut premièrement définir la durée d'impulsion de la pompe laser.

Nous nous intéresserons dans ce manuscrit uniquement à la génération de SC en impulsion courte (< 1 ps). Une fois la durée d'impulsion déterminée, il faut également définir le régime de dispersion de la fibre utilisée, soit en dispersion normale ou anormale. Différents phénomènes entrent donc en jeu en fonction de cette durée d'impulsion et de la dispersion. Le Tableau I.3 expose ces différents mécanismes mis en œuvre lors de la génération de supercontinuum.

Tableau I.2 – Principaux effets responsables de la génération de supercontinuum en fonction du régime de dispersion et de la durée d'impulsion pour une approche scalaire.

	Impulsion courte (< 1 ps)	Impulsion longue (> 1 ps)
Régime de dispersion normal	- Auto-modulation de phase (SPM) - Auto-raïdissement et brisure de l'impulsion (optical wave breaking)	- Mélange à quatre ondes (FWM) - Diffusion Raman stimulée (SRS)
Régime de dispersion anormal	- Dynamique solitonique - Ondes dispersives - Auto-décalage Raman en fréquence du soliton (SSFS)	- Instabilité de modulation (MI) - Dynamique solitonique - Ondes dispersives - Auto-décalage Raman du soliton (SSFS)

2.1. Processus et dynamique de génération de supercontinuum

2.1.1. En dispersion normale

Pour un pompage en dispersion normale de la fibre, l'impulsion initiale du laser va premièrement être élargie via l'auto-modulation de phase (SPM) et générer des oscillations spectrales [30]. Cette auto-modulation de phase est une conséquence directe de l'effet Kerr lié à la

dépendance en intensité de l'indice de réfraction linéaire. L'effet Kerr généralement considéré comme instantané résulte de la déformation par le champ optique de la répartition de charge électronique des molécules dans le verre. Plus l'indice non-linéaire va être important plus l'indice optique va être modifié, provoquant un déphasage non-linéaire auto-induit lorsqu'un champ intense se propage dans une fibre optique de longueur L . L'impulsion va donc subir un élargissement spectral symétrique par rapport à la pulsation centrale ω_0 . Ce phénomène entraîne le déplacement des hautes fréquences à l'arrière de l'impulsion et les basses fréquences vers le front de l'impulsion. Cet effet est donc opposé à ceux induits en régime de dispersion anormale ($D > 0$). Pour une impulsion sécante-hyperbolique, nous pouvons prédire la position du pic spectral le plus externe de la façon suivante [31] :

$$\omega'_M = \omega_m \left(1 - 1,84B^{-\frac{2}{3}} \right) \quad (I.20)$$

avec $\omega_m = 4B3^{-\frac{3}{2}}/T_0$ pour une impulsion de durée T_0 et $B = \gamma P_0 L$ [31].

La Figure I.6 illustre la génération de SC dans 4 cm de fibre à saut d'indice de 10 μm de diamètre de cœur en verre de Ge-Se-Te [32]. La description pour obtenir la simulation numérique d'un tel SC sera présentée dans le Chapitre II, ainsi que la fabrication du verre Ge-Se-Te et ces différentes caractéristiques. L'impulsion est centrée à 3,375 μm dans le régime normal de la fibre et peut être modélisée avec précision par une sécante-hyperbolique de durée d'impulsion de 175 fs (largeur spectrale de 1,8 THZ). La puissance crête utilisée est de 1,8 kW.

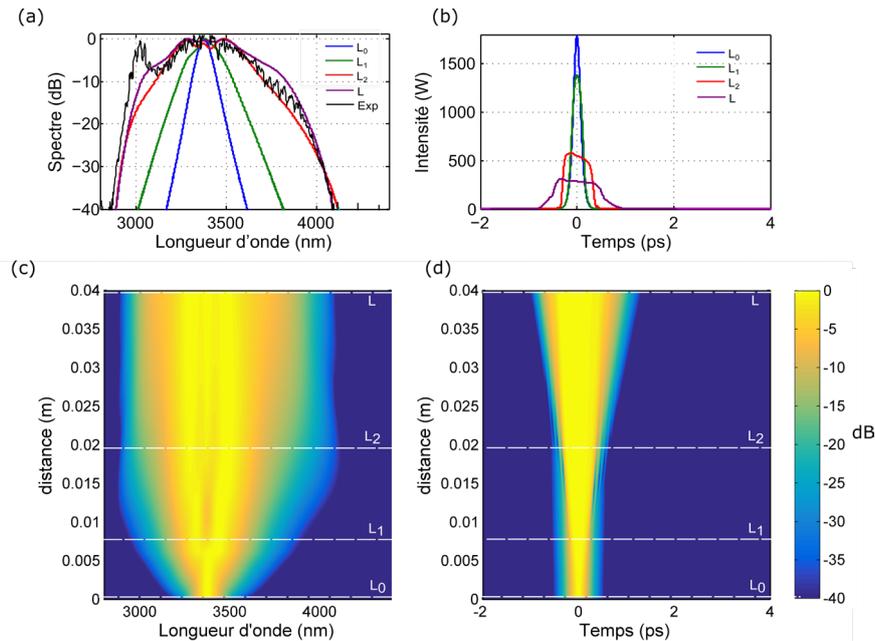


Figure I.6 – (a) Différents spectres obtenus en fonction de la longueur de propagation L et représentation du spectre expérimental (courbe en noir) et (b) différents profils d'intensité en fonction de la propagation. (c) Évolution spectrale et (d) temporelle. Une échelle logarithmique avec 40 dB de dynamique est utilisée pour les deux graphes.

Dans ce cas présenté, nous pouvons estimer la position des pics de notre spectre liés à la SPM via l'équation (I.20) pour une longueur de propagation de 7 mm et $\gamma = 0,30 \text{ W}^{-1} \cdot \text{m}^{-1}$. La Figure I.7 illustre le spectre obtenu pour cette longueur de propagation. Le décalage par rapport à ω_0 est d'environ 7 THz.

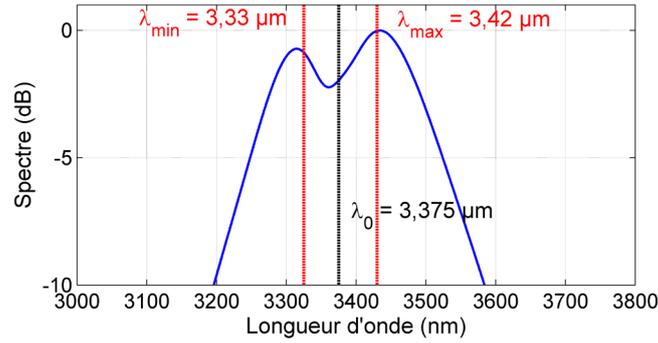


Figure I.7 – Spectre SC simulé à partir d’une impulsion à 3,375 μm dans une fibre à saut d’indice Ge-Se-Te ($P_0 = 1,8$ kW) pour une longueur de propagation de 7 mm. Les longueurs d’onde déterminées numériquement pour la position des pics externes lors de l’auto-modulation de phase sont également présentées.

Après une certaine longueur de propagation, le mélange à quatre ondes (FWM) va provoquer la génération de nouvelles fréquences sur les bords du spectre, c’est l’auto-raïdissement et la brisure de l’impulsion optique (*optical wave breaking*) [30]. Il est possible de déterminer la largeur spectrale maximale à -3 dB, suite à l’auto-raïdissement et la brisure de l’impulsion optique. Pour rappel, le paramètre N est défini de la manière suivante :

$$N^2 = \frac{L_D}{L_{NL}} = \frac{\gamma P_0 T_0^2}{|\beta_2|} \quad (I.21)$$

avec L_D la longueur de dispersion, L_{NL} la longueur non-linéaire, P_0 la puissance crête, T_0 la durée de l’impulsion (à $1/e$), γ la non-linéarité de la fibre (voir Chapitre II (2.2.2)) et β_2 le coefficient de dispersion de vitesse de groupe. Ce paramètre correspond au nombre de solitons que nous verrons dans le cas d’un pompage en dispersion anormale. Bien qu’il n’y ait pas de solitons formés dans le régime de dispersion normale considéré ici, la définition habituelle de ce paramètre N est utile pour l’interprétation des résultats [30,33].

Dans le cas d’une impulsion sécante-hyperbolique, nous pouvons approximer cet élargissement spectral maximal par $1,7 N$ [30]. Dans l’exemple présenté ici, $\gamma = 0,30 \text{ W}^{-1} \cdot \text{m}^{-1}$ et $\beta_2 = 0,32 \text{ ps}^2 \cdot \text{m}^{-1}$. Le facteur d’élargissement attendu est d’environ 6,8 fois la largeur spectrale initiale de la pompe (1,8 THz), soit 12 THz. Expérimentalement et numériquement, le spectre SC correspondant s’étend de 3,15 à 3,60 μm à -3 dB, corroborant la prédiction ci-dessus.

À l’aide d’un spectrogramme temps-fréquence, il est possible d’interpréter les différentes dynamiques de la propagation non-linéaire dans une fibre optique. La figure I.8 présente les spectrogrammes obtenus pour le SC simulé dans la fibre à saut d’indice pour différentes longueurs de propagation. Nous identifions le mécanisme d’auto-modulation de phase apparaissant dès les premiers millimètres de propagation, tout en gardant un chirp quasi-linéaire en fin de propagation ($L = 4$ cm), comme attendu dans ce régime de dispersion [30]. Un pompage laser en régime de forte dispersion normale permet d’obtenir un spectre qui reste symétrique autour de la pompe, mais sera moins large qu’en dispersion anormale. Certaines composantes spectrales au cours de l’élargissement peuvent franchir le zéro de dispersion et ainsi passer dans le régime de dispersion anormale. Dans ce cas, ces composantes spectrales vont bénéficier de la dynamique de pompage en dispersion anormale.

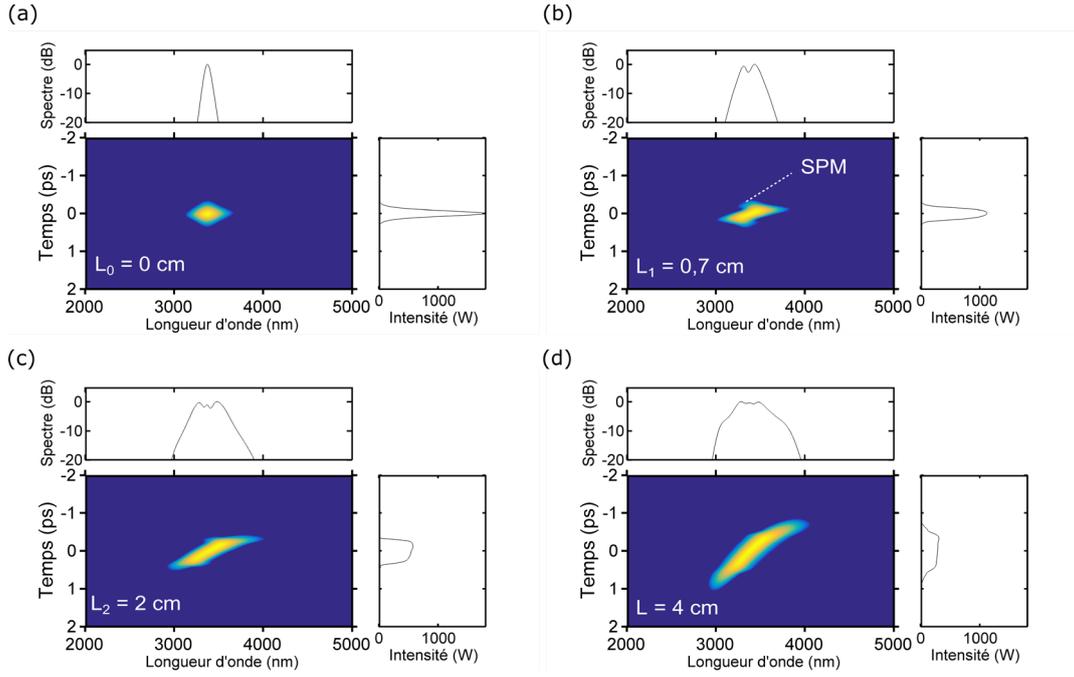


Figure I.8 – Spectrogrammes projetés sur l'intensité temporelle et spectrale présentant l'évolution d'une impulsion à 3,375 μm dans une fibre à saut d'indice Ge-Se-Te ($P_0 = 1,8$ kW) en fonction de différentes longueurs de propagation.

2.1.2. En dispersion anormale

Dans le régime de dispersion anormale, la SPM va initialement mener à un élargissement spectral de l'impulsion et donc une compression temporelle. Ce phénomène va conduire à la génération des solitons d'ordre élevé. Pour rappel, une onde solitaire ne se déformant pas au cours de sa propagation dans un milieu non-linéaire et dispersif est appelé un soliton. Si une impulsion lumineuse subit les effets antagonistes de la dispersion anormale et de l'effet Kerr, nous obtenons alors un soliton optique. Un soliton est dit fondamental ou d'ordre 1 quand $N = 1$, c'est-à-dire quand $L_D = L_{NL}$ (voir Équation I.21). Si la valeur de N est supérieure à 1,5, le soliton est alors dit d'ordre supérieur et va lui, subir des déformations au cours de sa propagation.

Après la formation des solitons d'ordre élevé à cause de la SPM, nous observons l'éclatement du soliton d'ordre supérieur en N solitons d'ordre 1, c'est ce qu'on appelle la fission de soliton. Une longueur d'interaction est nécessaire pour obtenir cette fission de soliton. Cette longueur est définie par $L_{\text{fission}} = L_D/N$. Les solitons fondamentaux éjectés vont alors se propager à des vitesses de groupe plus grandes, des amplitudes élevées et des durées courtes. La génération de ces solitons provoque la génération d'ondes dispersives (dispersive waves, DW) en régime de dispersion normale, par transfert d'énergie du soliton de l'autre côté du ZDW. Cette onde dispersive est soumise à une condition d'accord de phase avec le soliton. Un soliton avec une puissance crête P_s et une fréquence ω_s permettra la génération d'une onde dispersive à une fréquence ω_{DW} , s'écrivant sous la forme :

$$\beta(\omega_s) - \frac{\omega_s}{v_{g,s}} + (1 - f_R)\gamma P_s = \beta(\omega_{DW}) - \frac{\omega_{DW}}{v_{g,s}} \quad (I.22)$$

où $v_{g,s}$ représente la vitesse de groupe du soliton, β la constante de propagation et f_R , la contribution Raman du soliton.

La Figure I.9 présente les résultats obtenus pour une fibre avec un cœur suspendu de 4 μm en Ge-Se-Te avec la même source laser que celle présentée dans la partie 2.1.1 mais une puissance crête de 0,7 kW. Des profils de spectre à différentes longueurs de propagation sont affichés, ainsi que l'intensité correspondante (Fig. I.9 (a-b)). Nous pouvons voir via les évolutions temporelle et spectrale (Fig. I.9

(c-d)), la compression temporelle de l'impulsion et l'éclatement du soliton d'ordre supérieur après moins de 8 mm de propagation. Cette génération de soliton est bien associée à la génération de l'onde dispersive aux courtes longueurs d'onde (vers 2 μm).

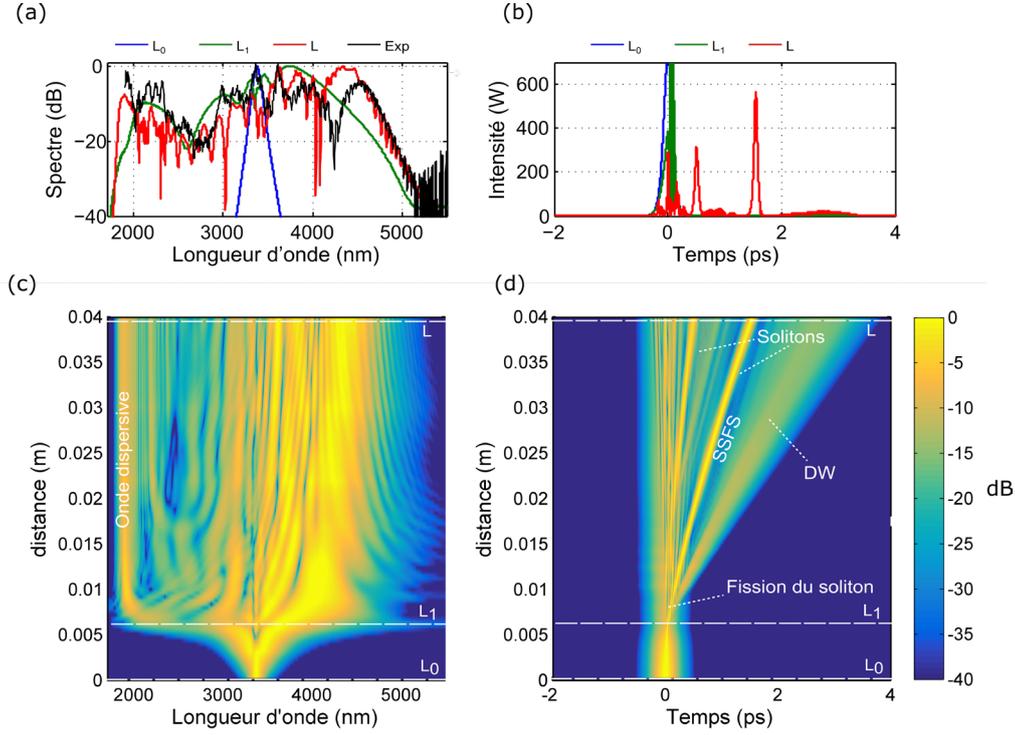


Figure I.9 - (a) Différents spectres obtenus en fonction de la longueur de propagation L et représentation du spectre expérimental (courbe en noir) et (b) différents profils d'intensité en fonction de la propagation. (c) Évolutions spectrale et (d) temporelle. Une échelle logarithmique avec 40 dB de dynamique est utilisée pour les deux graphes.

Cependant, le processus majeur de l'élargissement spectral n'est pas seulement l'éjection de solitons d'ordre élevé mais la diffusion Raman qui va entraîner un décalage continu des solitons vers les plus grandes longueurs d'onde. Cet effet est appelé l'auto-décalage Raman en fréquence du soliton (SSFS). Il découle du recouvrement du spectre du soliton avec sa propre bande de gain Raman [34,35]. La diffusion Raman est un processus inélastique (transfert d'énergie entre le CEM et le milieu optique) à deux photons. Ce phénomène traduit le fait que lorsqu'un photon de pompe (vp) est absorbé par le milieu vers un état excité, un photon de plus basse fréquence est émis (vs). L'effet Raman peut donc être caractérisé par sa valeur de gain Raman noté $g_R(\Omega)$, avec Ω la différence en fréquence entre la pompe et le Raman. Il est possible de relier ce gain Raman à la partie imaginaire de la transformée de Fourier de la réponse Raman $\tilde{h}_R(\Omega)$ de la façon suivante, avec notamment f_R le paramètre qui mesure la contribution Raman par rapport à la non-linéarité totale :

$$g_R(\Omega) = \frac{3\omega_0}{4cn} f_R \chi^{(3)\Im} [\tilde{h}_R(\Omega)] \quad (I.23)$$

Ce sont les différentes propriétés vibratoires des molécules qui induisent le décalage fréquentiel, en fonction du matériau ce décalage va donc être différent. Dans la littérature, nous pouvons trouver les valeurs de réponse Raman pour différents matériaux. Prenons l'exemple de la silice, le spectre s'étend sur plus de 20 THz, avec un maximum aux alentours de 13 THz. La Figure I.10 présente les courbes de gain de la silice, d'un verre TBZN (famille des tellurites) et d'un verre de chalcogénure $\text{Ge}_{17}\text{Ga}_4\text{Sb}_{10}\text{S}_{69}$. Nous remarquons avec ce graphique que le verre TBZN possède le spectre de gain qui s'étend le plus en prenant le spectre à mi-hauteur et le verre chalcogénure le plus étroit. Dans le Chapitre II, le modèle mathématique pour décrire $h_R(t)$ sera décrit de façon précise.

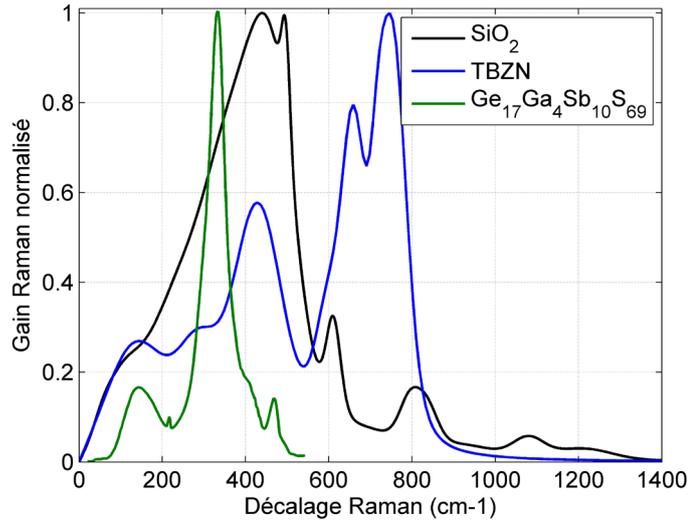


Figure I.10 - Réponse Raman normalisée de différentes compositions de verre [36–38].

La dynamique est mise en évidence avec les spectrogrammes pour différentes longueurs de propagation (Fig. I.11). Nous observons bien la SPM dans les premiers mm de la fibre puis la formation du premier soliton éjecté et de l'onde dispersive associée (S1 et D1 (Fig. I.11 (c))).

En fin de propagation, nous pouvons corrélérer les pics temporels distincts de S1 et S2 avec les pics aux grandes longueurs d'onde sur le spectre (voir Fig. I.11 (d)). Une corrélation peut également être établie entre le pic en fort régime de dispersion normale autour de 1900 nm et le large fond continu de faible amplitude sur le spectre temporel après le pic associé au soliton 1 (S1).

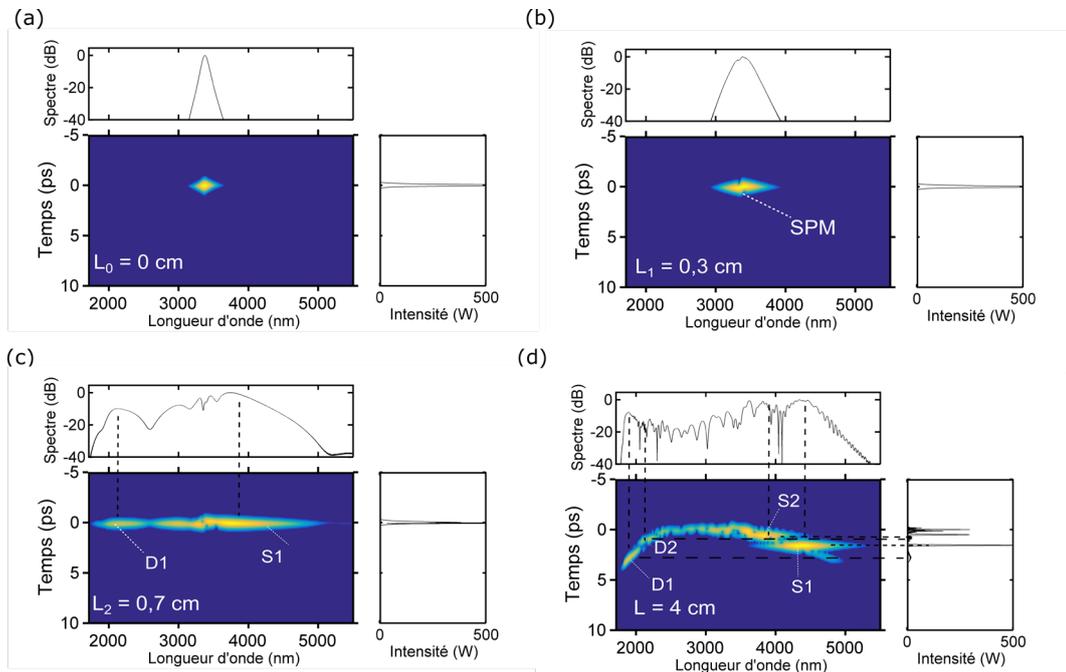


Figure I.11 - Spectrogrammes projetés sur les intensités temporelle et spectrale de l'impulsion centrée à 3,375 μm se propageant dans 4 cm de fibre à cœur suspendu Ge-Se-Te ($P_0 = 0,7$ kW) pour différentes longueurs de propagation.

3. État de l'art de génération de supercontinuum dans l'infrarouge

Dans cette partie, nous allons établir un état de l'art de la génération de supercontinuum pour l'infrarouge moyen dans des fibres fluores, tellurites ou chalcogénures et dans des systèmes de pompage différents.

3.1. Génération de supercontinuum dans les fibres tellurites et fluores

Les fibres fluorées sont apparues comme la plateforme technologique la plus mature et la plus appropriée pour s'attaquer à la génération de SC, dans la gamme de 2 à 5 μm et plus particulièrement les fibres de fluorozirconate (ZBLAN) et de fluoroindate (InF_3). La recherche sur les fibres en verre fluoré a commencé dans les années 1970. Son développement extraordinaire pendant plus de 40 ans a permis d'optimiser la fabrication complète du verre et des fibres conduisant à une commercialisation réussie, avec des fibres dopées et non dopées aux terres rares d'une grande pureté [20]. Elles sont transparentes de l'UV à l'infrarouge moyen (jusqu'à 4,5 ou 5,5 μm selon la composition ZBLAN ou InF_3 , respectivement). Les pertes optiques sont inférieures à 20 dB/km dans la gamme spectrale 1-3,5 μm , avec une atténuation minimale de 1 dB/km à 2,55 μm . Elles peuvent être utilisées efficacement sur des dizaines de mètres dans des expériences d'optique non linéaire, et elles présentent un indice de réfraction non linéaire similaire à celui des fibres à base de silice (environ $2\text{-}4 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$). Les verres à base de fluorure présentent une faible longueur d'onde de dispersion nulle (ZDW) ($\approx 1,6 \mu\text{m}$), ce qui est bénéfique pour le pompage en dispersion anormale avec des sources laser couramment disponibles.

Depuis 2006 et la première génération de SC dans une fibre fluorée par Hagen *et al.* [39], de nombreux travaux ont été rapportés dans les fibres ZBLAN. Il convient de mentionner que des efforts considérables ont été déployés pour faire passer la puissance de sortie moyenne de dizaines de mW à environ 10 W en quelques années [40]. Ainsi, cela a permis d'optimiser la distribution de la puissance SC vers l'IR moyen, par exemple en atteignant une densité de puissance spectrale dans les 3,5-4,5 μm au niveau du mW/nm. Un examen détaillé des développements successifs (avant 2015) de ces sources SC à haute puissance dans l'infrarouge moyen basées sur des fibres ZBLAN se trouve dans la référence [41]. Plus récemment, les puissances de sortie moyennes atteignent plusieurs dizaines de watts avec une limite du SC à environ 4 μm [42].

Pour étendre la limite de la longueur d'onde du SC à 5 μm , les fibres de fluoroindate (InF_3) ont été considérées comme les candidates les plus appropriées. La première démonstration de génération de SC dans une fibre InF_3 a été rapportée en 2013 par Theberge *et al.* [43] avec un pompage fs, montrant des avantages évidents mais nécessitant un pompage dans la gamme spectrale vers 2 μm . De la même manière, de nombreux travaux ont étudié des architectures de pompage distinctes pour optimiser la largeur spectrale, ainsi que la puissance moyenne de sortie jusqu'à atteindre le niveau de 10 W de nos jours, avec plus de 2 W de puissance au-delà de 3,8 μm [44]. La référence [45] fournit une bibliographie détaillée du développement récent des sources SC basées sur des fibres InF_3 . La figure 1.11 (a) montre un résultat obtenu avec une puissance de l'ordre du watt dans une fibre ZBLAN et InF_3 [46].

D'un autre côté, les progrès récents dans la fabrication des verres de tellurite (base TeO_2) ont permis d'obtenir des matériaux transmettant sur la même gamme spectrale que les verres de fluorure mais avec une non-linéarité plus élevée, typiquement un ordre de grandeur au-dessus. Cette non-linéarité plus importante permet de réduire considérablement la longueur de la fibre requise pour une interaction non-linéaire efficace et la génération de SC. Le ZDW est généralement situé vers 2 μm , restant accessible pour le pompage avec des sources laser à fibre dopées au thulium par exemple.

Plusieurs démonstrations de SC dans des fibres tellurites ont d'abord été réalisées avec des fibres microstructurées présentant des cœurs de petite taille, afin d'améliorer encore la non-linéarité et de décaler le ZDW en dessous de 2 μm . Ainsi, un pompage à dispersion anormale est permis avec des sources laser conventionnelles [47–51]. Dans les fibres microstructurées, l'un des principaux

inconvenients est le vieillissement possible de la fibre en fonction de la composition du verre. Ce phénomène de vieillissement est dû à la diffusion de la vapeur d'eau atmosphérique dans les trous de la fibre et à l'interaction avec le cœur de la fibre [52]. Seul le travail pionnier de Domachuk *et al.* a rapporté en 2008 un SC très large, s'étendant de 0,79 à 4,87 μm , mais en utilisant un segment très court (8 mm) de fibre microstructurée en tellurite [53]. En 2013, les résultats présentés par Thapa *et al.* [54] peuvent être considérés comme un tournant dans le développement de la fibre tellurite pour la génération de SC, en revenant à des conceptions de fibres solides standards et robustes.

En comparaison avec les fibres à profil d'indice avancé, le profil à saut d'indice standard reste clairement intéressant. Du point de vue de la fabrication de la fibre, cette géométrie est plus facile à mettre en œuvre. Il convient de mentionner que ces profils simples (avec une différence d'indice d'environ 0,1 à 2 μm) permettent différents régimes de dispersion dans la fibre, d'un profil de dispersion all-normal à des profils avec un ou deux ZDW situés dans la gamme 2-4 μm [55]. La flexibilité actuelle des propriétés de dispersion autour de 2 μm combinée à un fort confinement optique ont permis de gérer des régimes distincts de génération de SC [55–58]. Le SC le plus large dans l'infrarouge moyen dans des fibres tellurites a été obtenu avec un profil saut d'indice dans une fibre de 9 cm de long et de 3,5 μm de cœur présentant deux ZDW [59].

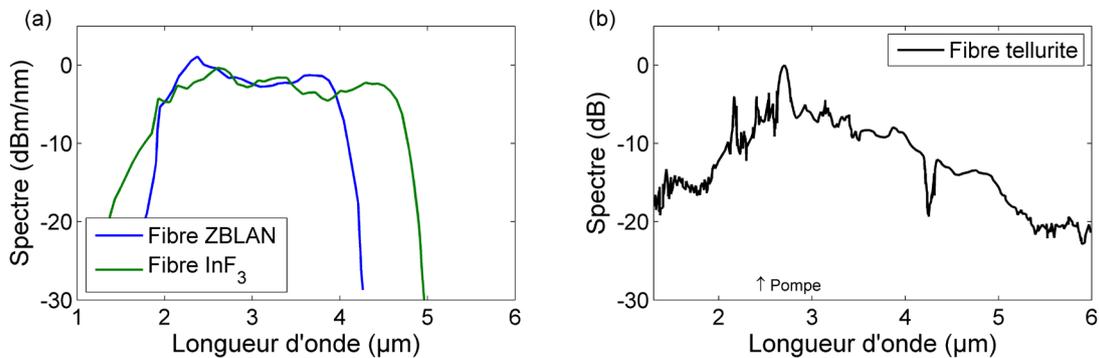


Figure I.12 - (a) Exemples de SC avec une puissance de l'ordre du Watt obtenus dans une fibre ZBLAN et InF_3 [46]. (b) SC obtenu dans 9 cm de fibre tellurite pompée à 2,4 μm à 43 MHz de taux de répétition. La puissance moyenne en sortie est de 150 mW [59].

La pompe laser délivre des impulsions femtosecondes à 2,4 μm à un taux de répétition de 43 MHz. La largeur de bande SC résultante s'étend de 1,3 à 5,3 μm avec une puissance de sortie de 150 mW (voir Fig. I.12 (b)). Grâce à la dispersion optimisée de la fibre et ses pertes réduites, en particulier dans la gamme 4-5 μm , la génération de SC est considérablement poussée vers l'infrarouge, ce qui conduit à une proportion de puissance élevée d'environ 45% du SC dans la fenêtre atmosphérique 3-5 μm . Ce résultat est présenté dans la Figure I.15 (b).

3.2. Génération de supercontinuum dans les fibres chalcogénures

Les verres de chalcogénures (ChG), avec leur fenêtre de transmission beaucoup plus large et leur non-linéarité plus élevée (cf Figure I.1 et Tableau I.2), sont les candidats appropriés pour étendre la génération de SC dans l'IR. L'étude de la génération de SC dans l'IR moyen dans les verres de chalcogénures a commencé en 2005 dans des fibres d'As-Se ou d'As-S [60,61], pompées dans la région de l'IR proche à 1,5 ou 2 μm , avec les sources laser disponibles, entraînant un élargissement spectral limité. En effet, les fibres de chalcogénures ont leur ZDW situé loin de l'IR, dans la gamme de 5-10 μm . Dans cette gamme, les sources laser compactes et de haute puissance font défaut, de sorte que de nombreux développements expérimentaux ont alors impliqué des fibres ChG microstructurées à petit cœur avec un ZDW décalé [62,63].

Cependant, l'émergence récente de sources laser accordables à haute puissance crête basées sur des amplificateurs paramétriques optiques (OPA) et des modules de génération de différence de

fréquence (DFG) ont conduit à une percée majeure dans la génération de SC dans l'IR moyen en utilisant des fibres ChG. En 2014, Petersen *et al.* ont reporté un SC très large bande, s'étendant de 1,4 à 13,3 μm . Des injections des impulsions de 100 fs à 6,3 μm ont été réalisées avec un taux de répétition de 1 kHz dans une fibre à saut d'indice de As_2Se_3 et une gaine de $\text{Ge}_{10}\text{As}_{23,4}\text{Se}_{66,6}$ [64]. Par la suite, les chercheurs se sont concentrés sur l'optimisation des fibres ChG pour les paramètres de pompage direct du laser dans l'infrarouge moyen, afin d'améliorer l'élargissement spectral et la puissance de sortie du SC. Aujourd'hui, des diamètres de cœur de fibre plus importants peuvent être étudiés lors du pompage dans la gamme des 5-10 μm près du ZDW du matériau, ce qui permet de se concentrer sur des segments de fibre plus courts. Malgré une atténuation encore élevée (de l'ordre du dB/m) par rapport à d'autres fibres de verre communes, les fibres ChG compensent par leur indice de réfraction non linéaire élevé, permettant d'obtenir de plus large spectre infrarouge SC dans seulement quelques centimètres de fibre [63].

3.2.1. Spectres les plus optimisés dans l'infrarouge moyen

La génération de SC dans des fibres ChG à saut d'indice a permis aux chercheurs d'étendre de plus en plus la limite du SC dans l'infrarouge. Cheng *et al.* ont obtenu un SC s'étendant de 2 à 15,1 μm , en pompant une fibre à saut d'indice en As_2Se_3 [65]. Dans cette expérience, les auteurs ont utilisé un laser de pompe à 9,8 μm avec une durée d'impulsion de 170 fs à une fréquence de répétition de 1 kHz. Plusieurs études ont également exploré la fabrication de fibres avec différentes compositions de verre. Par exemple, Ou *et al.* ont rapporté un SC s'étendant de 1,8 à 14 μm dans une fibre de 23 μm de diamètre de cœur en $\text{Ge}_{15}\text{Sb}_{25}\text{Se}_{60}$ et $\text{Ge}_{15}\text{Sb}_{20}\text{Se}_{65}$ [66]. La longueur d'onde de la pompe était fixée à 6 μm dans le régime de dispersion anormale de la fibre. Par la suite, plusieurs études ont exploré d'autres compositions de verre avec des schémas de pompage similaires. Ils ont rapporté une largeur de bande SC similaire dans l'infrarouge moyen allant jusqu'à 13-14 μm [67–71]. Il convient de noter que des efforts importants ont été faits pour éliminer les éléments toxiques, tels que l'arsenic ou encore l'antimoine, dans la composition du verre. Lemière *et al.* ont montré un SC dans le moyen-infrarouge dans une fibre à saut d'indice en verre chalcogénure sans arsenic et antimoine [24]. Un SC de 2 à 14 μm a été obtenu en pompant une fibre de 10 μm de diamètre de cœur en verre $\text{Ge}_{20}\text{Se}_{60}\text{Te}_{20}/\text{Ge}_{20}\text{Se}_{70}\text{Te}_{10}$. Plus récemment, la même équipe du Dr Kibler et Pr Smektala a démontré avec succès un SC dans l'IR moyen allant de 1,7 à 18 μm en pompant à 8,15 μm avec des impulsions de 65 fs à 1 kHz dans une fibre Ge-Se-Te de 12 μm de diamètre de cœur [6]. Ce spectre à l'état de l'art est illustré à la Figure I.13. En parallèle, les chercheurs ont également commencé à explorer les systèmes de verre à base de Tellure pour la génération de SC, qui offrent des fenêtres optiques plus larges et des indices de réfraction non linéaires plus élevés. Par exemple, un spectre SC couvrant la gamme spectrale de 2 à 16 μm a été obtenu par Zhao *et al.* dans une fibre Ge-Te-AgI [72]. La fibre de 14 cm de long était pompée à 7 μm avec une impulsion de 150 fs et une fréquence de répétition de 1 kHz. Le Tableau I.4 énumère les sources SC dans le moyen infrarouge les plus avancées et les plus récentes basées sur des fibres ChG en pompage direct.

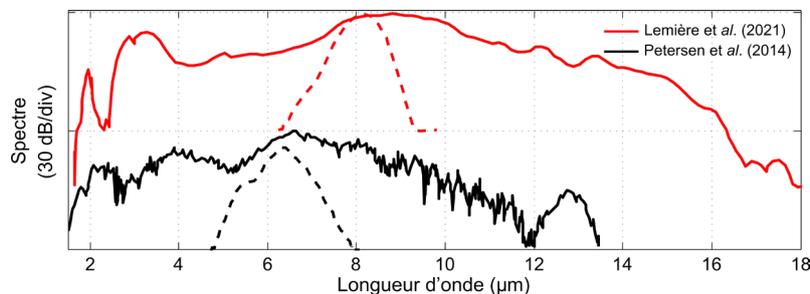


Figure I.13 – Spectre de SC allant de 1,4 à 13,3 μm (courbe noire) obtenu dans une 8,5 cm de fibre à saut d'indice As_2Se_3 avec des impulsions de 100 fs à 6,3 μm (courbe noire en pointillés) [64]. Spectre SC obtenu allant de 1,7 à 18 μm (courbe rouge) obtenu dans une fibre de 4 cm de saut d'indice Ge-Se-Te avec des impulsions de 65 fs à 8,15 μm (courbe rouge en pointillés) [6].

Les résultats ci-dessus qui présentent les spectres les plus larges dans l'infrarouge sont généralement pompés par des sources laser à faible taux de répétition, ce qui donne une puissance de sortie SC très faible (inférieure à 1 mW). Avec une puissance aussi faible, une détection minutieuse est nécessaire pour caractériser le spectre obtenu, et le SC généré est difficile à utiliser. Pour progresser vers la génération simultanée de SC ultra large bande et de haute puissance, l'utilisation de sources laser MHz a été étudiée. Ces sources à taux de répétition plus élevé ont une puissance moyenne beaucoup plus élevée au prix de la puissance crête disponible, et donc de l'élargissement spectral qui en résulte. De plus, de telles pompes avec des puissances moyennes élevées fortement concentrées dans un cœur de quelques μm peuvent endommager la face d'entrée de la fibre. Pour surmonter ce problème, Petersen *et al.* ont utilisé des fibres effilées microstructurées [73], tandis que Hudson *et al.* ont utilisé des fibres effilées à saut d'indice [74]. Ces deux résultats ont montré qu'il était possible de générer des SC avec une puissance de sortie de plus de 30 mW, tout en obtenant un spectre de SC s'étendant au-delà de 10 μm . En effet, une fibre effilée offre la possibilité d'utiliser des fibres à grand cœur pour une meilleure injection de lumière, tout en maintenant dans la région du waist un confinement élevé qui améliore les effets non-linéaires. De plus, cela limite la densité de puissance sur la face d'entrée et donc l'endommagement laser. Avec une conception précise du taper, un couplage plus facile compense les pertes induites par la réduction du diamètre, et permet l'utilisation de sources laser plus puissantes, ce qui permet d'obtenir des SC avec une puissance de sortie plus élevée.

Tableau I.3 – Principaux résultats obtenus dans le moyen infrarouge dans des fibres à base de verre de chalcogénures. SIF : step-index (saut d'indice), MOF : fibre microstructurée.

Référence	Etendue spectrale du SC (μm)	Paramètres de pompage laser	Verre	Type de fibre
[64]	1.4-13.3	@6.3 μm , 150 fs, 1 kHz	As-Se	SIF
[65]	2-15.1	@9.8 μm , 170 fs, 1 kHz	As-Se	SIF
[66]	1.8-14	@6 μm , 150 fs, 1 kHz	Ge-Sb-Se	SIF
[67]	1.8-13	@5 μm , 150 fs, 1 kHz	Te-As-Se	Mono-indice
[68]	1.5-14	@4.5 μm , 150 fs, 1 kHz	Ge-As-Se-Te	SIF
[69]	1.2-15.2	@8 μm , 150 fs, 1 kHz	(Ge-As-Se)I	SIF
[70]	1.5-13.3	@6.3 μm , 150 fs, 1 kHz	As-Se	SIF
[71]	1.4-13.7	@6 μm , 150 fs, 1 kHz	Ge-As-Se	SIF
[72]	2-16	@7 μm , 150 fs, 1 kHz	Ge-Te-AgI	SIF (double-gaine)
[24]	2-14	@7.7 μm , 65 fs, 1 kHz	Ge-Se-Te	SIF
[6]	1.7-18	@8 μm , 65 fs, 1 kHz	Ge-Se-Te	SIF
[73]	1-11.5	@4 μm , 252 fs, 21 MHz	Ge-As-Se	MOF (taper)
[74]	1.8-9.5	@3 μm , 230 fs, 42 MHz	As-Se/As-S	SIF (taper)
[75]	1.4-7.2	@3.25 μm , 150 fs, 1 kHz	As-S	SIF (taper)
[76]	2-13.2	@5 μm , 150 fs, 1 kHz	As-S/Ge-As-Se-Te	MOF
[77]	2.2-10	@5 μm , 170 fs, 1 kHz	As-Se/As-S	MOF

3.2.2. Perspectives

Une source SC large peut ne pas être suffisante pour certaines applications, où des propriétés telles que la cohérence, la stabilité, la planéité et le contrôle de la polarisation sont nécessaires. Bien que les effets non linéaires et la dynamique des solitons obtenus grâce à la dispersion anormale permettent un élargissement spectral beaucoup plus important, ils peuvent également mener à des sources bruitées et une perte partielle de cohérence à des puissances crête élevées (voir Chapitre II (2.2.3)). C'est pourquoi, profitant de l'expérience acquise avec la génération de SC proche-IR [2], les recherches se sont également concentrées sur la gestion de la dispersion des fibres, afin d'obtenir des profils de dispersion en régime normal avec des fibres ChG. En 2017, Wang *et al.* [75] ont obtenu un SC cohérent s'étendant de 1,4 à 7,2 μm en pompant une fibre taperisée à saut d'indice en verre As_2S_3 avec un profil de dispersion entièrement normal. En 2020, Yuan *et al.* ont utilisé une autre approche pour concevoir un profil de dispersion plat entièrement normal [76]. Ils ont fabriqué une fibre microstructurée combinant des verres As-S et Ge-As-Se-Te, et ont obtenu une source SC cohérente entre 2 et 13,2 μm . Parallèlement, Nguyen *et al.* [77] ont également utilisé des fibres microstructurées entièrement solides pour fabriquer un profil de dispersion très plat, proche de zéro, qui a donné un spectre SC plat et cohérent s'étendant de 2 à 10 μm .

3.3. Génération de supercontinuum avec des systèmes en cascade

Au cours de la dernière décennie, les systèmes de fibres en cascade sont apparus comme des solutions attrayantes et prometteuses pour des sources SC dans l'infrarouge moyen pratiques, compactes et robustes avec une densité de puissance spectrale élevée [1].

Le tableau I.5 présente une liste des sources SC dans l'IR moyen les plus avancées et les plus récemment développées, basées sur l'ensemble des fibres. Martinez *et al.* ont rapporté avec succès un SC dans l'IR moyen, couvrant la bande passante de 1,6 à 12 μm avec quelques centaines de mW en puissance moyenne (pour des taux de répétition inférieurs à MHz) en concaténant des fibres de silice, de ZBLAN, de sulfure d'arsenic et de séléniure d'arsenic à saut d'indice, pompées à 1,55 μm [78,79]. Ce résultat est présenté en Figure I.14. Venck *et al.* ont démontré une source SC dans l'IR moyen avec une couverture spectrale de 2 à 10 μm dans un système de fibre cascadi silice-ZBLAN-AsSe pompé par un laser à fibre sub-ns à 1,55 μm sans utiliser d'étage d'amplification de fibre supplémentaire [80]. La puissance moyenne de sortie SC atteint 16 mW à un taux de répétition de 100 kHz. Notons que la fibre de chalcogénure utilisée ici est une fibre AsSe microstructurée à cœur solide avec un diamètre de cœur de 11 μm et une dispersion nulle située près de 4,8 μm . Plus récemment, Woyessa *et al.* ont développé une source SC simple et stable en puissance de 1,5 à 10,5 μm dans l'IR moyen, pompée par un MOPA à 1,56 μm , avec une puissance moyenne de sortie SC de 86 mW tout en fonctionnant dans le régime MHz [81]. Cette source est d'ailleurs commercialisée par l'entreprise Norblis, avec la mention d'une puissance moyenne proche de 50 mW.

En tant qu'alternative ou évolution aux systèmes en cascade pompés par des lasers proches de l'infrarouge, l'approche SC à une seule fibre directement pompée par un laser à fibre ultrarapide dans l'infrarouge moyen est particulièrement attrayante. Parmi les quelques démonstrations expérimentales existantes qui sont compétitives en termes de largeur de bande spectrale, nous pouvons citer le travail de Hudson *et al.* où un laser à fibre à verrouillage de mode femtoseconde (basé sur une fibre ZBLAN dopée à l'holmium) à 2,9 μm a été combiné avec une fibre taperisée en chalcogénure [74]. Le SC résultant s'étend de 1,8 à 9,5 μm avec plus de 30 mW de puissance moyenne à un taux de répétition de 42 MHz.

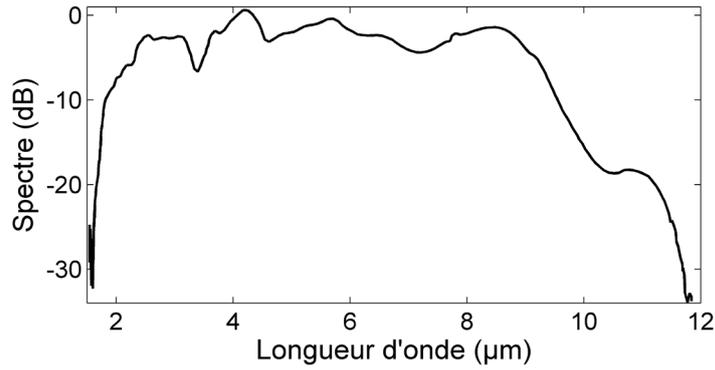


Figure I.14 – SC allant de 1,6 à 12 μm en concaténant des fibres à saut d'indice silice, ZBLAN, As_2S_3 et As_2Se_3 avec une pompe MOPA à 1,55 μm et différents étages d'amplification [78].

Tableau I.4 – Sélection des systèmes en cascade les plus optimisés pour la génération de supercontinuum dans le moyen-infrarouge.

Référence	Etendue spectrale du SC (μm)	Paramètres de pompage laser	Puissance de sortie (mW)	Système de fibres
[78,79]	1,6-12 μm	@1,55 μm , 1,1 ns, 300 kHz	108	Silice-ZBLAN-
	1,6-11 μm	@1,55 μm , 1,1 ns, 800 kHz	417	As_2S_3 - As_2Se_3
[80]	2,0-10 μm	@1,55 μm , 460 ps, 100 kHz	16	Silice-ZBLAN- As_2Se_3
[81]	1,5-10,5 μm	@1,56 μm , 500 ps, 3 MHz	86	Silice-ZBLAN- As_2S_3 - As_2Se_3
[74]	1,8-9,5 μm	@2,9 μm , 230 fs, 42 MHz	30	As_2Se_3 taper

4. Applications d'un supercontinuum dans l'infrarouge

La génération de SC dans l'infrarouge moyen est d'un grand intérêt dans de nombreux domaines car cette solution permet d'obtenir une source de lumière à large bande aussi brillante qu'un laser (plusieurs ordres de grandeur comparé au rayonnement d'un corps noir) et avec de bonnes propriétés de cohérence [1,2]. Les sources SC dans l'infrarouge moyen trouvent des applications principalement pour la spectroscopie, la métrologie optique ou encore l'imagerie. La Figure I.14 présente les principales applications permises par une source SC dans l'infrarouge moyen.

Le secteur d'activité du contrôle non-destructif est un domaine où les sources SC trouvent des applications. En effet, nous pouvons citer la technique de tomographie par cohérence optique (OCT), qui est une technique d'imagerie interférométrique permettant d'imager des objets en 3D avec une précision élevée [82,83]. L'OCT dans l'infrarouge moyen permet de sonder l'objet à des profondeurs de pénétration plus élevées qu'avec une source de lumière visible ou dans l'infrarouge proche. Les pertes par diffusion sont plus importantes aux courtes longueurs d'onde [82]. Les différentes absorptions infrarouge des matériaux ou des tissus biologiques permettent également de procéder à un diagnostic en microscopie et en bio-imagerie avec la détection d'anomalies ou de cancers [84–86]. Les méthodes d'imagerie hyperspectrale utilisant des sources SC permettent de caractériser les informations spectrales et spatiales des différents tissus biologiques avec un fort rapport signal/bruit en comparaison aux systèmes d'imagerie IR standards [84].

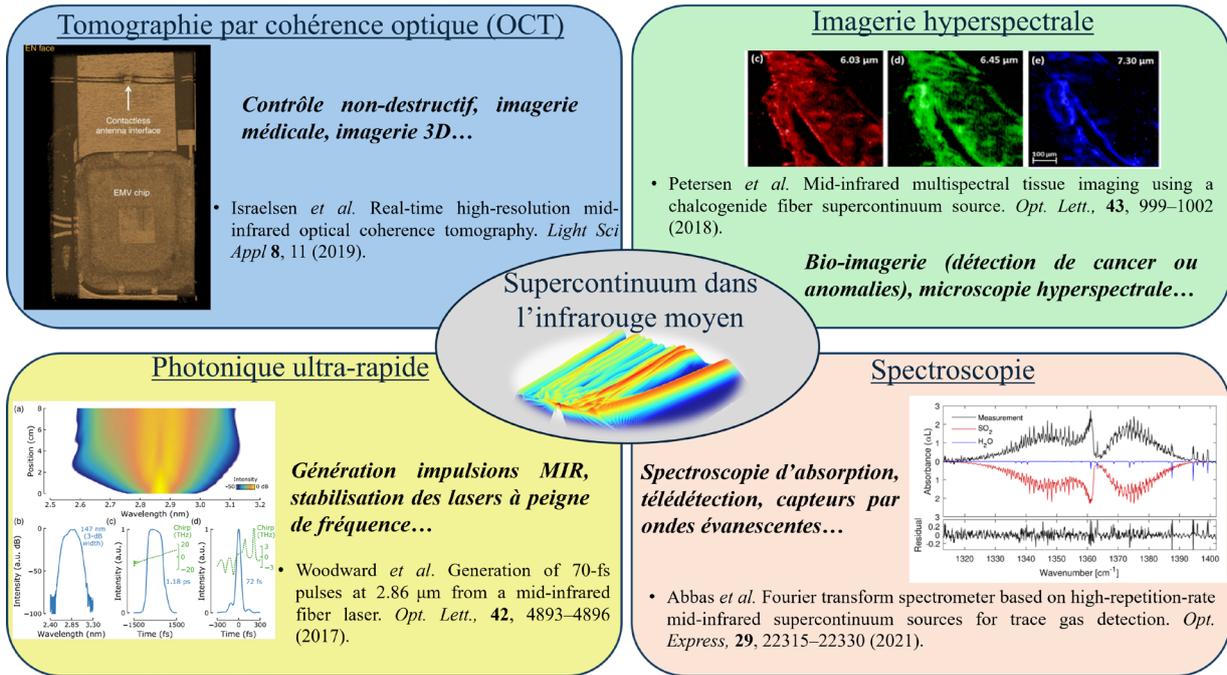


Figure I.14 – Principales applications possibles avec une source supercontinuum dans l'infrarouge moyen.

Le domaine de la photonique ultra-rapide est également un secteur d'intérêt pour des sources SC présentant de bonnes propriétés de cohérence [87]. En effet, ces sources peuvent être utilisées pour la génération d'impulsions de quelques cycles optiques dans l'infrarouge moyen par exemple [88] ou pour la stabilisation de lasers à peigne de fréquence [89].

Enfin, un dernier secteur que nous pouvons citer est celui de la spectroscopie. Les sources SC sont maintenant des outils adoptés par la communauté scientifique pour la détection de molécules que ce soit en phase gazeuse ou liquide [90]. De nombreux résultats ont été reportés dans des systèmes différents [91–93] et pour des applications diverses comme la caractérisation de polluants atmosphériques [91] ou d'explosifs par exemple [94].

5. Conclusion

Au cours de ce chapitre, nous avons pu présenter les principales familles de verre pour toute étude dans l'infrarouge moyen, avec un rappel sur les notions de transparence et de quelques propriétés optiques d'un matériau vitreux. Après avoir introduit la notion de fibre optique, les différents effets non-linéaires responsables de l'élargissement d'une impulsion laser ont été décrits. Ensuite, la dynamique de formation d'un tel spectre (un supercontinuum) dans une fibre optique, a pu être mise en évidence en fonction du régime de dispersion lors du pompage laser.

Enfin ce chapitre a permis de dresser un état de l'art de la génération de supercontinuum dans l'infrarouge moyen à l'aide de différentes fibres optiques. Des progrès substantiels ont été réalisés au cours des dernières années grâce aux avantages d'une large fenêtre de transparence et d'une non-linéarité optique élevée offerts par certains matériaux. Tout ceci offrant une voie très prometteuse pour des avancées successives dans cette technologie et pour les applications basées sur les fibres dédiées à l'infrarouge moyen [1,90,95,96].

Bibliographie

1. T. Sylvestre, E. Genier, A. N. Ghosh, P. Bowen, G. Genty, J. Troles, A. Mussot, A. Peacock, M. Klimczak, A. Heidt, J. Travers, O. Bang, and J. Dudley, "Recent Advances in Supercontinuum Generation in Specialty Fiber," *J. Opt. Soc. Am. B* (2021).
2. J. M. Dudley, G. Genty, and S. Coen, "Supercontinuum generation in photonic crystal fiber," *Rev. Mod. Phys.* **78**, 1135–1184 (2006).
3. J. M. Dudley and J. R. Taylor, eds., *Supercontinuum Generation in Optical Fibers* (Cambridge University Press, 2010).
4. C. Lin and R. H. Stolen, "New nanosecond continuum for excited-state spectroscopy," *Appl. Phys. Lett.* **28**, 4 (1976).
5. C. Lin, V. T. Nguyen, and W. G. French, "Wideband near-i.r. continuum (0.7–2.1 μm) generated in low-loss optical fibres," *Electronics Letters* **14**, 822–823 (1978).
6. A. Lemière, R. Bizot, F. Désévéday, G. Gadret, J.-C. Jules, P. Mathey, C. Aquilina, P. Béjot, F. Billard, O. Faucher, B. Kibler, and F. Smektala, "1.7–18 μm mid-infrared supercontinuum generation in a dispersion-engineered step-index chalcogenide fiber," *Results in Physics* **26**, 104397 (2021).
7. V. F. Kokorina, *Glasses for Infrared Optics* (CRC Press, 1996).
8. X. Jiang and A. Jha, "Engineering of a Ge–Te–Se glass fibre evanescent wave spectroscopic (FEWS) mid-IR chemical sensor for the analysis of food and pharmaceutical products," *Sensors and Actuators B: Chemical* **206**, 159–169 (2015).
9. G. Snopatin, V. Shiryaev, V. Plotnichenko, E. Dianov, and M. Churbanov, "High-purity chalcogenide glasses for fiber optics," *Inorganic Materials* (2009).
10. V. S. Shiryaev and M. F. Churbanov, "Recent advances in preparation of high-purity chalcogenide glasses for mid-IR photonics," *Journal of Non-Crystalline Solids* **475**, 1–9 (2017).
11. G. P. Agrawal, *Nonlinear Fiber Optics*, Sixth edition (Academic Press, 2019).
12. H. C. Hulst and H. C. van de Hulst, *Light Scattering by Small Particles* (Courier Corporation, 1981).
13. J. S. Sanghera, L. E. Busse, and I. D. Aggarwal, "Effect of scattering centers on the optical loss of As₂S₃ glass fibers in the infrared," *Journal of Applied Physics* **75**, 4885–4891 (1994).
14. M. J. Weber, *Handbook of Optical Materials*, The CRC Press Laser and Optical Science and Technology Series (CRC Press, 2003).
15. J. Barton and C. Guillemet, *Le verre, science et technologie* (EDP Sciences, Les Ulis, 2003).
16. J. Zarzycki, *Les verres et l'état vitreux* (Masson, 1982).
17. I. Savelii, F. Desevedavy, J.-C. Jules, G. Gadret, J. Fatome, B. Kibler, H. Kawashima, Y. Ohishi, and F. Smektala, "Management of OH absorption in tellurite optical fibers and related supercontinuum generation," *Optical Materials* **35**, 1595–1599 (2013).
18. R. A. H. El-Mallawany, *Tellurite Glasses Handbook: Physical Properties and Data, Second Edition*, 2nd ed. (CRC Press, 2012).
19. V. A. Rivera, *Technological Advances in Tellurite Glasses: Properties, Processing, and Applications* (Springer Science+Business Media, 2017).
20. M. Poulain, "Fluoride glasses: properties, technology and applications," in G. S. Murugan, ed. (Research Signpost, 2010), pp. 1–28.
21. J. Lucas and J.-L. Adam, "Fluoride Glasses," in *Encyclopedia of Materials: Science and Technology*, K. H. J. Buschow, R. W. Cahn, M. C. Flemings, B. Ilschner, E. J. Kramer, S. Mahajan, and P. Veyssièrè, eds. (Elsevier, 2001), pp. 3205–3209.
22. W. Vogel, ed., *Glass Chemistry* (Springer, 1994).
23. M. Bass and Optical Society of America, eds., *Handbook of Optics*, 2nd ed (McGraw-Hill, 1995).
24. A. Lemière, F. Désévéday, P. Mathey, P. Froidevaux, G. Gadret, J.-C. Jules, C. Aquilina, B. Kibler, P. Béjot, F. Billard, O. Faucher, and F. Smektala, "Mid-infrared supercontinuum generation from 2 to 14 μm in arsenic- and antimony-free chalcogenide glass fibers," *J. Opt. Soc. Am. B* **36**, A183 (2019).
25. O. Mouawad, F. Amrani, B. Kibler, J. Picot-Clémentè, C. Strutynski, J. Fatome, F. Désévéday, G. Gadret, J.-C. Jules, O. Heintz, E. Lesniewska, and F. Smektala, "Impact of optical and structural aging in As₂S₃ microstructured optical fibers on mid-infrared supercontinuum generation," *Opt. Express* **22**, 23912 (2014).

26. J.-L. Auguste, J.-M. Blondy, and P. Roy, "La fibre optique microstructurée air-silice," *Mesures mécaniques et dimensionnelles* (2005).
27. M. Evrard, T. Combes, A. Maldonado, F. Désévéday, G. Gadret, C. Strutynski, J. C. Jules, C. H. Brachais, and F. Smektala, "TeO₂-ZnO-La₂O₃ tellurite glass purification for mid-infrared optical fibers manufacturing," *Opt. Mater. Express* **12**, 136 (2022).
28. I. Alamgir, M. H. Mobarok Shamim, W. Correr, Y. Messaddeq, and M. Rochette, "Supercontinuum enhancement in dispersion-varying chalcogenide taper," in *2021 Photonics North (PN)* (2021), pp. 1–1.
29. I. Alamgir, M. H. M. Shamim, W. Correr, Y. Messaddeq, and M. Rochette, "Mid-infrared soliton self-frequency shift in chalcogenide glass," *Opt. Lett.*, OL **46**, 5513–5516 (2021).
30. C. Finot, B. Kibler, L. Provost, and S. Wabnitz, "Beneficial impact of wave-breaking for coherent continuum formation in normally dispersive nonlinear fibers," *J. Opt. Soc. Am. B* **25**, 1938 (2008).
31. C. Finot, F. Chaussard, and S. Boscolo, "Simple guidelines to predict self-phase modulation patterns," *J. Opt. Soc. Am. B* **35**, 3143 (2018).
32. B. Kibler, E. Serrano, A. Maldonado, L.-R. Robichaud, S. Duval, M. Bernier, R. Bizot, F. Désévéday, R. Vallée, Y. Messaddeq, and F. Smektala, "All-fiber 2–6 μm coherent supercontinuum source based on chalcogenide fibers pumped by an amplified mid-IR soliton laser," *Optics Communications* 129568 (2023).
33. A. M. Heidt, J. S. Feehan, J. H. V. Price, and T. Feurer, "Limits of coherent supercontinuum generation in normal dispersion fibers," *J. Opt. Soc. Am. B, JOSAB* **34**, 764–775 (2017).
34. F. M. Mitschke and L. F. Mollenauer, "Discovery of the soliton self-frequency shift," *Opt. Lett.*, OL **11**, 659–661 (1986).
35. N. Akhmediev and M. Karlsson, "Cherenkov radiation emitted by solitons in optical fibers," *Phys. Rev. A* **51**, 2602–2607 (1995).
36. D. Hollenbeck and C. D. Cantrell, "Multiple-vibrational-mode model for fiber-optic Raman gain spectrum and response function," *J. Opt. Soc. Am. B* **19**, 2886 (2002).
37. X. Yan, G. Qin, M. Liao, T. Suzuki, and Y. Ohishi, "Transient Raman response and soliton self-frequency shift in tellurite microstructured fiber," *Journal of Applied Physics* **108**, 123110 (2010).
38. T. Kohoutek, X. Yan, T. W. Shiosaka, S. N. Yannopoulos, A. Chrissanthopoulos, T. Suzuki, and Y. Ohishi, "Enhanced Raman gain of Ge–Ga–Sb–S chalcogenide glass for highly nonlinear microstructured optical fibers," *J. Opt. Soc. Am. B* **28**, 2284 (2011).
39. C. L. Hagen, J. W. Walewski, and S. T. Sanders, "Generation of a continuum extending to the midinfrared by pumping ZBLAN fiber with an ultrafast 1550-nm source," *IEEE Photonics Technology Letters* **18**, 91–93 (2006).
40. Z. Xu, C. Xia, M. N. Islam, F. L. Terry, M. J. Freeman, A. Zakel, and J. Mauricio, "10.5 Watts Time-Averaged Power Mid-IR Supercontinuum Generation with Direct Pulse Pattern Modulation," in *Conference on Lasers and Electro-Optics/International Quantum Electronics Conference (2009), Paper CFC6* (Optica Publishing Group, 2009), p. CFC6.
41. J. Swiderski, "High-power mid-infrared supercontinuum sources: Current status and future perspectives," *Progress in Quantum Electronics* **38**, 189–235 (2014).
42. L. Yang, Y. Li, B. Zhang, T. Wu, Y. Zhao, and J. Hou, "30-W supercontinuum generation based on ZBLAN fiber in an all-fiber configuration," *Photon. Res.*, PRJ **7**, 1061–1065 (2019).
43. F. Théberge, J.-F. Daigle, D. Vincent, P. Mathieu, J. Fortin, B. E. Schmidt, N. Thiré, and F. Légaré, "Mid-infrared supercontinuum generation in fluoroindate fiber," *Opt. Lett.*, OL **38**, 4683–4685 (2013).
44. L. Yang, B. Zhang, X. He, K. Deng, S. Liu, and J. Hou, "High-power mid-infrared supercontinuum generation in a fluoroindate fiber with over 2 W power beyond 3.8 μm," *Opt. Express*, OE **28**, 14973–14979 (2020).
45. J. Swiderski, "Recent Development of Mid-Infrared Supercontinuum Generation in Fluoroindate Glass Fibers," *Applied Sciences* **12**, 4927 (2022).
46. F. Théberge, N. Bérubé, S. Poulain, S. Cozic, L.-R. Robichaud, M. Bernier, and R. Vallée, "Watt-level and spectrally flat mid-infrared supercontinuum in fluoroindate fibers," *Photon. Res.*, PRJ **6**, 609–613 (2018).
47. I. Savelli, O. Mouawad, J. Fatome, B. Kibler, F. Désévéday, G. Gadret, J.-C. Jules, P.-Y. Bony, H. Kawashima, W. Gao, T. Kohoutek, T. Suzuki, Y. Ohishi, and F. Smektala, "Mid-infrared 2000-nm

- bandwidth supercontinuum generation in suspended-core microstructured Sulfide and Tellurite optical fibers," *Opt. Express*, OE **20**, 27083–27093 (2012).
48. J. Picot-Clemente, C. Strutynski, F. Amrani, F. Désévéday, J.-C. Jules, G. Gadret, D. Deng, T. Cheng, K. Nagasaka, Y. Ohishi, B. Kibler, and F. Smektala, "Enhanced supercontinuum generation in tapered tellurite suspended core fiber," *Optics Communications* **354**, 374–379 (2015).
 49. T. Cheng, L. Zhang, X. Xue, D. Deng, T. Suzuki, and Y. Ohishi, "Broadband cascaded four-wave mixing and supercontinuum generation in a tellurite microstructured optical fiber pumped at 2 μm ," *Opt. Express*, OE **23**, 4125–4134 (2015).
 50. M. Belal, L. Xu, P. Horak, L. Shen, X. Feng, M. Ettabib, D. J. Richardson, P. Petropoulos, and J. H. V. Price, "Mid-infrared supercontinuum generation in suspended core tellurite microstructured optical fibers," *Opt. Lett.*, OL **40**, 2237–2240 (2015).
 51. F. Désévéday, G. Gadret, J.-C. Jules, B. Kibler, and F. Smektala, "Supercontinuum Generation in Tellurite Optical Fibers," in *Technological Advances in Tellurite Glasses: Properties, Processing, and Applications*, V. A. G. Rivera and D. Manzani, eds., Springer Series in Materials Science (Springer International Publishing, 2017), pp. 277–299.
 52. C. Strutynski, O. Mouawad, J. Picot-Clémente, P. Froidevaux, F. Désévéday, G. Gadret, J.-C. Jules, B. Kibler, and F. Smektala, "Optical aging observation in suspended core tellurite microstructured fibers under atmospheric conditions," *Optical Fiber Technology* **38**, 154–159 (2017).
 53. P. Domachuk, N. A. Wolchover, M. Cronin-Golomb, A. Wang, A. K. George, C. M. B. Cordeiro, J. C. Knight, and F. G. Omenetto, "Over 4000 nm Bandwidth of Mid-IR Supercontinuum Generation in sub-centimeter Segments of Highly Nonlinear Tellurite PCFs," *Opt. Express*, OE **16**, 7161–7168 (2008).
 54. R. Thapa, D. Rhonehouse, D. Nguyen, K. Wiersma, C. Smith, J. Zong, and A. Chavez-Pirson, "Mid-IR supercontinuum generation in ultra-low loss, dispersion-zero shifted tellurite glass fiber with extended coverage beyond 4.5 μm ," in *Technologies for Optical Countermeasures X; and High-Power Lasers 2013: Technology and Systems* (SPIE, 2013), Vol. 8898, pp. 24–31.
 55. C. Strutynski, P. Froidevaux, F. Désévéday, J.-C. Jules, G. Gadret, A. Bendahmane, K. Tarnowski, B. Kibler, and F. Smektala, "Tailoring supercontinuum generation beyond 2 μm in step-index tellurite fibers," *Opt. Lett.* **42**, 247 (2017).
 56. C. Strutynski, J. Picot-Clémente, A. Lemièrre, P. Froidevaux, F. Désévéday, G. Gadret, J.-C. Jules, B. Kibler, and F. Smektala, "Fabrication and characterization of step-index tellurite fibers with varying numerical aperture for near- and mid-infrared nonlinear optics," *J. Opt. Soc. Am. B* **33**, D12 (2016).
 57. P. Froidevaux, A. Lemièrre, B. Kibler, F. Désévéday, P. Mathey, G. Gadret, J.-C. Jules, K. Nagasaka, T. Suzuki, Y. Ohishi, and F. Smektala, "Dispersion-Engineered Step-Index Tellurite Fibers for Mid-Infrared Coherent Supercontinuum Generation from 1.5 to 4.5 μm with Sub-Nanojoule Femtosecond Pump Pulses," *Applied Sciences* **8**, 1875 (2018).
 58. B. Kibler, A. Lemièrre, J.-T. Gomes, D. Gaponov, L. Lavoute, F. Désévéday, and F. Smektala, "Octave-spanning coherent supercontinuum generation in a step-index tellurite fiber and towards few-cycle pulse compression at 2 μm ," *Optics Communications* **488**, 126853 (2021).
 59. S. Kedenburg, C. Strutynski, B. Kibler, P. Froidevaux, F. Désévéday, G. Gadret, J.-C. Jules, T. Steinle, F. Mörz, A. Steinmann, H. Giessen, and F. Smektala, "High repetition rate mid-infrared supercontinuum generation from 1.3 to 5.3 μm in robust step-index tellurite fibers," *J. Opt. Soc. Am. B*, JOSAB **34**, 601–607 (2017).
 60. L. B. Shaw, V. Q. Nguyen, J. S. Sanghera, I. D. Aggarwal, P. A. Thielen, and F. H. Kung, "IR Supercontinuum Generation in As-Se Photonic Crystal Fiber," (2005).
 61. D.-P. Wei, T. V. Galstian, I. V. Smolnikov, V. G. Plotnichenko, and A. Zohrabyan, "Spectral broadening of femtosecond pulses in a single-mode As-S glass fiber," *Opt. Express* **13**, 2439 (2005).
 62. M. El-Amraoui, J. Fatome, J. C. Jules, B. Kibler, G. Gadret, C. Fortier, F. Smektala, I. Skripatchev, C. F. Polacchini, Y. Messaddeq, J. Troles, L. Brilland, M. Szpulak, and G. Renversez, "Strong infrared spectral broadening in low-loss As-S chalcogenide suspended core microstructured optical fibers," *Opt. Express* **18**, 4547 (2010).
 63. S. Dai, Y. Wang, X. Peng, P. Zhang, X. Wang, and Y. Xu, "A Review of Mid-Infrared Supercontinuum Generation in Chalcogenide Glass Fibers," *Applied Sciences* **8**, 707 (2018).

64. C. R. Petersen, U. Møller, I. Kubat, B. Zhou, S. Dupont, J. Ramsay, T. Benson, S. Sujecki, N. Abdel-Moneim, Z. Tang, D. Furniss, A. Seddon, and O. Bang, "Mid-infrared supercontinuum covering the 1.4–13.3 μm molecular fingerprint region using ultra-high NA chalcogenide step-index fibre," *Nature Photon* **8**, 830–834 (2014).
65. T. Cheng, K. Nagasaka, T. H. Tuan, X. Xue, M. Matsumoto, H. Tezuka, T. Suzuki, and Y. Ohishi, "Mid-infrared supercontinuum generation spanning 2 to 15.1 μm in a chalcogenide step-index fiber," *Opt. Lett.* **41**, 2117 (2016).
66. H. Ou, S. Dai, P. Zhang, Z. Liu, X. Wang, F. Chen, H. Xu, B. Luo, Y. Huang, and R. Wang, "Ultrabroad supercontinuum generated from a highly nonlinear Ge–Sb–Se fiber," *Opt. Lett.* **41**, 3201 (2016).
67. Z. Wu, L. Yang, Y. Xu, P. Zhang, Q. Nie, and X. Wang, "1.8–13 μm supercontinuum generation by pumping at normal dispersion regime of As–Se–Te glass fiber," *J Am Ceram Soc* **102**, 5025–5032 (2019).
68. Z. Zhao, X. Wang, S. Dai, Z. Pan, S. Liu, L. Sun, P. Zhang, Z. Liu, Q. Nie, X. Shen, and R. Wang, "1.5–14 μm midinfrared supercontinuum generation in a low-loss Te-based chalcogenide step-index fiber," *Opt. Lett.* **41**, 5222 (2016).
69. K. Jiao, J. Yao, X. Wang, X. Wang, Z. Zhao, B. Zhang, N. Si, J. Liu, X. Shen, P. Zhang, S. Dai, Q. Nie, and R. Wang, "1.2–15.2 μm supercontinuum generation in a low-loss chalcohalide fiber pumped at a deep anomalous-dispersion region," *Opt. Lett.* **44**, 5545 (2019).
70. Z. Xue, Q. Li, P. Chen, Y. Tian, K. Jiao, X. Wang, Z. Zhao, X. Wang, P. Zhang, S. Dai, R. Wang, and Q. Nie, "Mid-infrared supercontinuum in well-structured As Se fibers based on peeled-extrusion," *Optical Materials* **89**, 402–407 (2019).
71. M. Zhong, X. Liang, J. Xiao, G. Wu, K. Jiao, X. Wang, T. Xu, J. Liu, Z. Zhao, X. Wang, R. Wang, Y. Zhou, P. Zhang, Y. Liu, and Q. Nie, "Ultra-large mode area mid-infrared fiber based on chalcogenide glasses extrusion," *J. Am. Ceram. Soc.* **104**, 343–349 (2021).
72. Z. Zhao, B. Wu, X. Wang, Z. Pan, Z. Liu, P. Zhang, X. Shen, Q. Nie, S. Dai, and R. Wang, "Mid-infrared supercontinuum covering 2.0–16 μm in a low-loss telluride single-mode fiber," *Laser & Photonics Reviews* **11**, 1700005 (2017).
73. C. R. Petersen, R. D. Engelsholm, C. Markos, L. Brilland, C. Caillaud, J. Trolès, and O. Bang, "Increased mid-infrared supercontinuum bandwidth and average power by tapering large-mode-area chalcogenide photonic crystal fibers," *Opt. Express* **25**, 15336 (2017).
74. D. D. Hudson, S. Antipov, L. Li, I. Alamgir, T. Hu, M. E. Amraoui, Y. Messaddeq, M. Rochette, S. D. Jackson, and A. Fuerbach, "Toward all-fiber supercontinuum spanning the mid-infrared," *Optica* **4**, 1163 (2017).
75. Y. Wang, S. Dai, G. Li, D. Xu, C. You, X. Han, P. Zhang, X. Wang, and P. Xu, "1.4–7.2 μm broadband supercontinuum generation in an As-S chalcogenide tapered fiber pumped in the normal dispersion regime," *Opt. Lett.* **42**, 3458 (2017).
76. Y. Yuan, P. Yang, X. Peng, Z. Cao, S. Ding, N. Zhang, Z. Liu, P. Zhang, X. Wang, and S. Dai, "Ultrabroadband and coherent mid-infrared supercontinuum generation in all-normal dispersion Te-based chalcogenide all-solid microstructured fiber," *J. Opt. Soc. Am. B, JOSAB* **37**, 227–232 (2020).
77. H. P. T. Nguyen, T. H. Tuan, L. Xing, M. Matsumoto, G. Sakai, T. Suzuki, and Y. Ohishi, "Supercontinuum generation in a chalcogenide all-solid hybrid microstructured optical fiber," *Opt. Express* **28**, 17539 (2020).
78. R. A. Martinez, G. Plant, K. Guo, B. Janiszewski, M. J. Freeman, R. L. Maynard, M. N. Islam, F. L. Terry, O. Alvarez, F. Chenard, R. Bedford, R. Gibson, and A. I. Ifarraguerri, "Mid-infrared supercontinuum generation from 1.6 to >11 μm using concatenated step-index fluoride and chalcogenide fibers," *Opt. Lett., OL* **43**, 296–299 (2018).
79. K. Guo, R. A. Martinez, G. Plant, L. Maksymiuk, B. Janiszewski, M. J. Freeman, R. L. Maynard, M. N. Islam, F. L. Terry, R. Bedford, R. Gibson, F. Chenard, S. Chatigny, and A. I. Ifarraguerri, "Generation of near-diffraction-limited, high-power supercontinuum from 1.57 μm to 12 μm with cascaded fluoride and chalcogenide fibers," *Appl Opt* **57**, 2519–2532 (2018).
80. S. Venck, F. St-Hilaire, L. Brilland, A. N. Ghosh, R. Chahal, C. Caillaud, M. Meneghetti, J. Troles, F. Joulain, S. Cozic, S. Poulain, G. Huss, M. Rochette, J. M. Dudley, and T. Sylvestre, "2–10 μm

- Mid-Infrared Fiber-Based Supercontinuum Laser Source: Experiment and Simulation," *Laser & Photonics Reviews* **14**, 2000011 (2020).
81. G. Woyessa, K. Kwarkye, M. K. Dasa, C. R. Petersen, R. Sidharthan, S. Chen, S. Yoo, and O. Bang, "Power stable 1.5–10.5 μm cascaded mid-infrared supercontinuum laser without thulium amplifier," *Opt. Lett.*, **OL 46**, 1129–1132 (2021).
 82. N. M. Israelsen, C. R. Petersen, A. Barh, D. Jain, M. Jensen, G. Hanneschläger, P. Tidemand-Lichtenberg, C. Pedersen, A. Podoleanu, and O. Bang, "Real-time high-resolution mid-infrared optical coherence tomography," *Light Sci Appl* **8**, 11 (2019).
 83. S. Rao D. S., M. Jensen, L. Grüner-Nielsen, J. T. Olsen, P. Heiduschka, B. Kemper, J. Schnekenburger, M. Glud, M. Mogensen, N. M. Israelsen, and O. Bang, "Shot-noise limited, supercontinuum-based optical coherence tomography," *Light Sci Appl* **10**, 133 (2021).
 84. C. R. Petersen, N. Prtljaga, M. Farries, J. Ward, B. Napier, G. R. Lloyd, J. Nallala, N. Stone, and O. Bang, "Mid-infrared multispectral tissue imaging using a chalcogenide fiber supercontinuum source," *Opt. Lett.*, **OL 43**, 999–1002 (2018).
 85. M. Evrard, T. Mansuryan, V. Couderc, F. Désévéday, C. Strutynski, M. Dussauze, Y. Arosa Lobato, A. Tonello, M. Colas, G. El-Dib, S. Danto, T. Cardinal, and F. Smektala, "Highly Nonlinear Multimode Tellurite Fibers: From Glass Synthesis to Practical Applications in Multiphoton Imaging," *Advanced Photonics Research* **4**, 2200213 (2023).
 86. J. Kilgus, G. Langer, K. Duswald, R. Zimmerleiter, I. Zorin, T. Berer, and M. Brandstetter, "Diffraction limited mid-infrared reflectance microspectroscopy with a supercontinuum laser," *Opt. Express*, **OE 26**, 30644–30654 (2018).
 87. A. Rampur, D.-M. Spangenberg, B. Sierro, P. Hänzi, M. Klimczak, and A. M. Heidt, "Perspective on the next generation of ultra-low noise fiber supercontinuum sources and their emerging applications in spectroscopy, imaging, and ultrafast photonics," *Applied Physics Letters* **118**, 240504 (2021).
 88. R. I. Woodward, D. D. Hudson, A. Fuerbach, and S. D. Jackson, "Generation of 70-fs pulses at 2.86 μm from a mid-infrared fiber laser," *Opt. Lett.*, **OL 42**, 4893–4896 (2017).
 89. D. D. Hickstein, H. Jung, D. R. Carlson, A. Lind, I. Coddington, K. Srinivasan, G. G. Ycas, D. C. Cole, A. Kowligy, C. Fredrick, S. Droste, E. S. Lamb, N. R. Newbury, H. X. Tang, S. A. Diddams, and S. B. Papp, "Ultrabroadband Supercontinuum Generation and Frequency-Comb Stabilization Using On-Chip Waveguides with Both Cubic and Quadratic Nonlinearities," *Phys. Rev. Appl.* **8**, 014025 (2017).
 90. I. Zorin, P. Gattinger, A. Ebner, and M. Brandstetter, "Advances in mid-infrared spectroscopy enabled by supercontinuum laser sources," *Opt. Express* **30**, 5222 (2022).
 91. M. A. Abbas, K. E. Jahromi, M. Nematollahi, R. Krebbers, N. Liu, G. Woyessa, O. Bang, L. Huot, F. J. M. Harren, and A. Khodabakhsh, "Fourier transform spectrometer based on high-repetition-rate mid-infrared supercontinuum sources for trace gas detection," *Opt. Express*, **OE 29**, 22315–22330 (2021).
 92. I. Zorin, J. Kilgus, K. Duswald, B. Lendl, B. Heise, and M. Brandstetter, "Sensitivity-Enhanced Fourier Transform Mid-Infrared Spectroscopy Using a Supercontinuum Laser Source," *Appl Spectrosc* **74**, 485–493 (2020).
 93. A. Lemièrè, A. Maldonado, F. Désévéday, B. Kibler, P. Mathey, G. Gadret, J.-C. Jules, N. P. T. Hoa, T. Suzuki, Y. Ohishi, and F. Smektala, "Towards absorption spectroscopy by means of mid-infrared supercontinuum generation in a step index tellurite fiber," *Laser Phys.* **31**, 025702 (2021).
 94. M. Kumar, M. N. Islam, F. L. Terry, M. J. Freeman, A. Chan, M. Neelakandan, and T. Manzur, "Stand-off detection of solid targets with diffuse reflection spectroscopy using a high-power mid-infrared supercontinuum source," *Appl. Opt.*, **AO 51**, 2794–2807 (2012).
 95. Y. Ohishi, "Supercontinuum generation and IR image transportation using soft glass optical fibers: a review [Invited]," *Opt. Mater. Express* **12**, 3990 (2022).
 96. C. R. Petersen, P. M. Moselund, L. Huot, L. Hooper, and O. Bang, "Towards a table-top synchrotron based on supercontinuum generation," *Infrared Physics & Technology* **91**, 182–186 (2018).

Chapitre II

Techniques et dispositifs expérimentaux

Résumé du chapitre : Ce chapitre présente les différentes techniques et dispositifs expérimentaux nécessaires pour les expériences de la suite de ce manuscrit. Les sources lasers utilisées ainsi que le banc expérimental de génération de SC sont ainsi détaillés. La fabrication d'un verre chalcogénure et sa mise en forme en fibre optique est présentée. Les outils numériques nécessaires pour la simulation de SC sont également présentés.

Table des matières

1.	Dispositifs expérimentaux	41
1.1.	Sources laser utilisées	41
1.1.1.	Source femtoseconde (cadence au kHz)	41
1.1.2.	Source femtoseconde (cadence jusqu'au MHz).....	42
1.2.	Banc de génération et caractérisation de supercontinuum	44
1.2.1.	Caractéristiques des optiques de couplage	45
1.2.2.	Caractéristiques des densités optiques.....	47
1.2.3.	Systèmes de caractérisation	47
1.2.4.	Calibration des mesures.....	50
1.3.	Fabrication et caractérisation d'une fibre chalcogénure effilée (taper).....	51
1.3.1.	Fabrication d'un verre Ge-Se-Te	51
1.3.2.	Mesure des indices de réfraction	52
1.3.3.	Élaboration d'une fibre optique	54
1.3.4.	Mesure des pertes optiques de la fibre.....	55
1.3.5.	Fabrication d'une fibre effilée	56
2.	Outils numériques.....	57
2.1.	L'équation de Schrödinger non-linéaire généralisée.....	57
2.2.	Résolution numérique	57
2.2.1.	L'opérateur linéaire.....	58
2.2.2.	L'opérateur non-linéaire	59
2.2.3.	Cohérence du spectre.....	61
3.	Conclusion.....	61

1. Dispositifs expérimentaux

Les différents dispositifs expérimentaux utilisés dans la suite de ce manuscrit comme les sources laser, les différents systèmes de caractérisation ou encore la fabrication d'un verre de chalcogénures sont détaillés ci-dessous.

1.1. Sources laser utilisées

Dans le cadre de ce travail de recherche deux principales sources laser ont pu être utilisées pour générer des nouvelles fréquences avec nos fibres optiques. Les deux sources vont être décrites dans cette partie.

1.1.1. Source femtoseconde (cadence au kHz)

Au cours de ce travail de recherche, deux missions ont été réalisées dans l'équipe du Pr. Ohishi au Toyota Technological Institute (TTI) à Nagoya (Japon). La chaîne laser utilisée lors de ces missions est décrite dans cette partie. C'est une chaîne laser travaillant à la cadence de 1 kHz, l'impulsion initiale est délivrée par un système amplificateur Ti:Sapphire (Coherent Mira 900) à 800 nm dont l'énergie est augmentée jusqu'à 1 mJ. L'impulsion laser amplifiée est ensuite envoyée dans un amplificateur paramétrique optique de superfluorescence (TOPAS) pour générer un signal accordable de 1160 nm à 1600 nm et un idler entre 1600 nm et 2600 nm. Le signal et l'idler sont ensuite combinés de manière colinéaire dans un module DFG pour obtenir une impulsion accordable dans l'infrarouge entre 2,5 μm et 11 μm , avec une durée d'impulsion de 170 fs. Le schéma de la chaîne laser est présenté en Figure II.1 (a). Comme c'est une chaîne travaillant au kHz, il y a bien entendu moins de puissance moyenne, comme le démontre l'évolution de la puissance en fonction de la longueur d'onde (Fig. II.1 (b)). Cependant l'énergie par impulsion est très importante, avec par exemple 4,5 μJ à 4 μm et 3 μJ à 10 μm , représentant une puissance crête de respectivement 26 MW et 18 MW [1]. Les puissances crêtes sont donc conséquentes, ce qui est bénéfique pour la génération d'effets non-linéaires dans nos fibres optiques. Il faut noter qu'expérimentalement, c'est bien la puissance moyenne qui est mesurée. Les spectres d'une pompe à 6 μm et 7 μm sont également présentés en Figure II.1 (c). Les largeurs spectrales des pompes laser à -3 dB sont d'environ 570 nm et 800 nm pour respectivement 6 et 7 μm .

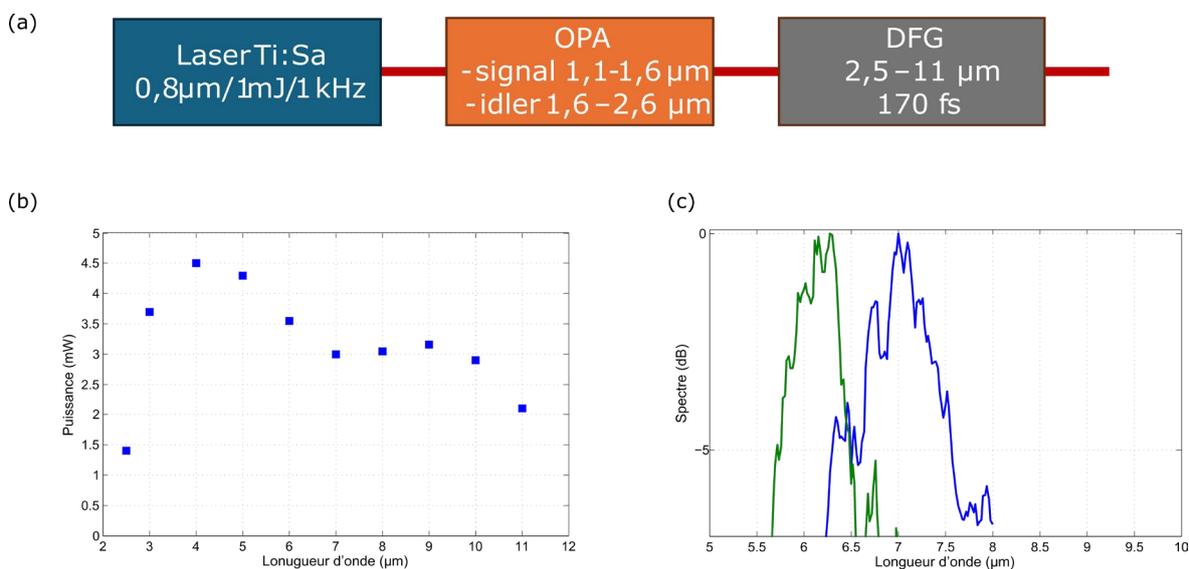


Figure II.1 - (a) Schéma de la source laser disponible au TTI. (b) Évolution de la puissance moyenne en fonction de la longueur d'onde de pompe [1]. (c) Spectres des pompes de 6 et 7 μm .

1.1.2. Source femtoseconde (cadence jusqu'au MHz)

1.1.2.1. Description de la source

La source principalement utilisée est la source Coherent Monaco avec un amplificateur paramétrique optique Light Conversion Opera-One, situé au laboratoire ICB à Dijon. Le schéma de la source est présenté en Figure II.2 (a). Elle est composée d'un oscillateur dopé Ytterbium, délivrant des impulsions centrées à 1035 nm avec une durée d'impulsion de 257 fs. Cet oscillateur génère une forte puissance moyenne en sortie avec 60 W à 1 MHz, représentant une énergie de 60 μ J par impulsion [2]. Afin d'obtenir une longueur d'onde de pompe plus loin dans l'infrarouge, l'oscillateur pompe un OPA permettant d'obtenir un signal entre 1350 nm et 2060 nm et un idler entre 2060 nm et 4500 nm. Un cristal infrarouge est utilisé dans le but de mélanger la composante signal et idler pour avoir une pompe laser dans la gamme spectrale entre 4500 nm et 16000 nm. Le matériau utilisé pour le cristal est en GaSe. La cadence est réglable entre 10 kHz et 1 MHz.

Dans la gamme d'utilisation du module DFG, l'énergie par impulsion est en dessous du μ J avec, par exemple, une puissance moyenne de 850 mW à 1 MHz de cadence à la longueur d'onde de 5 μ m (\sim 0,85 μ J) ou 134 mW à 1 MHz à 16 μ m (\sim 0,14 μ J) [3]. En termes de puissance crête, cela correspond à 3,3 MW à 5 μ m ou 0,5 MW à 16 μ m en considérant une durée d'impulsion de 257 fs. L'évolution de la puissance moyenne en fonction de la longueur d'onde à la cadence de 1 MHz est présentée en Figure II.2 (b). Les spectres expérimentaux de la pompe laser à 6, 7 et 8 μ m sont également présentés en Figure II.2 (c). Le constructeur annonce des durées d'impulsion supérieures à 250 fs pour les pompes laser avec le module DFG, ce qui est en accord avec nos mesures spectrales. En effet, les largeurs spectrales expérimentales à -3 dB pour les pompes de 6,7 et 8 μ m sont de 210 nm, 300 nm et 385 nm. Ces valeurs correspondent par transformée de Fourier à des impulsions gaussiennes d'environ 261 fs, 247 fs et 253 fs.

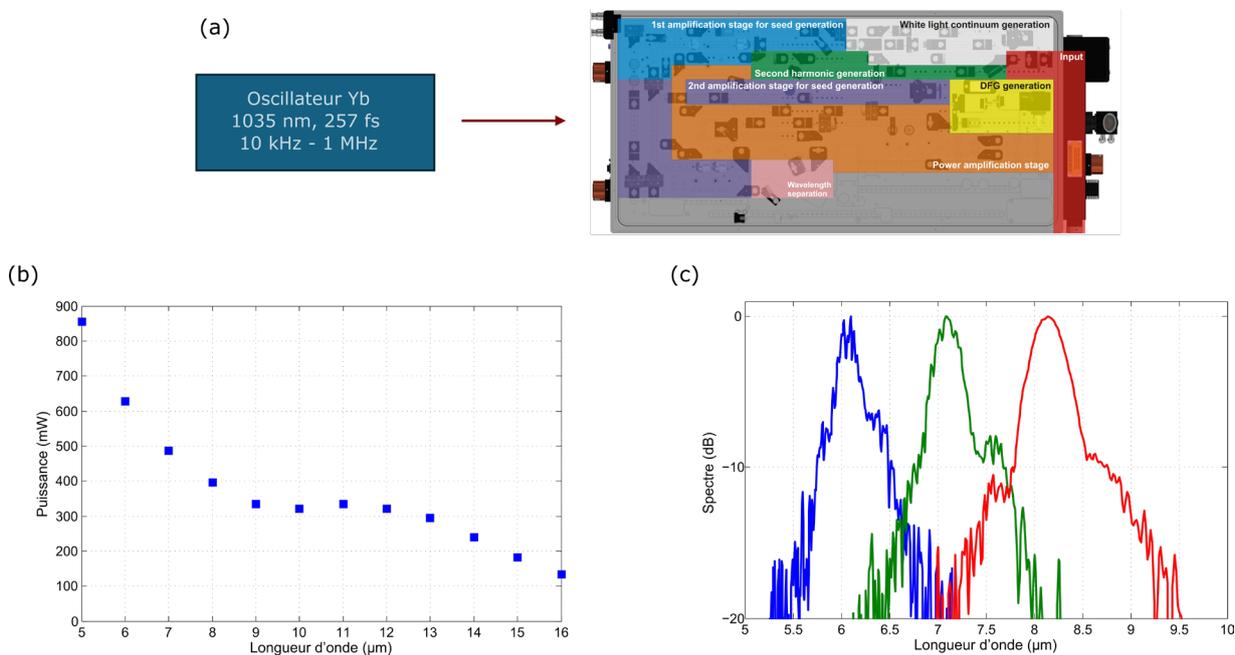


Figure II.2 - (a) Schéma de la source laser avec la description des différentes parties du dispositif Opera-One [2,3].(b) Évolution de la puissance moyenne en sortie de DFG en fonction de la longueur d'onde de pompe. (c) Spectres des pompes de 6,7 et 8 μ m.

1.1.1.1. Caractérisation de la source laser

Dans le but de caractériser la répartition spatiale du faisceau laser, nous avons mis en place la méthode dite du « couteau ». Cette technique consiste à venir placer devant le faisceau laser un couteau (lame de rasoir dans notre cas) et mesurer la puissance reçue par un détecteur [4,5]. Le schéma du principe est présenté en Figure II.3. Expérimentalement, nous avons relevé la puissance pour différentes positions du couteau devant le faisceau laser, mais également en plaçant le couteau plus ou moins loin par rapport à la sortie du faisceau (variable x dans l'Éq. II.1). En traçant l'évolution de la puissance, nous obtenons une courbe comme celle présentée en Figure II.3. Pour estimer le diamètre du faisceau, nous réalisons la différence entre la position 1 et 2 où nous mesurons respectivement 88% et 12% de la puissance moyenne. Pour rappel, pour une distribution gaussienne, la largeur à mi-hauteur (FWHM) vaut $2,355\sigma$ avec σ l'écart type. L'aire sous la courbe entre $\pm 2,355\sigma/2$ contient 76 % des valeurs. Ce processus de calcul nous permet donc d'estimer le diamètre du faisceau à mi-hauteur.

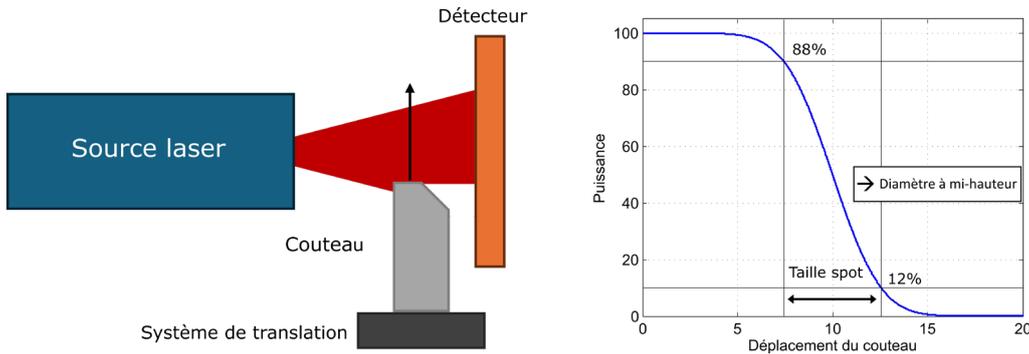


Figure II.3 - Schéma du principe de la méthode du « couteau » pour estimer le diamètre du faisceau laser. L'évolution de la puissance en fonction du déplacement du couteau est également représentée.

Plusieurs mesures ont été effectuées pour une longueur d'onde de pompe donnée. La Figure II.4 présente trois résultats pour les longueurs d'onde de 5,6 et 8 μm . Ces mesures ont été réalisées à la cadence de 30 kHz et donc sans optique à la sortie du faisceau laser. La variation du diamètre d'un faisceau laser gaussien $w(x)$ peut se définir de la manière suivante :

$$w(x) = w_0 \sqrt{1 + \left(\frac{\lambda x}{\pi w_0^2}\right)^2} \quad (II.1)$$

avec w_0 le waist du faisceau et λ la longueur d'onde. En interpolant nos valeurs expérimentales (points bleus sur la Fig.II.4) avec la formule (II.1), nous obtenons les courbes présentées en rouge, qui permettent de déduire la position et la taille du waist.

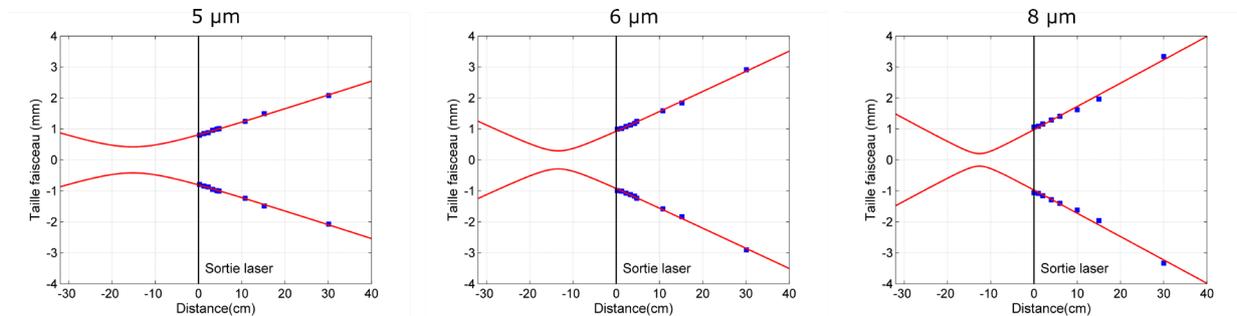


Figure II.4 - Résultats des mesures pour différentes longueurs d'onde de pompe de la divergence du faisceau par la méthode du couteau et interpolation avec la formule de variation du waist.

Nous observons que le waist devient de plus en plus faible avec l'augmentation de la longueur d'onde, correspondant à une divergence plus importante à 8 μm qu'à 5 μm . Nous remarquons également

que la position du waist estimée par l'interpolation est située aux alentours de 15 cm, avant la sortie du faisceau laser. Ce résultat est assez cohérent car le dernier cristal infrarouge DFG est situé autour de 20 cm avant la sortie du faisceau. Cette première caractérisation du faisceau pourrait être complétée par l'utilisation d'une caméra, travaillant sur la gamme 2-16 μm . En revanche, le laboratoire TTI disposant d'une caméra travaillant sur la gamme 2-16 μm , celle-ci a donc été utilisée pour caractériser le contenu spatial des SC obtenus lors de la première mission à Nagoya.

Les mesures présentées sont effectuées selon l'axe x correspondant au plan horizontal. Les mesures selon l'axe y (plan vertical) ont également été effectuées. La divergence du faisceau est légèrement différente selon les deux axes. La Figure II.5 présente le résultat de la divergence selon les deux axes pour la pompe à 5 μm .

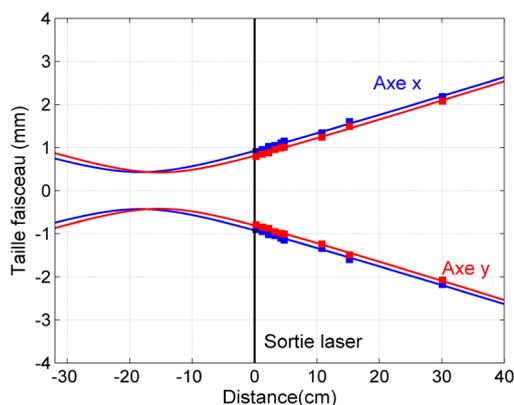


Figure II.5 – Mesures à 5 μm de la divergence du faisceau par la méthode du couteau selon l'axe x et l'axe y.

Le faisceau pour la pompe laser de 5 μm présente donc une certaine ellipticité et le calcul de l'angle de divergence donne une valeur de 4,34 mrad selon l'axe x et 4,24 mrad, suivant l'axe y. Cette divergence est également plus importante avec la longueur d'onde et vaut 8,57 mrad et 7,71 mrad selon l'axe x et y à la longueur d'onde pompe de 8 μm . Ces mesures ont été réalisées plusieurs fois au cours de la thèse, les résultats vont dans le même sens (diamètre selon x plus important que selon y). Par la suite, le but a été d'éviter au maximum que la divergence du faisceau ne soit un problème, mais également de limiter les différentes optiques utilisées pour mettre en forme le faisceau. Ainsi, il a été décidé de placer la lentille de couplage et la fibre non-linéaire directement à la sortie du faisceau laser.

1.2. Banc de génération et caractérisation de supercontinuum

Dans cette partie, nous allons nous intéresser au banc de génération et caractérisation de SC dans l'infrarouge mis en place. Comme le présente la Figure II.6, le montage d'un banc de caractérisation d'un SC consiste en la source laser femtoseconde, une optique de couplage, une fibre non-linéaire et un système de caractérisation dans l'infrarouge. Afin d'optimiser le couplage dans notre fibre non-linéaire, nous utilisons une platine 5 axes. Le système de caractérisation est composé d'une fibre de collection et d'un détecteur, que ce soit un monochromateur couplé à un MCT (Mercure-Cadmium-Tellure), un FT-IR Arcoptix (Fourier Transform Infrared spectroscopy) ou un analyseur de spectre OSA. La mesure de la puissance peut également être effectuée via un puissance-mètre ou des mesures de caractérisation spatiales avec une caméra IR. Dans cette partie, nous allons décrire les différents éléments composants notre banc expérimental, en commençant par le choix de l'optique de couplage.

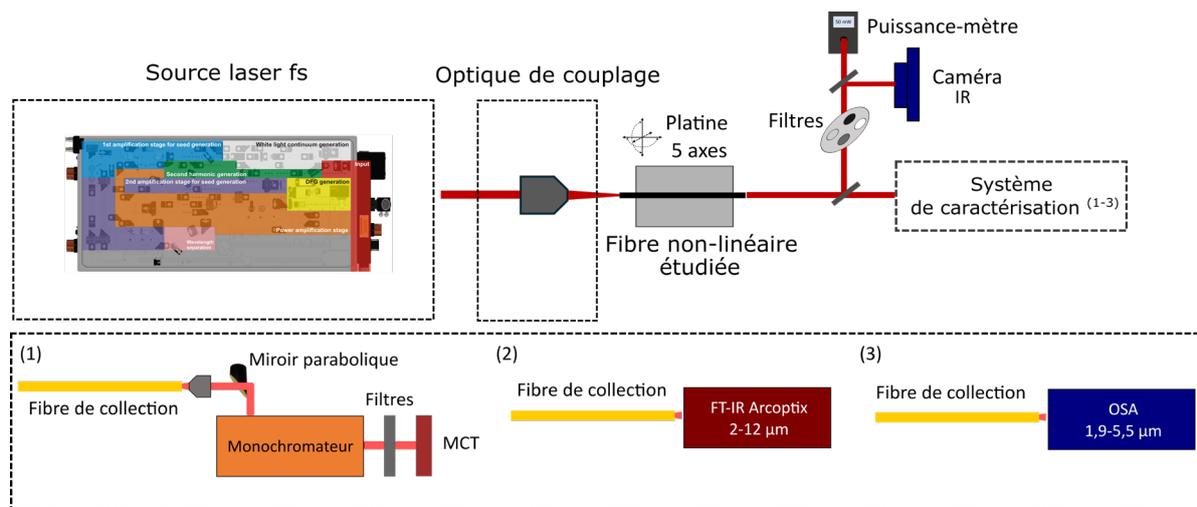


Figure II.6 – Banc de génération et caractérisation d'un SC dans l'infrarouge.

1.2.1. Caractéristiques des optiques de couplage

Le choix de l'optique d'injection à utiliser lors d'une expérience de génération de SC est primordial pour optimiser au mieux le couplage dans la fibre optique. Pour commencer, le choix du matériau utilisé pour l'optique va dépendre de la longueur d'onde disponible pour pomper la fibre. Ensuite la focale de la lentille va être déterminée afin d'obtenir un waist au point focal, s'approchant au mieux du diamètre à mi-hauteur du mode fondamental de la fibre étudiée afin de favoriser son excitation. Dans le cas d'une fibre à saut d'indice à petit cœur, il sera nécessaire d'utiliser des lentilles avec des focales très courtes (3 mm, 4 ou encore 6 mm par exemple). En revanche, pour une fibre mono-indice fortement multimode, une lentille avec une focale plus grande que 20 mm sera plus appropriée pour coupler au mieux dans ce mode fondamental. La Figure II.7 présente les transmissions des principaux matériaux utilisés pour les lentilles d'injection. Nous pouvons noter que, si la longueur d'onde de pompe choisie est plus courte que 6 µm, la lentille en CaF₂ semble appropriée avec une transmission supérieure à 90%. Pour des longueurs d'onde supérieures à 7 µm, une lentille en germanium avec un traitement de surface E3 ou alors une lentille en ZnSe avec un traitement E4 est idéale [6].

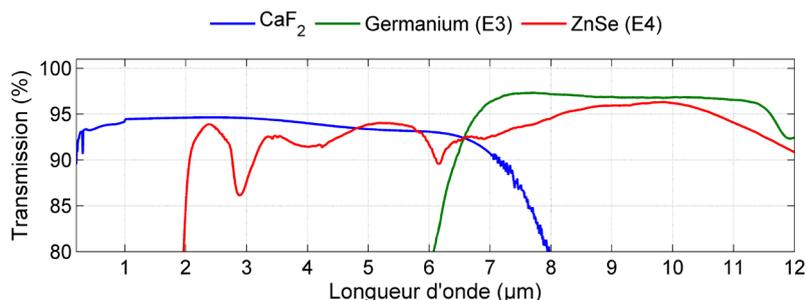


Figure II.7 - Transmissions des principales lentilles utilisées sur le banc expérimental. Les données proviennent du fabricant (Thorlabs) [6].

Nous disposons au laboratoire de lentilles avec des focales allant de 3 mm à plus de 100 mm. Afin d'avoir une estimation expérimentale de la taille du waist au point focal de la lentille, la méthode du couteau, présentée auparavant, a été réalisée avec certaines lentilles. Nous pouvons comparer nos résultats expérimentaux avec le comportement d'un faisceau gaussien, après le passage à travers un certain nombre de lentilles. Le schéma du système est présenté en Figure II.8 pour un faisceau gaussien traversant une lentille de focale f . La distance s représente la distance entre la lentille et la position du waist initial, et s' représente la distance entre la lentille et le nouveau waist après celle-ci.

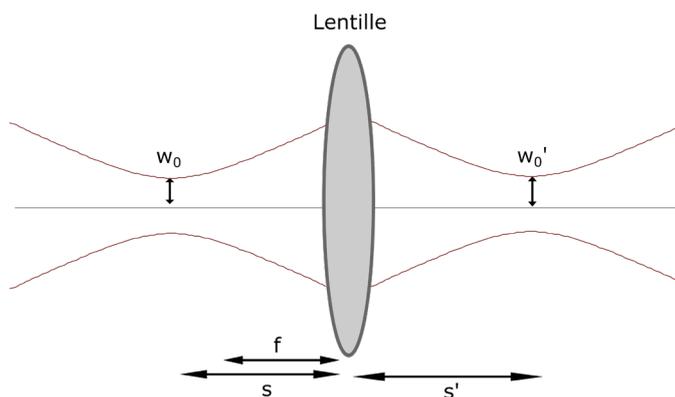


Figure II.8 – Schéma d'un faisceau gaussien traversant une lentille de focale f , placée à une distance s du waist initial.

Nous pouvons calculer la position s' ou également la taille du waist w_0' avec les formules suivantes, où z_R est la distance de Rayleigh ($\pi w_0^2/\lambda$) [7]:

$$s' = f \times \left(1 + \frac{[(s/f) - 1]}{[(s/f) - 1]^2 + (z_R/f)^2} \right) \quad (II.2)$$

$$w_0' = \frac{w_0}{\left[(1 - (s/f))^2 + (z_R/f)^2 \right]^{1/2}} \quad (II.3)$$

Les résultats obtenus pour une focale de 12 mm sont présentés en Figure II.9. Nous pouvons voir qu'il y a un bon accord entre la courbe théorique et les points expérimentaux avec un waist w_0' expérimental aux alentours de 18 μm et une valeur théorique de 20 μm . Nous pouvons noter donc des possibles difficultés pour coupler avec cette lentille, dans des fibres optiques avec des cœurs aux diamètres $< 20 \mu\text{m}$ [8].

Les valeurs obtenues pour les différentes lentilles, que ce soit expérimentalement ou théoriquement, constituent des indications précieuses quant à l'aspect spatial du faisceau laser. Une caméra IR haute résolution, en cours d'acquisition, est nécessaire afin de réaliser une caractérisation plus avancée de notre système.

Pour résumer, le choix d'une lentille d'injection est donc effectué par rapport à une longueur d'onde de pompe, mais également par rapport au diamètre de son waist attendu afin d'optimiser le couplage dans la fibre.

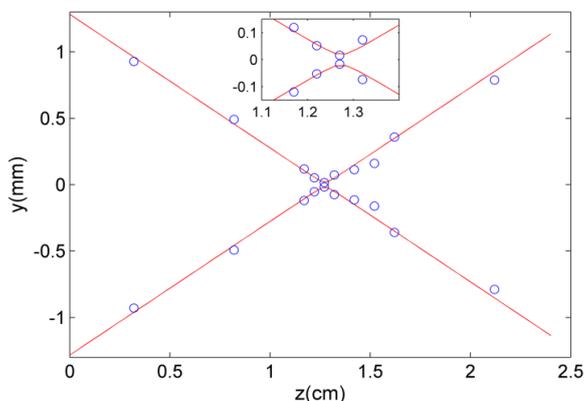


Figure II.9 – Résultats expérimentaux obtenus par la méthode du couteau avec une lentille de focale 12 mm (ronds bleus) et courbe théorique en rouge. Un agrandissement de la zone [11– 14] mm est également présenté. La position 0 cm, correspond à la sortie du faisceau laser.

1.2.2. Caractéristiques des densités optiques

Pour pouvoir étudier l'influence de la puissance crête couplée sur l'élargissement spectral, des densités sont utilisées dans l'infrarouge moyen (ND 0.3 et ND 1.0). Les courbes de transmission de ces densités sont présentées en Figure II.10. Pour rappel, la transmission est liée à la densité optique par $T = 10^{-OD}$, avec OD la valeur de la densité optique (0,3 ou 1,0 dans notre cas). Pour une longueur d'onde de 6 μm , la transmission est de 49 % pour la ND 0.3 et 8 % pour la ND 1.0.

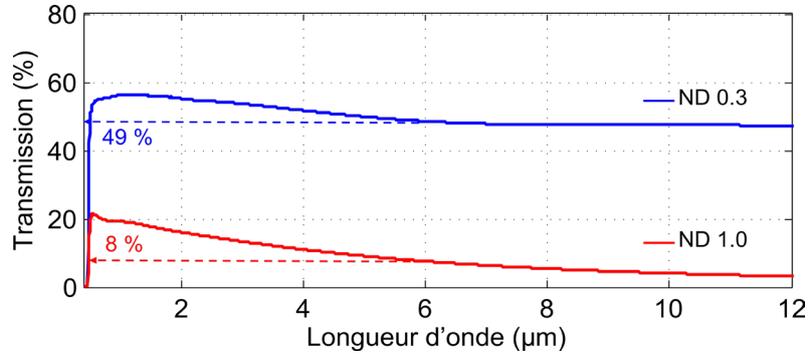


Figure II.10 - Transmission des densités optiques utilisées (ND 0.3 et ND 1.0). La valeur de transmission de chaque densité est indiquée pour la longueur d'onde de 6 μm . Données provenant de Thorlabs.

1.2.3. Systèmes de caractérisation

1.2.3.1. Fibres optiques de collection

Pour le système de caractérisation, il a été décidé d'utiliser premièrement une fibre de collection en sortie de fibre SC. L'idée étant de collecter le signal directement et de pouvoir le guider facilement jusqu'aux différents détecteurs, sans passer par plusieurs optiques avec un alignement parfois compliqué. Pour la gamme 2-16 μm , l'utilisation d'une fibre creuse (capillaire) provenant de *Guiding Photonics* est utilisée. La fibre d'une longueur de 1 m possède un diamètre interne de 1,5 mm avec différents revêtements diélectriques (voir Fig. II.10) [9]. Une fibre InF_3 avec un cœur de 400 μm provenant du *Verre Fluoré* est utilisée pour les SC dans la gamme en dessous de 5 μm [10]. Les transmissions sont présentées en Figure II.11.

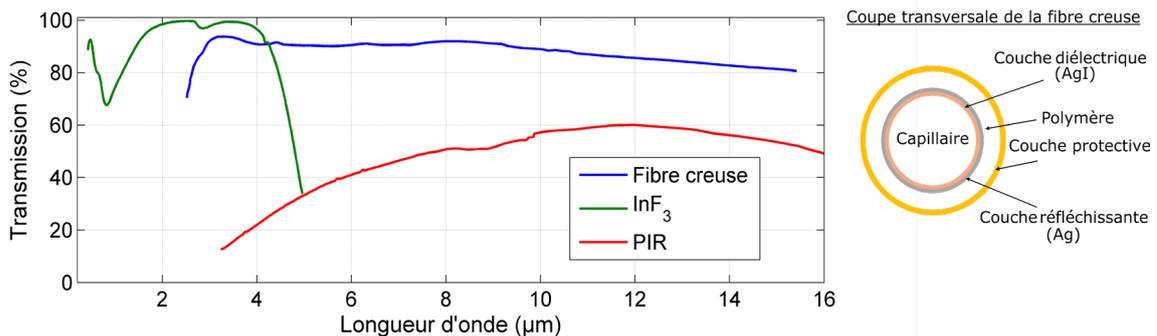


Figure II.11 – Transmissions des fibres de collection utilisées sur le banc expérimental. Les données proviennent du fabricant (Le Verre Fluoré pour l' InF_3 , Guiding Photonics pour la fibre creuse et ArtPhotonics pour la fibre polycristalline PIR). Une coupe transversale de la fibre creuse est également illustrée.

1.2.3.2. Monochromateur et MCT

Pour couvrir toute la gamme spectrale de nos spectres SC, nous avons besoin de combiner plusieurs appareils de détection. Pour caractériser un spectre, nous pouvons utiliser un monochromateur Horiba iHR320, associé à un détecteur MCT [11]. C'est une configuration dite « Czerny-Turner ». Le faisceau entrant dans le système (voir Fig. II.12 (a)) est collimaté avec le premier miroir parabolique et

ensuite dirigé sur un réseau. Le faisceau dispersé est ensuite focalisé à la sortie du monochromateur via un deuxième miroir parabolique. Dans notre système, nous avons trois réseaux travaillant sur des gammes spectrales différentes. Le premier (51016 - 60 l/mm) couvre la gamme 750 nm à 2100 nm, le deuxième (51026 - 150 l/mm) de 2100 nm à 8300 nm et le dernier (51040 - 600 l/mm) de 8300 nm à 22000 nm. L'efficacité relative des différents réseaux est présentée en Figure II.12 (b). Une roue à filtres est également intégrée en sortie de monochromateur contenant plusieurs filtres passe-haut LP-x (pour Long-Pass et x pour la valeur de la longueur d'onde où commence la transmission en nm : LP-1500, LP-3000, LP-5100, LP-6700 et LP-10000). Ces filtres permettent d'éliminer les ordres supérieurs de diffraction des réseaux.

Le détecteur MCT placé en sortie de monochromateur est un détecteur J15D22 ayant une sensibilité élevée entre 3 et 22 μm , devant être refroidi à une température de 77 K pour fonctionner. La sensibilité du détecteur est également présentée en Figure II.12 (c).

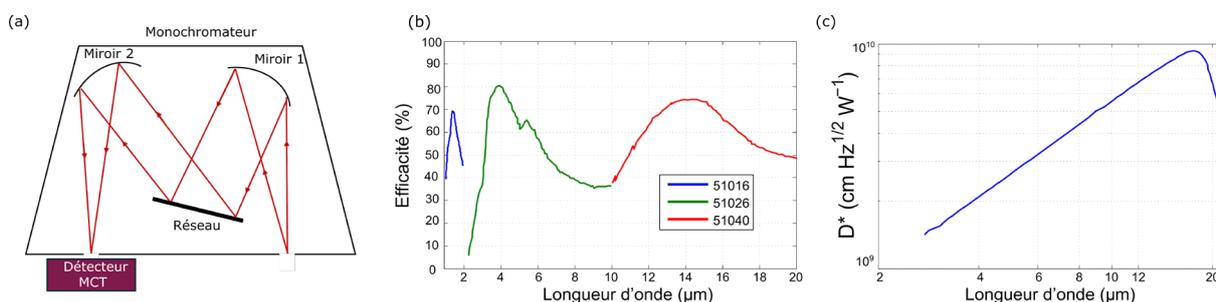


Figure II.12 – (a) Schéma du principe de fonctionnement du monochromateur. (b) Représentation de l'efficacité des réseaux en fonction de la longueur d'onde. (c) Sensibilité en fonction de la longueur d'onde du détecteur MCT (J15D22), utilisé avec le monochromateur.

1.2.3.3. Détecteur FT-IR Arcoptix

Nous disposons également d'un spectrophotomètre FT-IR Arcoptix travaillant sur la gamme 2-12 μm pour caractériser nos spectres. La spectroscopie par transformée de Fourier (Fourier Transform Infrared Region) est une méthode pour analyser un signal dans l'infrarouge. Le principe est présenté en Figure II.13 et consiste à envoyer une lumière infrarouge dans un système composé d'une lame séparatrice, d'un miroir en position fixe, d'un miroir mobile et d'un détecteur. En fonction de la position du miroir mobile, l'intensité du signal reçue par le détecteur va être modulée à cause d'interférences constructives ou destructives (principe de l'interféromètre de Michelson). Nous obtenons alors un interférogramme représentant l'intensité en fonction de la position du miroir. Par la suite une transformation de Fourier est réalisée afin de déterminer l'intensité du spectre en fonction de la longueur d'onde.

Le FT-IR utilisé est composé d'une lame séparatrice en ZnSe et d'un détecteur MCT refroidi électriquement. Dans cet appareil, pour créer la différence de chemin optique dans les deux bras de l'interféromètre, des rétro-rélecteurs sont fixés sur des bras pivotants. Ce type de conception est appelé interféromètre à alignement permanent et permet d'être robuste contre les vibrations ou les dérives de température tout en ne nécessitant pas d'être réaligné [12].

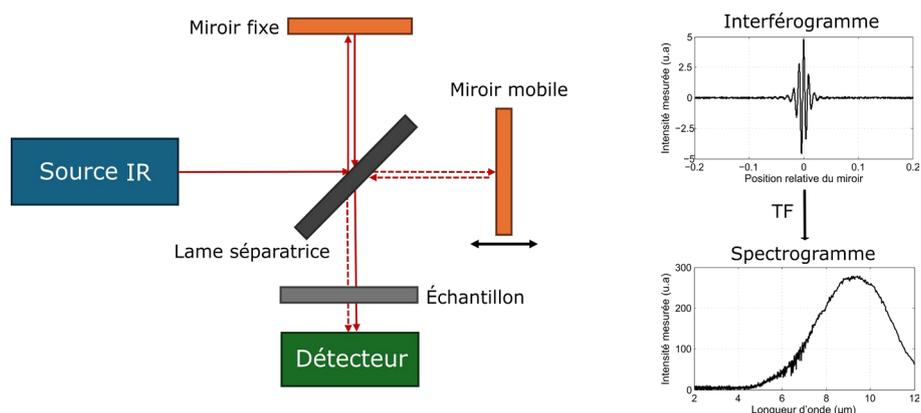


Figure II.13 – Principe d’une mesure de spectroscopie par transformée de Fourier avec un interféromètre de Michelson.

1.2.3.4. Analyseur de spectre optique (OSA)

Pour analyser un SC, nous avons également à notre disposition un analyseur de spectre optique. C’est un appareil de caractérisation spectrale beaucoup utilisé dans le domaine de la photonique. Le principe consiste à venir séparer la puissance optique en fonction de la longueur d’onde. La puissance est mesurée via une photodiode, après que le signal soit passé à travers un filtre autour d’un réseau de diffraction (Fig. II.14).

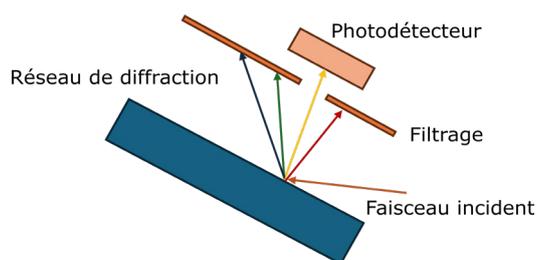


Figure II.14 – Schéma du fonctionnement d’un analyseur de spectre à filtrage par réseau de diffraction.

La couverture spectrale d’un appareil est limitée aux caractéristiques du réseau de diffraction utilisé. Nous utilisons un analyseur de spectre AQ6377 de chez Yokogawa, permettant d’acquérir un spectre sur la gamme spectrale 1,9-5,5 μm avec une résolution entre 0,2 et 5 nm.

1.2.3.5. Capteur de puissance thermique

Pour mesurer la puissance moyenne d’un SC, nous utilisons un capteur thermique S401C provenant de chez Thorlabs. Ce capteur travaille sur la gamme 0,19 – 20 μm pour des puissances comprises entre 10 μW et 1 W. Sa courbe d’absorbance en fonction de la longueur d’onde est illustrée avec la Figure III.15.

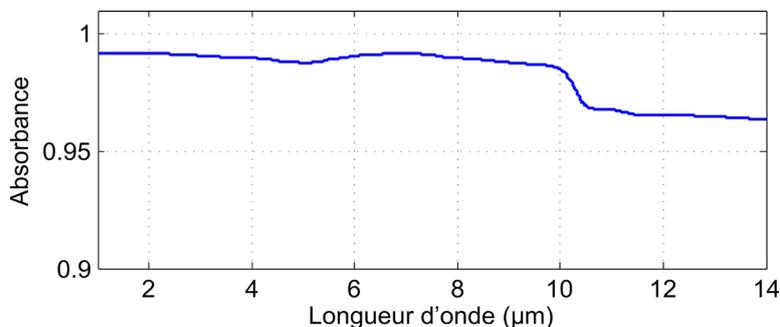


Figure II.15 - Courbe d’absorbance du capteur thermique S401C en fonction de la longueur d’onde. Données provenant de Thorlabs.

1.2.4. Calibration des mesures

Pour caractériser notre système de détection, nous avons dû mettre en place une mesure de calibration. Une source blanche Arcoptix (ArcLight IR [13]) ayant un spectre de 1 à 25 μm a été utilisée. Cette source fonctionne avec un global de carbure de silicium émettant en suivant la loi de Planck pour une température 1400 K. Pour rappel, la luminance spectrale d'un corps noir en $\text{W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}\cdot\text{nm}^{-1}$ se calcule de la manière suivante :

$$L_{\lambda} = \frac{2hc^2}{\lambda^5 \left(e^{\frac{hc}{\lambda kT}} - 1 \right)} \quad (\text{II.4})$$

avec h la constante de Planck (J.s), k la constante de Boltzmann ($\text{J}\cdot\text{K}^{-1}$) et T la température du corps (K).

La calibration s'effectue en injectant le faisceau de la source blanche dans la fibre de collection (fibre InF_3 ou fibre creuse (HCF)), puis en collectant le signal avec les différents systèmes de détection (monochromateur, FT-IR arcoptix ou encore l'OSA). La Figure II.16 présente les spectres obtenus pour les différents couples fibre/appareil de mesure. La courbe noire représente la courbe théorique d'un corps noir portée à une température de 1400 K. Pour le couple InF_3 /OSA (1,9-5,5 μm), la tendance du spectre enregistré est en accord avec la courbe théorique. En prenant la même fibre, mais cette fois avec le FT-IR Arcoptix, une correction légère doit être effectuée, notamment entre 2 et 5 μm . La tendance est ensuite respectée jusqu'à la forte atténuation de la fibre fluore vers 6 μm . Enfin pour le couple fibre creuse/monochromateur, nous pouvons noter un bon accord avec la courbe théorique, spécialement aux plus hautes longueurs d'onde. L'efficacité est la plus basse dans la gamme spectrale 5-8 μm . Cela peut s'expliquer d'une part, par le fait que le réseau utilisé possède une sensibilité faible dans cette gamme (voir Fig.II.12 (b)) et d'autre part, car l'eau absorbe fortement dans cette même plage spectrale. Pour les spectres visant la gamme 1.5-5 μm , l'OSA reste l'appareil de mesure le plus sensible avec la fibre InF_3 . Les spectres allant plus loin dans l'infrarouge sont mesurés avec le couple fibre creuse/monochromateur. Le FT-IR Arcoptix permettant d'acquérir un spectre rapidement (1 par seconde), il est utilisé principalement pour optimiser l'injection du laser dans la fibre en contrôlant l'élargissement du spectre en direct.

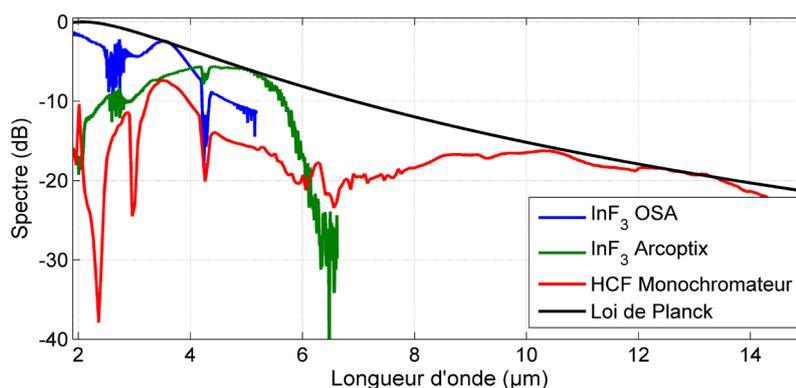


Figure II.16 – Spectres obtenus pour chaque couple (fibre/appareil de mesure) avec une source blanche émettant avec une température de 1400 K ainsi que sa courbe théorique.

Ensuite avec ces différentes mesures, nous pouvons déterminer un facteur correctif pour chaque longueur d'onde permettant de corriger les spectres obtenus SC en fonction de la fibre de collection utilisée et de l'appareil servant à la mesure. Cette correction permet de mieux rendre compte du spectre expérimental réel.

1.3. Fabrication et caractérisation d'une fibre chalcogénure effilée (taper)

1.3.1. Fabrication d'un verre Ge-Se-Te

Dans cette partie, nous allons voir comment se déroule la synthèse d'un verre de chalcogénures, avec l'exemple d'un verre du système Ge-Se-Te fabriqué et caractérisé au laboratoire par le Dr. Frédéric Désévéday. Les compositions présentées dans cette partie sont celles utilisées sous forme de fibre à saut d'indice ou fibre à cœur suspendu du Chapitre I (2.1).

Le système ternaire Ge-Se-Te est étudié notamment pour éviter les éléments toxiques (l'arsenic par exemple), comme attendu par la réglementation européenne REACH (Registration, Evaluation, Authorization and restrictions of Chemicals) de l'ECHA (European Chemical Agency) [14]. Les compositions retenues dans le laboratoire ($\text{Ge}_{20}\text{Se}_{60}\text{Te}_{20}$ et $\text{Ge}_{20}\text{Se}_{70}\text{Te}_{10}$) se situent sur la ligne séparant les deux binaires GeSe_4 et GeTe_4 que nous pouvons identifier dans le système ternaire présenté en Figure II.17 [15–17]. Comme vu dans le Chapitre I, les verres de tellures présentent des fenêtres de transmission larges dans l'infrarouge, jusqu'à plus de 30 μm grâce aux modes de vibration des liaisons Ge-Te [18,19]. L'ajout de sélénium dans le système décale cependant l'absorption multiphonon jusqu'à 17 μm [15].

Les précurseurs de départ sont des morceaux solides de sélénium (sous forme de billes) et de tellure, avec une pureté de 5N (99,999%) provenant d'Alfa Aesar et Fox Chemicals. Le germanium est lui sous forme de lingots. Il provient de chez Umicore, avec également une pureté de 5N. Les différents éléments sont pesés en boîte à gants afin de réduire la contamination et l'introduction d'OH. Ils sont ensuite insérés dans des ampoules en silice et mis sous un vide de 10^{-5} mbar. Sous ce vide secondaire, les ampoules contenant les précurseurs sont chauffées afin de réaliser un décapage des oxydes, qui sont condensés dans un piège à azote liquide. Les précurseurs décapés sont ensuite rassemblés dans la même ampoule contenant Al et TeCl_4 pour une purification plus poussée.

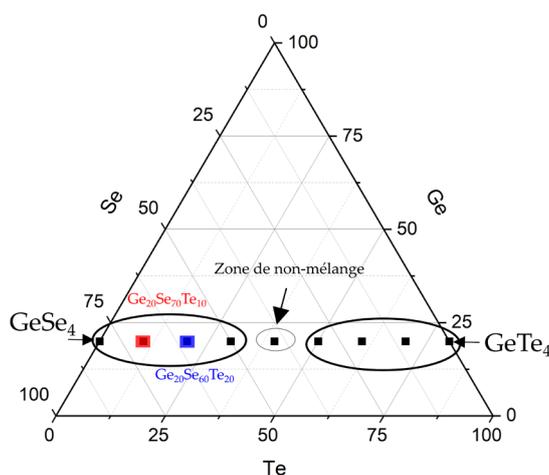


Figure II.17 - Système ternaire Ge-Se-Te avec deux régions entourées en noir représentant les zones de vitrifications du système. Les deux compositions synthétisées ($\text{Ge}_{20}\text{Se}_{60}\text{Te}_{20}$ et $\text{Ge}_{20}\text{Se}_{70}\text{Te}_{10}$) sont également présentées [20].

Dans l'étape suivante, après une première synthèse en présence de TeCl_4 et Al, le verre est recuit puis distillé sous vide dynamique au moyen de deux fours, d'une pompe à vide moléculaire turbo et d'un piège refroidi à l'azote (voir Fig. II.16 (a)). Les éléments chauffés dans le four 1 vont alors se condenser dans le deuxième réservoir, lui-même chauffé à une température inférieure avec le four 2. Les oxydes plus volatiles que les éléments chalcogènes vont eux se condenser dans le piège à azote, tandis que les espèces réfractaires (C, SiO_2 , Al_2O_3) restent dans le premier réservoir (au niveau du four 1). Le montage est ensuite scellé entre les deux réservoirs (entre deux fours) et juste avant le piège à vide (en sortie de four 2). Cela permet de ne garder que le second réservoir (correspondant au four 2) et le tube de synthèse,

qui accueillera le barreau final. Après cette étape, l'ampoule scellée est placée dans un four incliné (Fig. II.18 (b)), réservoir vers le haut, en ne laissant dépasser à l'extérieur du four qu'une partie de l'ampoule. Cette étape est la distillation statique. Les éléments chalcogènes distillés vont alors se condenser dans la partie froide de l'ampoule, tandis que les éléments réfractaires responsables de la diffusion optique vont eux rester dans la canule située dans le four.

Enfin, après avoir scellé à nouveau l'ampoule pour ne garder que la partie contenant les éléments chalcogènes distillés, l'ampoule est insérée dans un four à bascule pour la dernière étape de synthèse et recuit. La bascule permet l'homogénéisation du verre. Les éléments sont chauffés à 850°C pendant plusieurs heures, puis une trempe est effectuée ainsi qu'un recuit à $T_g-5^\circ\text{C}$ (155°C) pendant 12 heures [8,20–22].

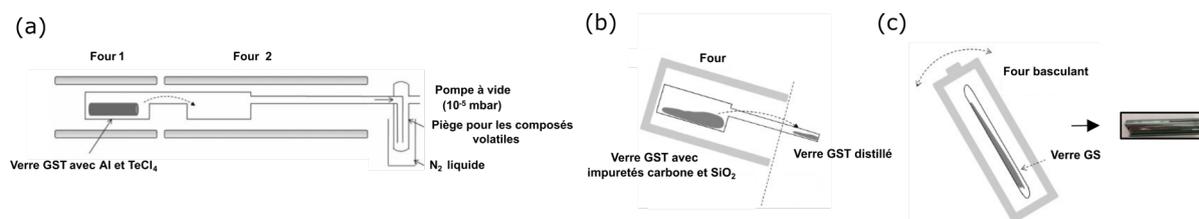


Figure II.18 – (a) Schéma de la purification du verre par la distillation dynamique avec les éléments Al et TeCl_4 . (b) Étape de la distillation statique. (c) Étape de synthèse et de recuit avec le four basculant [20,21].

1.3.2. Mesure des indices de réfraction

Après avoir obtenu le matériau sous forme de verre, il est nécessaire de déterminer la variation de l'indice linéaire en fonction de la longueur d'onde. Plusieurs méthodes pour estimer cet indice sont possibles au laboratoire et nous allons les détailler ci-dessous.

1.3.2.1. Mesure par ellipsométrie

L'ellipsométrie permet de mesurer l'indice de réfraction linéaire en mesurant la modification de la polarisation d'un faisceau à la réflexion sur l'échantillon à analyser. Cette technique non destructive permet d'obtenir les valeurs de n et de k le coefficient d'extinction optique. La polarisation du faisceau de lumière est modifiée à l'interface air/échantillon. Le faisceau réfléchi passe alors par un analyseur avant la détection avec un spectromètre. La mesure est réalisée au laboratoire avec un ellipsomètre (VASE, Variable Angle Spectroscopic Ellipsometer) de chez J.A. Woolam permettant des mesures jusqu'à 4 μm .

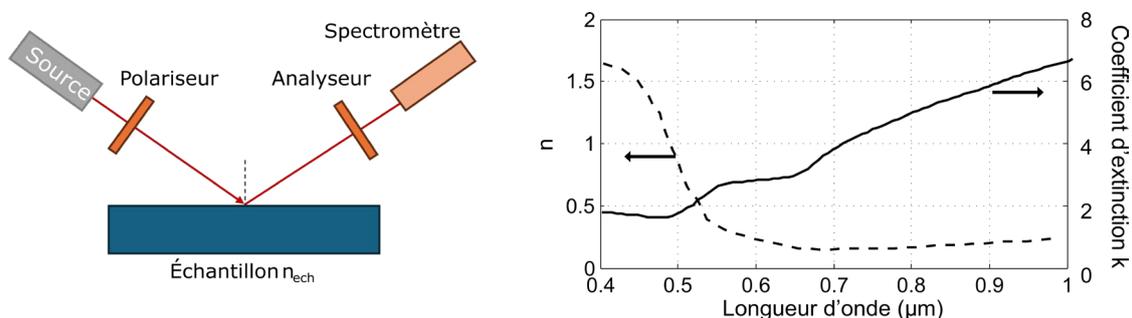


Figure II.19 – Principe de la mesure par ellipsométrie et exemple d'une mesure réalisée d'un dépôt d'or évaporé sur silicium [23].

1.3.2.2. Mesure de l'angle limite de réflexion totale interne

Nous pouvons également mesurer l'indice linéaire par la mesure de l'angle limite de réflexion totale. Cette mesure consiste à utiliser un prisme d'indice plus élevé que l'échantillon (dans le cas des

compositions Ge-Se-Te, un prisme en Germanium $n=4,052$ à $2,8 \mu\text{m}$) et venir relever l'angle limite de réflexion totale interne [24]. Le principe de la méthode est illustré en Figure II.20, ainsi qu'une courbe typique d'intensité en fonction de l'angle. Un faisceau de lumière arrive vers le prisme avec un angle α . Il est ensuite réfracté puis réfléchi sur la face de l'échantillon à analyser. L'intensité du signal en sortie du prisme est mesurée via un détecteur. L'expression de l'angle limite de réflexion totale se déduit des relations de Snell-Descartes pour des milieux d'indice n_1 et n_2 .

$$n_1 \sin(i_1) = n_2 \sin(i_2) \quad (II.5)$$

L'angle limite à partir du moment où le faisceau n'est plus réfracté mais réfléchi se détermine de la manière suivante :

$$i_c = \sin^{-1} \left(\frac{n_2}{n_1} \right) \quad (II.6)$$

Dans cette expérience, à partir d'un certain angle, une partie du faisceau sera donc couplée dans l'échantillon de verre menant à une baisse de l'intensité. Nous pouvons remonter à l'indice de l'échantillon en appliquant la relation suivante :

$$n_{ech} = n_{Ge} \sin \left[\sin^{-1} \left(\frac{\sin \alpha}{n_{Ge}} \right) + \beta \right] \quad (II.7)$$

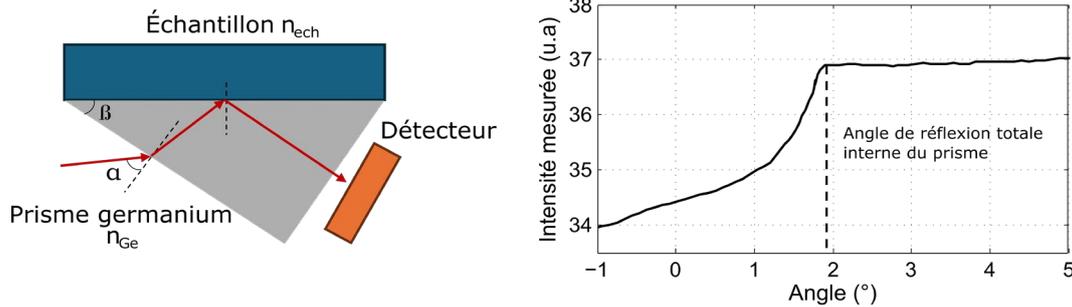


Figure II.20 – Schéma de la mesure de l'indice de réfraction par mesure de l'angle limite de réflexion totale interne avec une courbe typique de l'intensité en fonction de l'angle.

La source lumineuse utilisée dans notre configuration expérimentale est la source laser Coherent Monaco avec l'OPA, ainsi que le module DFG afin de pouvoir réaliser des mesures jusqu'à plus de $10 \mu\text{m}$.

1.3.2.3. Calcul par la relation de Clausius-Mossoti

Il est également possible de calculer les indices linéaires avec la relation de Clausius-Mossoti en se basant sur les indices des verres binaires GeSe_4 (indice $n=2,419$ @ $3 \mu\text{m}$) [25] et GeTe_4 (indice $n=3,5311$ @ $3 \mu\text{m}$) [26]. Dans le cas d'un matériau à deux constituants, nous pouvons écrire :

$$\frac{n_i^2 - 1}{n_i^2 + 2} = \frac{1}{3} (N_{i1} \alpha_1 + N_{i2} \alpha_2) \quad (II.8)$$

avec n_i , l'indice du matériau, N_{i1} et N_{i2} les nombres des constituants par unité de volume. Nous pouvons alors écrire cette relation de la façon suivante [27,28] :

$$\frac{n_i^2 - 1}{n_i^2 + 2} = (f_{i1} \alpha'_1 + f_{i2} \alpha'_2) \quad (II.9)$$

avec f_{i1} et f_{i2} les fractions molaires des composants du matériau et α_1' et α_2' les polarisabilités des composants. En sachant que $N=N_{i1} + N_{i2}$ et que $f_{i1}=N_{i1}/N$ et respectivement $f_{i2}=N_{i2}/N$, nous pouvons alors écrire les polarisabilités des constituants comme cela :

$$\alpha_1' = N \cdot \frac{\alpha_1}{3} \quad \text{et} \quad \alpha_2' = N \cdot \frac{\alpha_2}{3} \quad (II.10)$$

Dans le cas des verres Ge-Se-Te, c'est un mélange stœchiométrique des compositions binaires GeSe_4 - GeTe_4 avec 0,75 GeSe_4 - 0,25 GeTe_4 (mol) pour la composition de cœur et 0,875 GeSe_4 - 0,125 GeTe_4 (mol) pour la gaine. Nous pouvons alors déterminer l'évolution de l'indice de réfraction linéaire en fonction de la longueur d'onde avec la relation suivante :

$$n = \sqrt{\frac{2(f_{i1}\alpha'_{\text{GeSe}_4} + f_{i2}\alpha'_{\text{GeTe}_4}) + 2}{1 - (f_{i1}\alpha'_{\text{GeSe}_4} + f_{i2}\alpha'_{\text{GeTe}_4})}} \quad (II.11)$$

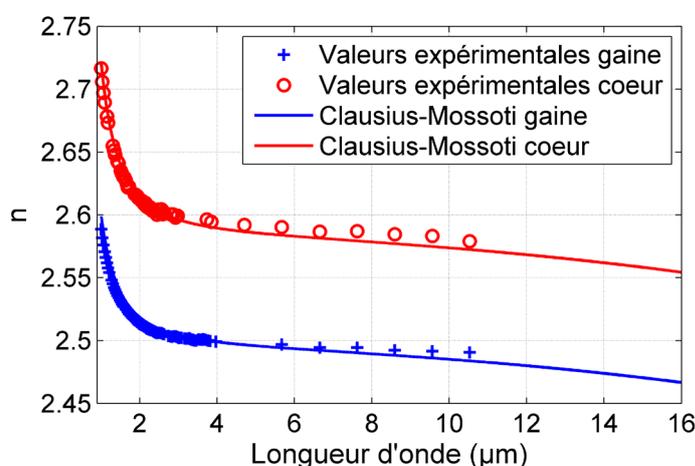


Figure II.21 – Bilan sur les indices linéaires de la composition de gaine ($\text{Ge}_{20}\text{Se}_{70}\text{Te}_{10}$) et de cœur ($\text{Ge}_{20}\text{Se}_{60}\text{Te}_{20}$) avec les mesures expérimentales (ellipsométrie + mesure angle de réflexion totale interne) et l'ajout des indices calculés avec la relation de Clausius-Mossotti.

Les mesures expérimentales avec le prisme ou par ellipsométrie sont en accord avec les indices calculés par la relation de Clausius-Mossotti, comme le montre la Figure II.21. Nous pouvons donc pour la suite, nous servir de ces indices pour le calcul des dispersions chromatiques de nos différentes géométries de fibre.

1.3.3. Élaboration d'une fibre optique

Après avoir obtenu la préforme de verre, nous pouvons donc réaliser l'étape du fibrage. La préforme est installée verticalement en haut de la tour de fibrage dans un support en silice, puis chauffée par un four circulaire jusqu'à ce qu'elle ramollisse. La température de travail utilisée est supérieure à la température de transition vitreuse conduisant la préforme à se déformer. Une goutte de verre va alors se former et tomber sous l'effet combiné de la chaleur et de la gravité, elle est séparée du reste de la préforme par un mince fil de verre: la fibre optique. Ce fil de verre est ensuite attaché en bas de la tour de fibrage sur un tambour d'enroulement dont la vitesse est contrôlée.

L'épaisseur de la fibre est mesurée via un mesureur de diamètre. En fonction de la vitesse de rotation du tambour (typiquement quelques m/min) et d'avance de la préforme dans le four (typiquement 1 mm/min), nous pouvons contrôler le diamètre de la fibre obtenue. Pour gérer les divers paramètres géométriques de la fibre, nous pouvons changer la vitesse de descente de la préforme dans le four, la vitesse du tambour ou encore la température du four permettant de contrôler la tension de la fibre. Une pression de gaz peut être également appliquée lors du fibrage afin de gonfler les trous pour une fibre

microstructurée. La tour de fibrage utilisée pour les fibres chalcogénures au laboratoire (Fig.II.22 (b)) permet de travailler à des températures entre 200 et 500 °C et une tension typiquement comprise entre 10 et 50 g. Pour donner des valeurs comparatives, pour une fibre silice la tension est de 200 g et la température monte jusqu'à plus de 2000 °C [29].

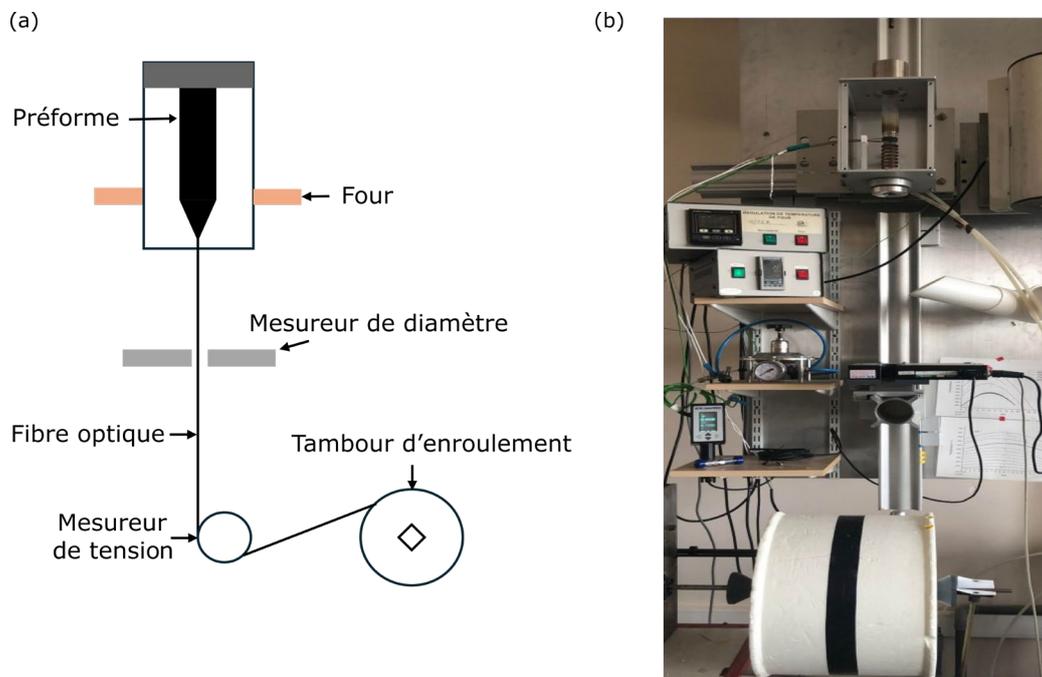


Figure II.22 - (a) Schéma de la tour de la tour de fibrage et (b) photographie de celle utilisée pour les fibres chalcogénures au laboratoire ICB.

1.3.4. Mesure des pertes optiques de la fibre

Pour mesurer les pertes optiques de nos fibres, la méthode dite du « cut-back » est réalisée. Cette mesure consiste à mesurer la transmission de la fibre pour différentes longueurs, sans en changer les conditions d'injection. Ainsi, en connaissant la longueur de fibre coupée nous pouvons calculer le coefficient d'atténuation de la manière suivante :

$$\alpha(\text{dB/m}) = \frac{10}{L_0 - L_1} \log\left(\frac{I_1}{I_0}\right) \quad (\text{II.12})$$

avec L_0 la longueur initiale, L_1 la longueur après coupure, I_0 et I_1 les intensités respectives en sortie de fibre. Par la suite, la moyenne des différentes mesures est effectuée et nous pouvons donc estimer les pertes optiques de la fibre.

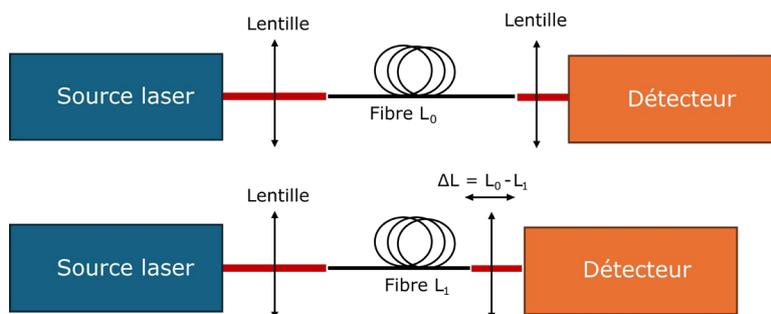


Figure II.23 – Mesure des pertes optiques par la méthode du « cut-back ».

Les pertes optiques sont mesurées au laboratoire avec un FT-IR Nicolet pour la gamme du visible jusqu'à 4,5 μm (via une lampe halogène 100 W). Pour les longueurs d'onde plus importantes (1,2 μm à 30 μm), un FT-IR Perkin Elmer est utilisé, la source étant de type corps noir (Globalar). Ce FT-IR a une puissance moins importante et n'est pas adapté pour une géométrie à fibre optique.

1.3.5. Fabrication d'une fibre effilée

Les fibres effilées (ou taper) sont des types de fibres beaucoup étudiées dans la littérature et possèdent des propriétés idéales, notamment dans la génération de SC [30–33]. La réduction du diamètre de la fibre permet de modifier ses propriétés de dispersion et de non-linéarité localement [34,35].

Dans ces travaux de recherche, des fibres effilées ont donc été utilisées et produites avec l'appareil VYTRAN GPX 3400 (Fig. II.24 (a)). L'appareil est constitué d'un filament chauffant, de deux plateformes avec un contrôle multiaxe et une caméra CCD. Le filament chauffant permet de chauffer localement la fibre au-delà de sa température de transition vitreuse, alors qu'une tension est appliquée en parallèle via le déplacement des plateformes. Ces dernières se déplacent dans le même sens mais avec des vitesses différentes. L'appareil permet donc d'étirer la fibre jusqu'à un diamètre minimal (appelé waist) avec des longueurs de transition contrôlées, l'ensemble piloté par l'intermédiaire d'une interface graphique (Fig. II.24 (b)) [36].

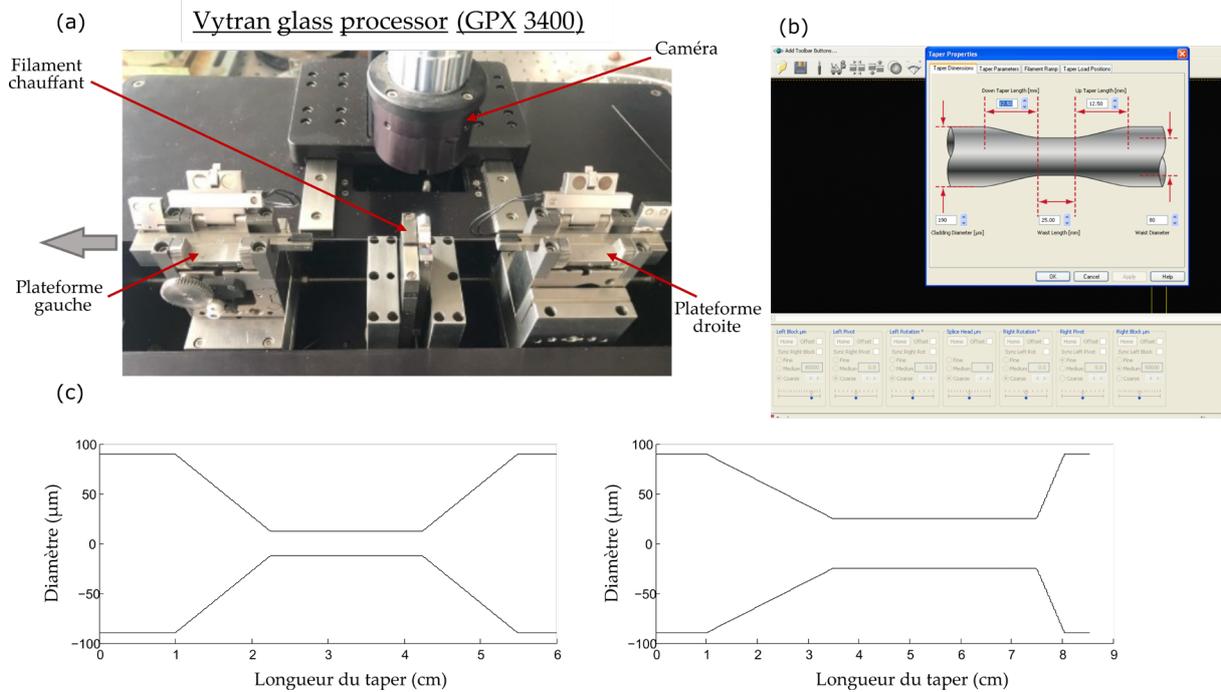


Figure II.24 – (a) Photographie de l'appareil Vytran (GPX 3400), (b) Capture d'écran de l'interface graphique et (c) différents profils réalisables.

La Figure II.24 (c) présente deux types de profils que nous pouvons obtenir avec des longueurs de transition différentes et des diamètres de waist différents. Expérimentalement, la longueur totale maximale (longueur du waist + longueurs de transition) est de 10 cm et un facteur de réduction maximal de 1/12 peut être obtenu. La longueur maximale de section effilée est de 80 mm pour conserver une transmission optimale. Plusieurs paramètres sont modifiables, comme la puissance du filament chauffant, ou encore les vitesses de déplacement des plateformes. Le filament chauffant utilisé est en iridium (FRAV3). Il permet de travailler à des températures entre 150 °C et 600 °C pour des diamètres < 400 μm . Les paramètres pour étirer des fibres de différents matériaux ont été identifiés au sein de l'équipe, avec notamment les travaux menés par Damien Bailleul.

2. Outils numériques

Les mécanismes permettant de générer un SC dans l'infrarouge moyen ont été présentés dans le Chapitre I. Nous allons voir dans cette partie comment modéliser la génération de SC à l'aide de l'équation de Schrödinger non-linéaire généralisée. Les différents éléments permettant la simulation numérique d'un SC sont mis en évidence ci-dessous.

2.1. L'équation de Schrödinger non-linéaire généralisée

La description de la propagation non-linéaire d'une impulsion lumineuse dans une fibre optique peut être réalisée en prenant en compte les pertes de la fibre, sa non-linéarité ainsi que sa dispersion chromatique. L'évolution temporelle de l'enveloppe $A(z,T)$ de l'impulsion lumineuse, peut être décrite à l'aide de l'équation de Schrödinger non-linéaire [37].

Dans le cadre de nos études, la génération de SC a été réalisée pour des impulsions courtes (< 1 ps), l'équation de Schrödinger non-linéaire n'est donc pas entièrement satisfaisante. En effet, les effets de dispersion ne sont considérés jusqu'au deuxième ordre seulement. De plus, elle ne prend pas en compte les effets non-linéaires dus aux contributions retardées avec notamment l'effet Raman. Cette dernière contribution devenant significative lors d'un pompage avec des impulsions ultracourtes, une modification de cette équation est nécessaire. Avec ces considérations, il convient d'utiliser l'équation de Schrödinger non-linéaire généralisée (GNLSE) [37] :

$$\begin{aligned} & \frac{\partial A(z, T)}{\partial z} + \frac{\alpha}{2} A(z, T) - \sum_{n=2}^{+\infty} \beta_n \frac{i^{n+1}}{n!} \frac{\partial^n A}{\partial T^n} \\ & = i\gamma_0 \left(1 + i\tau_{shock} \frac{\partial}{\partial T} \right) \left(A(z, T) \int_0^{+\infty} R(t') |A(z, T - t')|^2 dt' \right) \end{aligned} \quad (II.13)$$

Le membre gauche de cette équation modélise les effets de propagation linéaire avec α les pertes linéaires de la fibre. β_n correspond aux coefficients de dispersion associés au développement en série de Taylor de la constante de propagation β autour de la fréquence centrale (ω_0) du spectre de l'impulsion. Le membre de droite modélise la non-linéarité de la fibre. Nous trouvons dans ce membre le coefficient γ traduisant la non-linéarité, le temps de choc τ_{shock} ainsi que la fonction réponse non-linéaire $R(t')$. Cette fonction réponse non-linéaire $R(t')$ représente la réponse non-linéaire normalisée du milieu que l'on peut écrire sous la forme :

$$R(t) = (1 - f_R)\delta(t) + f_R h_R(t) \quad (II.14)$$

La réponse de l'effet Kerr est supposée instantanée. C'est pour cela qu'une fonction de Dirac ($\delta(t)$) est représentée. Les termes f_R et h_R sont relatifs à l'effet Raman et donc à la réponse instantanée $(1 - f_R)\delta(t)$ et retardée $f_R h_R(t)$. Nous allons, dans la suite de ce chapitre, décrire comment obtenir la réponse Raman $h_R(t)$ du milieu.

Les simulations numériques réalisées dans le cadre de ces travaux de recherche sont basées sur la résolution de cette équation en prenant en compte les différents paramètres de nos fibres. Le modèle tient donc compte de la dispersion du mode fondamental guidé, des pertes de nos fibres ainsi que l'effet Kerr, le temps de choc et la réponse Raman du matériau.

2.2. Résolution numérique

Afin d'estimer la propagation non-linéaire d'une impulsion laser dans une fibre optique et la génération de SC, nous devons donc résoudre l'équation II.13. La méthode de Fourier à pas fractionnaire ou split-step Fourier method nous permet de résoudre l'équation non-linéaire de Schrödinger généralisée [37]. En se basant sur l'approximation pour laquelle sur de faibles pas h de propagation, les effets dispersifs et non-linéaires modifient l'amplitude $A(z,T)$ propagée de façon indépendante, nous pouvons alors écrire l'équation II.13 sous la forme suivante :

$$\frac{\partial A}{\partial z} = (\widehat{D} + \widehat{N})A \quad (II.15)$$

où \widehat{D} et \widehat{N} sont les opérateurs linéaires et non-linéaires, que nous pouvons définir de la manière suivante :

$$\widehat{D}A = -\frac{\alpha}{2}A(z, T) + \sum_{n=2}^{+\infty} \beta_n \frac{i^{n+1}}{n!} \frac{\partial^n A}{\partial T^n} \quad (II.16)$$

$$\widehat{N}A = i\gamma_0 \left(1 + i\tau_{shock} \frac{\partial}{\partial T}\right) \left(A(z, T) \int_0^{+\infty} R(t') |A(z, T - t')|^2 dt'\right) \quad (II.17)$$

La propagation de z à $(z+h)$ est effectuée en deux étapes. Dans la première étape, la non-linéarité intervient uniquement et $\widehat{D} = 0$. Dans un deuxième temps, la dispersion agit seule et donc $\widehat{N} = 0$. La solution de l'équation II.15 s'écrit alors de la façon suivante :

$$A(z + h, T) \approx \exp(h\widehat{D}) \exp(h\widehat{N}) A(z, T) \quad (II.18)$$

Pour améliorer la précision, les effets non-linéaires sont inclus au milieu du segment h (à $z+h/2$) et non pas à la limite du segment, c'est la méthode de Fourier à pas divisés symétriques [37]. La figure II.25 présente schématiquement le fonctionnement de la méthode de résolution. Pour une simplification des calculs, l'opérateur linéaire est introduit dans le domaine des fréquences car cet opérateur comporte des termes dérivatifs au temps. Au contraire, l'opérateur non-linéaire est introduit dans le domaine temporel. La solution s'écrit alors de la manière suivante :

$$A(z + h, T) \approx \exp\left(\frac{h}{2}\widehat{D}\right) \exp\left(\int_z^{z+h} \widehat{N}(z') dz'\right) \exp\left(\frac{h}{2}\widehat{D}\right) A(z, T) \quad (II.19)$$

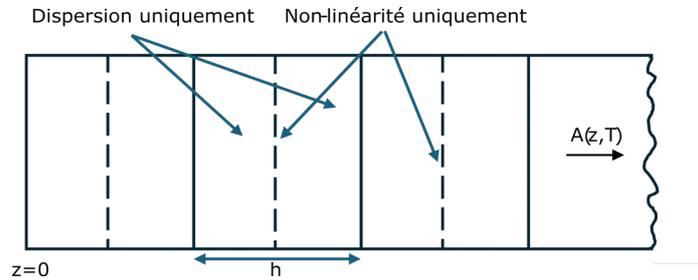


Figure II.25 – Schéma illustrant la méthode de Fourier à pas fractionnaire permettant de résoudre l'équation non-linéaire de Schrödinger généralisée. La fibre est découpée avec un pas h et à $h/2$ la non-linéarité est incluse [37].

2.2.1. L'opérateur linéaire

L'opérateur linéaire représente donc la dispersion de la fibre étudiée, ainsi que l'atténuation α de la puissance représentant les pertes linéaires de la fibre étudiée. Nous pouvons calculer l'opérateur linéaire de la manière suivante :

$$\widehat{D}_\omega = -\frac{\alpha}{2} - i[\beta - \Omega\beta_1 - \beta_0] \quad (II.20)$$

avec $\Omega = \omega - \omega_0$, β_1 inversement proportionnel à la vitesse de groupe, β_0 et la constante de propagation $\beta(\omega)$ déterminée à partir de l'indice effectif $\beta(\omega) = n_{eff}(\omega) \omega/c$.

Il est donc nécessaire de déterminer les modes de propagation de la fibre à partir de cet indice effectif en fonction de la longueur d'onde. La valeur de n_{eff} est obtenue en prenant en compte différents paramètres, comme la géométrie de la fibre (saut d'indice, microstructurée...) et la dispersion du

matériau, comme vu dans le Chapitre I. Avec l'aide de codes numériques, nous pouvons simuler la distribution du mode fondamental se propageant dans la fibre ainsi que n_{eff} . La Figure II.26 présente la courbe de dispersion du mode fondamental calculée pour une fibre à saut d'indice Ge-Se-Te de 10 μm de cœur, une fibre à cœur suspendu Ge-Se-Te de 4 μm de cœur et la dispersion du matériau de cœur. Ces fibres sont celles utilisées pour la génération de SC du Chapitre I (2.1).

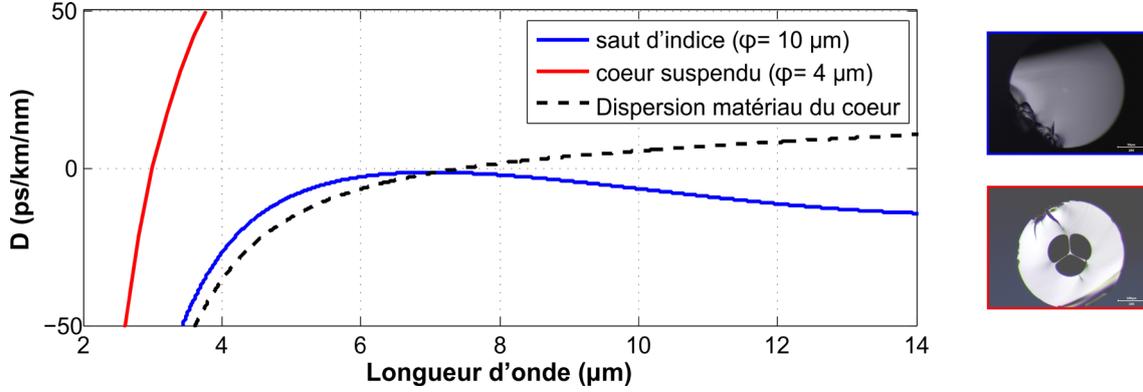


Figure II.26 – Comparaison de la dispersion du mode fondamental pour une fibre à saut d'indice de 10 μm de cœur (Ge-Se-Te), une fibre à cœur suspendu de 4 μm de cœur (Ge-Se-Te) et la dispersion du matériau de cœur.

2.2.2. L'opérateur non-linéaire

L'opérateur non-linéaire fait intervenir le terme γ . Cette grandeur représente le coefficient non-linéaire relatif à la fibre optique. Elle est définie de la façon suivante :

$$\gamma = \frac{2\pi n_2}{\lambda A_{eff}} \quad (II.21)$$

avec n_2 l'indice non-linéaire, A_{eff} l'aire effective du mode guidé à la longueur d'onde centrale λ_0 de l'impulsion lumineuse. Le terme A_{eff} se définit de la manière suivante:

$$A_{eff} = \frac{\left(\iint_{-\infty}^{+\infty} |F(x, y)|^2 dx dy \right)^2}{\iint_{-\infty}^{+\infty} |F(x, y)|^4 dx dy} \quad (II.22)$$

2.2.2.1. L'auto-raïdissement

Dans cet opérateur, un terme τ_{shock} entre en compte, représentant le phénomène d'auto-raïdissement (ou self-steepening). Ce phénomène représente la dépendance de la vitesse de groupe avec l'intensité. L'impulsion temporelle va alors subir une distorsion, ainsi qu'une asymétrie du spectre de l'impulsion menant à la formation de ce qu'on appelle des chocs optiques. Le terme de temps de choc est défini de la manière suivante, avec ω_0 la fréquence centrale de l'impulsion [37]:

$$\tau_{shock} = 1/\omega_0 \quad (II.23)$$

Une expression plus complète de ce temps de τ_{shock} peut être utilisée (Eq. II.24) à cause de la dépendance en fréquence de l'aire effective A_{eff} [38,39]

$$\tau_{shock} = \tau_0 + \frac{d}{d\omega} \left[\ln \left(\frac{1}{n_{eff}(\omega) A_{eff}(\omega)} \right) \right]_{\omega_0} \quad (II.24)$$

Nous pouvons négliger la dépendance de l'indice effectif avec la fréquence et donc simplifier l'équation (II.24) :

$$\tau_{shock} = \tau_0 - \left[\frac{d}{d\omega} (\ln A_{eff}(\omega)) \right]_{\omega_0} \quad (II.25)$$

2.2.2.2. Réponse Raman

L'opérateur non-linéaire comprend également la fonction réponse non-linéaire $R(t')$ faisant intervenir la réponse Raman du matériau. Cette réponse Raman peut se modéliser de plusieurs façons. Celle retenue dans le cadre de ces simulations est celle présentée par Hollenbeck *et al.* [40] dans le modèle d'élargissement intermédiaire (intermediate-broadening model) :

$$h_R(t) = \sum_{i=1}^n \frac{A_i'}{\omega_{v,i}} \exp(-\gamma_i t) \exp\left(-\Gamma_i^2 \frac{t^2}{4}\right) \sin(\omega_{v,i} t) \theta(t) \quad (II.26)$$

où A_i' est l'amplitude du i -ème mode vibrationnel, $\omega_{v,i}$ est la fréquence centrale du mode i , γ_i est la largeur de bande lorentzienne et Γ_i la largeur de bande de la gaussienne.

D'après les résultats expérimentaux rapportés par Sun *et al.* [41], nous avons pu modéliser la courbe de gain Raman pour la composition $\text{Ge}_{20}\text{Se}_{70}\text{Te}_{10}$ par un ensemble de pseudo-fonctions de Voigt pour obtenir les valeurs à utiliser pour la méthode d'élargissement intermédiaire. Ces différentes valeurs sont résumées dans le Tableau II.1.

La Figure II.27 illustre la courbe expérimentale, ainsi que celle modélisée dans notre cas en comparaison à la réponse Raman d'un verre de silice [40,42]. Pour les différents verres utilisés dans cette recherche, ce modèle est appliqué en utilisant les spectres expérimentaux de gain Raman disponibles dans la littérature.

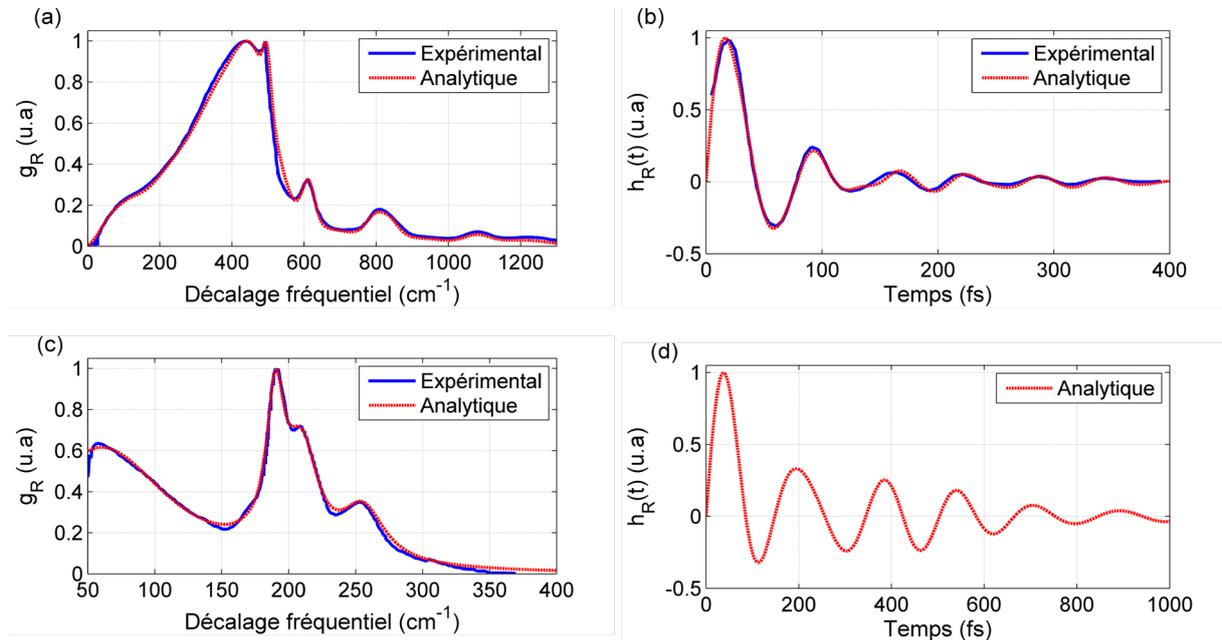


Figure II.27 – (a-b) Comparaison des réponses Raman h_R expérimentale et analytique dans une fibre silice (a) en décalage fréquentiel et (b) dans le domaine temporel [40,42]. (c-d) Comparaison des réponses Raman h_R expérimentale et analytique dans une fibre GST (c) en décalage fréquentiel et (d) dans le domaine temporel [41].

Nous pouvons voir que le décalage fréquentiel pour le maximum de la courbe de gain Raman de la fibre silice se situe aux alentours de 440 cm⁻¹ contrairement à 190 cm⁻¹ pour la fibre GST. Dans le domaine temporel, cela se traduit par une réponse Raman où les variations pour la fibre silice sont inférieures à 0,05 après 300 fs contrairement à 900 fs pour la GST. La réponse Raman du verre chalcogénure est donc plus retardée que celle de la silice.

Tableau II.1 – Valeurs utilisées pour la méthode d’élargissement intermédiaire de la composition $\text{Ge}_{20}\text{Se}_{70}\text{Te}_{10}$ d’après la Référence [41].

Numéro du mode i	Position (cm^{-1})	Intensité (u.a)	Gaussienne FWHM (cm^{-1})	Lorentzienne FWHM (cm^{-1})
1	50,48	850	70,00	100,84
2	150,00	20	86,32	66,52
3	170,00	3	15,97	15,59
4	190,07	97	4,16	14,87
5	209,67	130	7,87	27,49
6	255,37	90	10,00	37,16
7	300,00	5	80,68	64,47

2.2.3. Cohérence du spectre

Dans le contexte de la génération de SC, la cohérence est liée aux fluctuations du spectre d'une impulsion à l'autre. Un SC cohérent présente donc une grande stabilité spectrale d'une impulsion à l'autre. De faibles fluctuations spectrales permettent d'effectuer des mesures de haute précision utiles pour la métrologie des fréquences, la spectroscopie de haute précision ou les communications optiques. Un SC cohérent peut donc être utilisé pour des mesures où la cohérence est directement utilisée comme moyen de contrôle comme dans la tomographie par cohérence optique (OCT) [43,44] ou la spectroscopie Raman cohérente anti-stokes [45,46].

Il est possible de calculer la cohérence afin d'étudier les propriétés d'un SC. Ceci est particulièrement utile dans l'infrarouge moyen où les difficultés techniques des mesures de cohérence sont importantes par rapport à celles dans l'IR proche. La cohérence est calculée comme la valeur absolue du degré complexe de la cohérence de premier ordre, définie comme suit [38] :

$$\left| g_{12}^{(1)}(\lambda, t_1 - t_2) \right| = \left| \frac{\langle E_1(\lambda, t_1) E_2^*(\lambda, t_2) \rangle}{\sqrt{\langle |E_1(\lambda, t_1)|^2 \rangle \langle |E_2(\lambda, t_2)|^2 \rangle}} \right| \quad (\text{II. 27})$$

Les crochets représentent une moyenne sur les paires de spectres $[E_1(\lambda, t), E_2(\lambda, t)]$ générés indépendamment à partir d'un nombre important de simulations. Nous pouvons également introduire une cohérence spectrale moyenne afin de quantifier la cohérence du SC sur toute sa gamme spectrale [38] :

$$\langle |g_{12}^{(1)}(\lambda)| \rangle = \frac{\int |g_{12}^{(1)}(\lambda, 0)| |E(\lambda)|^2 d\lambda}{\int |E(\lambda)|^2 d\lambda} \quad (\text{II. 28})$$

$|g_{12}^{(1)}|$ est un nombre positif se situant dans l'intervalle $[0,1]$ et il faut noter qu'une valeur de 1 correspond à une cohérence parfaite. Dans la suite de ce manuscrit, la cohérence calculée pour les SC est obtenue pour 200 simulations avec différents bruits aléatoires imposés à l'impulsion initiale.

3. Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons pu décrire les différentes techniques et dispositifs expérimentaux utilisés pour les travaux présentés dans les chapitres suivants. Les caractéristiques des sources laser utilisées ont été présentées avec notamment, pour la source Coherent du laboratoire ICB, une caractérisation avec la méthode du « couteau » afin d'estimer la taille du faisceau. Le banc de génération de SC a été présenté avec une présentation des lentilles d'injection utilisées, des fibres de collection ou

encore des différents systèmes de caractérisation comme le monochromateur couplé à un MCT, le FT-IR ou l'analyseur de spectre. La calibration des mesures fibre/détecteur a permis d'identifier les facteurs correctifs pour corriger les spectres SC. Enfin, la fabrication d'une fibre en verre de chalcogénures a été présentée avec la synthèse d'un verre, la caractérisation pour estimer la dispersion d'indice ou encore le fibrage de la préforme ainsi que la fabrication d'une fibre effilée.

Nous avons également pu décrire la façon de simuler numériquement la génération de SC dans une fibre optique monomode, à l'aide de l'équation de Schrödinger non-linéaire généralisée. La façon de résoudre cette équation numériquement a été mise en évidence avec la mise en place d'un opérateur linéaire et non-linéaire, tenant compte différents paramètres (dispersion du mode fondamental, les pertes linéaires, l'effet Kerr, l'auto-raïdissement ou encore la réponse Raman).

Bibliographie

1. T. Cheng, K. Nagasaka, T. H. Tuan, X. Xue, M. Matsumoto, H. Tezuka, T. Suzuki, and Y. Ohishi, "Mid-infrared supercontinuum generation spanning 2 to 15.1 μm in a chalcogenide step-index fiber," *Opt. Lett.* **41**, 2117 (2016).
2. "Laser Coherent," <https://www.coherent.com/lasers/ultrashort-pulse/monaco>.
3. "OPA," <https://lightcon.com/product/orpheus-opa/>.
4. J. M. Khosrofian and B. A. Garetz, "Measurement of a Gaussian laser beam diameter through the direct inversion of knife-edge data," *Appl. Opt.* **22**, 3406 (1983).
5. Y. Suzaki and A. Tachibana, "Measurement of the μm sized radius of Gaussian laser beam using the scanning knife-edge," *Appl. Opt.*, **AO 14**, 2809–2810 (1975).
6. "Lentilles," https://www.thorlabs.com/navigation.cfm?guide_id=102.
7. S. A. Self, "Focusing of spherical Gaussian beams," *Appl. Opt.* **22**, 658 (1983).
8. R. Bizot, "Génération de supercontinuum dans des fibres de chalcogénures : application à la spectroscopie de gaz dans la bande atmosphérique III," Thèse de l'Université de Bourgogne (2023).
9. "Fibre de collection," <https://guidingphotonics.com/mid-infrared-mid-ir-fiber-optic-solutions/#specifications>.
10. "Fibre fluor," <https://leverrefluore.com/products/passive-fibers/ifg-multimode/>.
11. "Monochromateur Horiba," <https://www.horiba.com/index.php?id=3990&L=2>.
12. "FTIR," https://www.arcoptix.com/IR_infrared_spectrometer.htm.
13. "Global," https://www.arcoptix.com/nir_ir_lamp.htm.
14. "REACH," <https://echa.europa.eu/regulations/reach/understanding-reach>.
15. S. Maurugeon, B. Bureau, C. Boussard-Plédel, A. J. Faber, X. H. Zhang, W. Geliesen, and J. Lucas, "Te-rich Ge–Te–Se glass for the CO₂ infrared detection at 15 μm ," *Journal of Non-Crystalline Solids* **355**, 2074–2078 (2009).
16. J. Troles, V. Shiryaev, M. Churbanov, P. Houizot, L. Brilland, F. Desevedavy, F. Charpentier, T. Pain, G. Snopatin, and J. L. Adam, "GeSe₄ glass fibres with low optical losses in the mid-IR," *Optical Materials* **32**, 212–215 (2009).
17. S. Maurugeon, B. Bureau, C. Boussard-Plédel, A. J. Faber, P. Lucas, X. H. Zhang, and J. Lucas, "Selenium modified GeTe₄ based glasses optical fibers for far-infrared sensing," *Optical Materials* **33**, 660–663 (2011).
18. D. Le Coq, S. Cui, C. Boussard-Plédel, P. Masselin, E. Bychkov, and B. Bureau, "Telluride glasses with far-infrared transmission up to 35 μm ," *Optical Materials* **72**, 809–812 (2017).
19. S. Danto, P. Houizot, C. Boussard-Plédel, X.-H. Zhang, F. Smektala, and J. Lucas, "A Family of Far-Infrared-Transmitting Glasses in the Ga–Ge–Te System for Space Applications," *Advanced Functional Materials* **16**, 1847–1852 (2006).
20. A. Lemièrre, "Fibres chalcogénures et tellurites à supercontinuum moyen-infrarouge pour capteurs optiques," 174 (n.d.).
21. A. Lemièrre, F. Désévéday, P. Mathey, P. Froidevaux, G. Gadret, J.-C. Jules, C. Aquilina, B. Kibler, P. Béjot, F. Billard, O. Faucher, and F. Smektala, "Mid-infrared supercontinuum generation from 2 to 14 μm in arsenic- and antimony-free chalcogenide glass fibers," *J. Opt. Soc. Am. B*, **JOSAB 36**, A183–A192 (2019).
22. A. Lemièrre, F. Désévéday, B. Kibler, P. Mathey, G. Gadret, J.-C. Jules, C. Aquilina, P. Béjot, F. Billard, O. Faucher, and F. Smektala, "Mid-infrared two-octave spanning supercontinuum generation in a Ge–Se–Te glass suspended core fiber," *Laser Phys. Lett.* **16**, 075402 (2019).
23. P. V. S. Schick, "ÉCOLE DOCTORALE DES SCIENCES PHYSIQUES ET DE L'INGÉNIEUR," in (n.d.), p. 218.
24. H. Onodera, I. Awai, and J. Ikenoue, "Refractive-index measurement of bulk materials: prism coupling method," *Applied optics* **22**, (1983).
25. L. G. Aio, A. M. Efimov, and V. F. Kokorina, "Refractive index of chalcogenide glasses over a wide range of compositions," *Journal of Non-Crystalline Solids* **27**, 299–307 (1978).
26. V. Mittal, J. S. Wilkinson, and G. S. Murugan, "High-contrast GeTe₄ waveguides for mid-infrared biomedical sensing applications," in J. E. Broquin and G. Nunzi Conti, eds. (2014), p. 89881A.
27. P. Melman and R. Davies, "Application of the Clausius-Mossotti equation to dispersion calculations in optical fibers," *J. Lightwave Technol.* **3**, 1123–1124 (1985).

28. *Manuel d'optique (2e édition) - Germain Chartier - Hermes Science Publications - Grand format - Librairie Gallimard PARIS* (n.d.).
29. L. E. Curtiss, "Glass fiber optical devices," United States patent US3589793A (June 29, 1971).
30. J. Picot-Clemente, "Enhanced supercontinuum generation in tapered tellurite suspended core fiber," *Optics Communications* **7** (n.d.).
31. B. Luo, Y. Wang, Y. Sun, S. Dai, P. Yang, P. Zhang, X. Wang, F. Chen, and R. Wang, "Fabrication and characterization of bare Ge-Sb-Se chalcogenide glass fiber taper," *Infrared Physics & Technology* **80**, 105–111 (2017).
32. Y. Sun, S. Dai, P. Zhang, X. Wang, Y. Xu, Z. Liu, F. Chen, Y. Wu, Y. Zhang, R. Wang, and G. Tao, "Fabrication and characterization of multimaterial chalcogenide glass fiber tapers with high numerical apertures," *Opt. Express* **23**, 23472 (2015).
33. T. A. Birks, W. J. Wadsworth, and P. S. J. Russell, "Supercontinuum generation in tapered fibers," *Opt. Lett.*, **OL 25**, 1415–1417 (2000).
34. C. R. Petersen, R. D. Engelsholm, C. Markos, L. Brilland, C. Caillaud, J. Trolès, and O. Bang, "Increased mid-infrared supercontinuum bandwidth and average power by tapering large-mode-area chalcogenide photonic crystal fibers," *Opt. Express* **25**, 15336 (2017).
35. N. Zhang, X. Peng, Y. Wang, S. Dai, Y. Yuan, J. Su, G. Li, P. Zhang, P. Yang, and X. Wang, "Ultrabroadband and coherent mid-infrared supercontinuum generation in Te-based chalcogenide tapered fiber with all-normal dispersion," *Opt. Express* **27**, 10311 (2019).
36. T. A. Birks and Y. W. Li, "The shape of fiber tapers," *Journal of Lightwave Technology* **10**, 432–438 (1992).
37. G. P. Agrawal, *Nonlinear Fiber Optics*, Sixth edition (Academic Press, 2019).
38. J. M. Dudley, G. Genty, and S. Coen, "Supercontinuum generation in photonic crystal fiber," *Rev. Mod. Phys.* **78**, 1135–1184 (2006).
39. B. Kibler, J. M. Dudley, and S. Coen, "Supercontinuum generation and nonlinear pulse propagation in photonic crystal fiber: influence of the frequency-dependent effective mode area," *Appl. Phys. B* **81**, 337–342 (2005).
40. D. Hollenbeck and C. D. Cantrell, "Multiple-vibrational-mode model for fiber-optic Raman gain spectrum and response function," *J. Opt. Soc. Am. B* **19**, 2886 (2002).
41. L. Sun, F. Chen, Y. Xu, Y. Huang, S. Liu, Z. Zhao, X. Wang, P. Zhang, S. Dai, and X. Zhang, "Investigation of the third-order nonlinear property of Ge–Se–Te glasses at mid-infrared," *Appl. Phys. A* **122**, 816 (2016).
42. R. H. Stolen, W. J. Tomlinson, H. A. Haus, and J. P. Gordon, "Raman response function of silica-core fibers," *J. Opt. Soc. Am. B* **6**, 1159 (1989).
43. S. Rao D. S., M. Jensen, L. Grüner-Nielsen, J. T. Olsen, P. Heiduschka, B. Kemper, J. Schneidenburger, M. Glud, M. Mogensen, N. M. Israelsen, and O. Bang, "Shot-noise limited, supercontinuum-based optical coherence tomography," *Light Sci Appl* **10**, 133 (2021).
44. N. M. Israelsen, C. R. Petersen, A. Barh, D. Jain, M. Jensen, G. Hanneschläger, P. Tidemand-Lichtenberg, C. Pedersen, A. Podoleanu, and O. Bang, "Real-time high-resolution mid-infrared optical coherence tomography," *Light Sci Appl* **8**, 11 (2019).
45. S. Roy, J. R. Gord, and A. K. Patnaik, "Recent advances in coherent anti-Stokes Raman scattering spectroscopy: Fundamental developments and applications in reacting flows," *Progress in Energy and Combustion Science* **36**, 280–306 (2010).
46. J. G. Porquez, R. A. Cole, J. T. Tabarangao, and A. D. Slepukov, "Spectrally-broad coherent anti-Stokes Raman scattering hyper-microscopy utilizing a Stokes supercontinuum pumped at 800 nm," *Biomed. Opt. Express*, **BOE 7**, 4335–4345 (2016).

Chapitre III

Concept de fibre mono-indice effilée Ge-Se-Te pour la génération de supercontinuum

Résumé du chapitre : Ce chapitre présente les résultats de génération de supercontinuum dans des fibres Ge-Se-Te effilées avec deux chaînes laser (kHz ou travaillant jusqu'au MHz). Notre dispositif permet de générer un spectre large dans l'infrarouge moyen tout en permettant de supporter une forte puissance moyenne.

Table des matières

1. Introduction	67
2. Pompage avec une source femtoseconde (cadence au kHz).....	68
2.1. Caractéristiques de la fibre effilée Ge-Se-Te	68
2.2. Résultats.....	72
3. Pompage avec une source femtoseconde (cadence jusqu'au MHz)	75
3.1. Mesures préliminaires.....	76
3.1.1. Influence du Raman dans la simulation numérique.....	79
3.2. Montée en puissance moyenne	80
3.2.1. Étude numérique du supercontinuum pour la puissance crête de 724 kW	81
3.3. Perspectives pour les fibres Ge-Se-Te.....	82
4. Conclusion.....	83

1. Introduction

Les fibres avec des compositions du système ternaire Ge-Se-Te (GST) possèdent des propriétés non-linéaires intéressantes pour la génération de supercontinuum. Plusieurs résultats de SC ont été reportés avec différentes géométries de fibres (fibre à cœur suspendu ou saut d'indice) et avec diverses sources laser [1–4]. Des élargissements spectraux importants ont pu être obtenus en pompant ces fibres GST dans les différents régimes de dispersion, que ce soit une dispersion normale ou anormale, comme le présente la Figure III.1. Ces résultats ont été obtenus au laboratoire dans le cadre des thèses précédentes.

Un SC a été obtenu allant de 1,7 à 18 μm couvrant la région spectrale de l'infrarouge moyen en pompant une fibre à saut d'indice dont le diamètre de cœur est de 12 μm , avec une source centrée à 8,15 μm pour une puissance crête couplée de 200 kW (taux de répétition 1 kHz et durée d'impulsion 65 fs) (Fig. III.1 (a)) [3]. L'intérêt d'un pompage avec cette source laser réside dans le fait d'avoir une puissance crête importante permettant ainsi de maximiser les effets non-linéaires dans la fibre chalcogénure. Cependant le faible taux de couplage dans ce type de fibre entraîne une faible puissance moyenne en sortie de fibre ($< 100 \mu\text{W}$), limitant notamment les possibles applications en spectroscopie d'absorption dans l'infrarouge. Par conséquent, d'autres sources ont été utilisées et notamment des sources fibrées, cadencées à plusieurs MHz, basées sur un décalage de soliton dans l'infrarouge (voir Fig. III.1 (b)) [4–7]. Récemment des SC cohérents ont été reportés entre 2 et 6 μm avec une puissance moyenne de 50 mW en sortie de fibre (Fig. III.1 (c)) [4] ouvrant la possibilité de réaliser des mesures de spectroscopie avec une meilleure sensibilité.

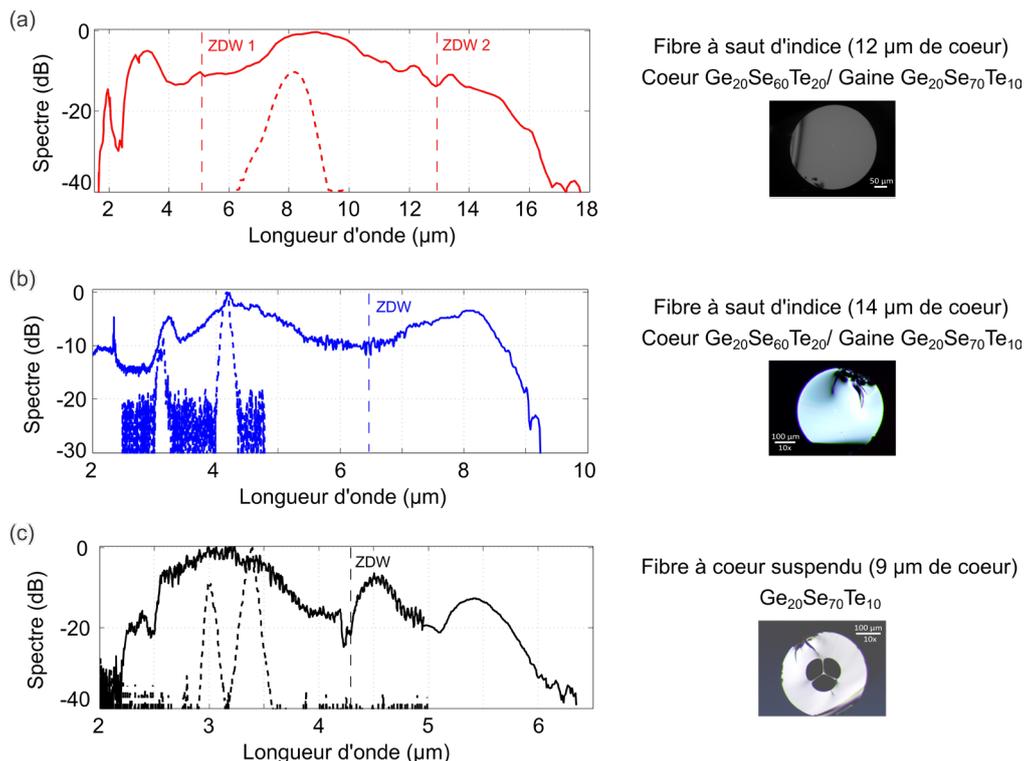


Figure III.1 – Spectres de SC obtenus dans des fibres Ge-Se-Te. (a) Fibre à saut avec une pompe à 8,15 μm ($P_0= 200 \text{ kW}$) [3]. (b) Fibre à saut d'indice avec une pompe à 4,1 μm ($P_0= 50 \text{ kW}$) [8]. (c) Fibre à cœur suspendu avec une pompe à 3,375 μm ($P_0=10 \text{ kW}$) [4]. La position du ZDW est indiquée pour chaque cas.

Le couplage de la puissance du laser dans la fibre optique est une étape primordiale pour maximiser les effets non-linéaires. Les études précédentes ont cependant relevé une difficulté concernant le couplage dans des fibres avec des petits diamètres de cœur ($< 20 \mu\text{m}$), que ce soit avec des fibres à saut d'indice ou avec un cœur suspendu [8]. De plus, l'endommagement des fibres a été

relevé lorsque le taux de répétition du laser était élevé, empêchant ainsi d’obtenir une forte puissance moyenne en sortie de fibre [4,8]. Le but des travaux présentés dans la suite de ce chapitre est d’obtenir un élargissement spectral important dans l’infrarouge moyen, tout en permettant d’avoir une puissance moyenne en sortie de fibre importante pour faciliter la mise en œuvre des SC pour des applications comme la spectroscopie IR. Il est nécessaire de préciser que dans la suite de ce manuscrit, sauf mention contraire, les puissances crêtes indiquées sont estimées à partir des puissances moyennes mesurées directement en sortie de fibre. De plus, tous les spectres SC expérimentaux présentés, sont corrigés via la calibration spectrale de notre banc de mesure, comme présenté au Chapitre II (1.2.3.).

2. Pompage avec une source femtoseconde (cadence au kHz)

Des résultats préliminaires menés au laboratoire de Dijon nous ont permis d’identifier qu’il était possible de générer des SC dans des fibres mono-indices grâce à un couplage plus aisé [2]. Pour maximiser la génération de SC dans l’infrarouge moyen, nos fibres ont été effilées. Ce post-traitement d’étirement de la fibre est largement reconnu dans la communauté scientifique, et permet un contrôle efficace du confinement de la lumière et de la dispersion du guide [9–11]. Cette technique est une alternative rapide et facile à mettre en œuvre comparée notamment à la fabrication de fibres à saut d’indice ou microstructurées. Comme présenté dans le Chapitre II, les fibres effilées ont déjà été utilisées dans la génération de SC mais toujours à notre connaissance dans des fibres à saut d’indice ou microstructurées [12–14]. L’optimisation de la largeur spectrale ainsi que de la puissance moyenne de sortie a également été démontrée dans des fibres effilées [15,16]. Généralement, les expériences de SC rapportées dans ces fibres sont monomodes ou faiblement multimodes. Plus récemment, d’autres travaux ont été réalisés avec des fibres multimodes à grand diamètre de cœur, afin d’améliorer le problème de couplage et de puissance moyenne en sortie de fibre [17,18]. C’est dans ce contexte de recherche qu’une première mission a été programmée au *Toyota Technological Institute* de Nagoya dans l’équipe du Pr. Ohishi, dans le but d’utiliser une source laser avec une puissance crête importante (voir Chapitre II (1.1.1.)).

2.1. Caractéristiques de la fibre effilée Ge-Se-Te

La fibre optique utilisée pour ces expériences est une fibre mono-indice de composition $\text{Ge}_{20}\text{Se}_{70}\text{Te}_{10}$ de 180 μm de diamètre. Les pertes optiques de la fibre sont mesurées par la méthode du cut-back (Ch. II (1.3.4)) et sont présentées en Figure III.2 avec également une photographie au microscope de la fibre.

Nous remarquons clairement un fond continu faible entre 2 et 11 μm (inférieur à 0,06 dB/cm), ce qui n’est pas limitant pour l’utilisation de quelques centimètres de fibre. En excluant les absorptions liées aux liaisons Ge-O notables entre 12 et 14 μm , la fibre présente une bonne transmission du proche infrarouge jusqu’à son absorption multiphonon débutant vers 16 μm .

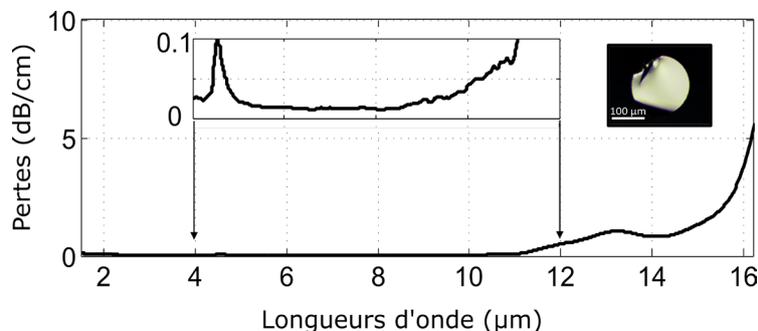


Figure III.2 – Pertes linéaires mesurées par la méthode du cut-back sur une fibre mono-indice $\text{Ge}_{20}\text{Se}_{70}\text{Te}_{10}$. Une photographie d’une coupe transversale d’une fibre est illustrée.

Il a été identifié précédemment que les pertes optiques sont augmentées au cours de la procédure de fabrication d'une fibre effilée dans le cas d'une fibre microstructurée [19]. Les pertes de nos fibres mono-indices effilées auront donc probablement des pertes légèrement supérieures à son équivalent mono-indice non effilée.

La variation de l'indice de réfraction en fonction de la longueur d'onde avec la relation de Clausius-Mossoti, présentée au Chapitre II, permet de calculer la dispersion du mode fondamental guidé de notre fibre. Pour une équation de Sellmeier à deux pôles, les coefficients sont indiqués dans le Tableau III.1.

Composition	A_0	A_1	λ_1	A_2	λ_2
Ge ₂₀ Se ₇₀ Te ₁₀	1,6877	4,5348	0,3240	1,5691	55,9502

Tableau III.1 – Coefficients de Sellmeier pour la composition Ge₂₀Se₇₀Te₁₀.

Les courbes de dispersion du mode fondamental ont été calculées pour différents diamètres de 180 à 25 μm . Nous considérons ici la fibre effilée comme un enchaînement de sections circulaires qui présente un profil à saut d'indice avec une gaine infinie d'air ($n=1$). Comme l'indice de réfraction est élevé (au-delà de 2,4), le mode fondamental reste fortement confiné dans la fibre pour les diamètres allant de 180 à 25 μm avec plus de 99,90 % de l'énergie au sein de la fibre à la longueur d'onde de 6 μm (Fig. III.3 (a)). Comme attendu, le diamètre initial (180 μm) de la fibre présente une dispersion similaire à celle du matériau. La longueur d'onde de dispersion nulle (ZDW) est proche de 7,1 μm . La diminution du diamètre de la fibre a pour effet de déplacer le ZDW vers les courtes longueurs d'onde jusqu'à environ 5,7 μm , pour un diamètre de 25 μm . L'évolution de ce ZDW en fonction du diamètre de la fibre est illustrée avec la Figure III.3 (b).

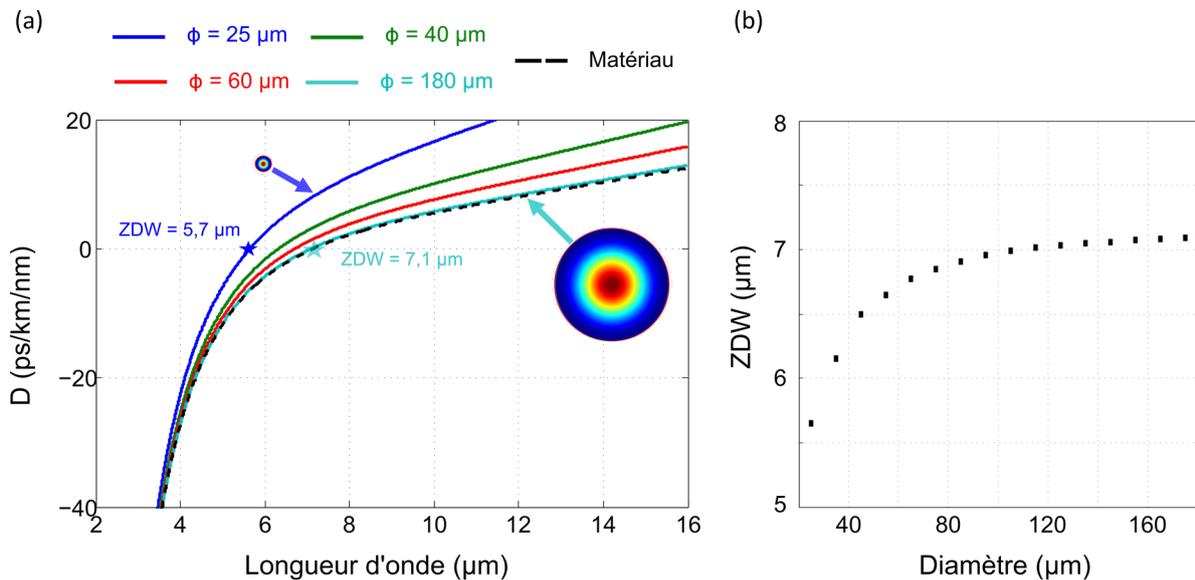


Figure III.3 – (a) Profils de dispersion calculés du mode fondamental guidé pour un diamètre de fibre de 25, 40, 60 et 180 μm ainsi que la dispersion du matériau (pointillés noirs). La distribution spatiale du mode fondamental pour les fibres de diamètre 180 et 25 μm est modélisée à la longueur d'onde de 6 μm . (b) Évolution de la position du ZDW en fonction du diamètre de la fibre.

L'évolution de l'aire effective est également calculée pour ces différents diamètres de fibre (voir Figure III.4 (a)). Les faibles variations avec la longueur d'onde confirment le bon confinement du mode. Le coefficient non-linéaire γ calculé pour le mode fondamental est également présenté en fonction des différents diamètres dans la Figure III.4 (b). Pour rappel, ce paramètre est calculé à partir de la relation $\gamma = 2\pi n_2 / (\lambda A_{eff})$ avec λ la longueur d'onde du laser, A_{eff} l'aire effective du mode et n_2

l'indice non-linéaire avec $n_2=8,2 \times 10^{-18} \text{ m}^2/\text{W}$ pour le verre GST [20]. Ce coefficient non-linéaire augmente fortement pour des faibles diamètres. Par exemple, pour une longueur d'onde de $6 \mu\text{m}$, la non-linéarité est 50 fois plus élevée dans un diamètre de $25\text{-}\mu\text{m}$ que pour un diamètre de $180\text{-}\mu\text{m}$. À partir de cette simple analyse modale, il apparaît donc que ce déplacement du ZDW aux courtes longueurs d'onde ainsi qu'un fort confinement auront donc un impact positif sur l'élargissement spectral en comparaison à une fibre non effilée.

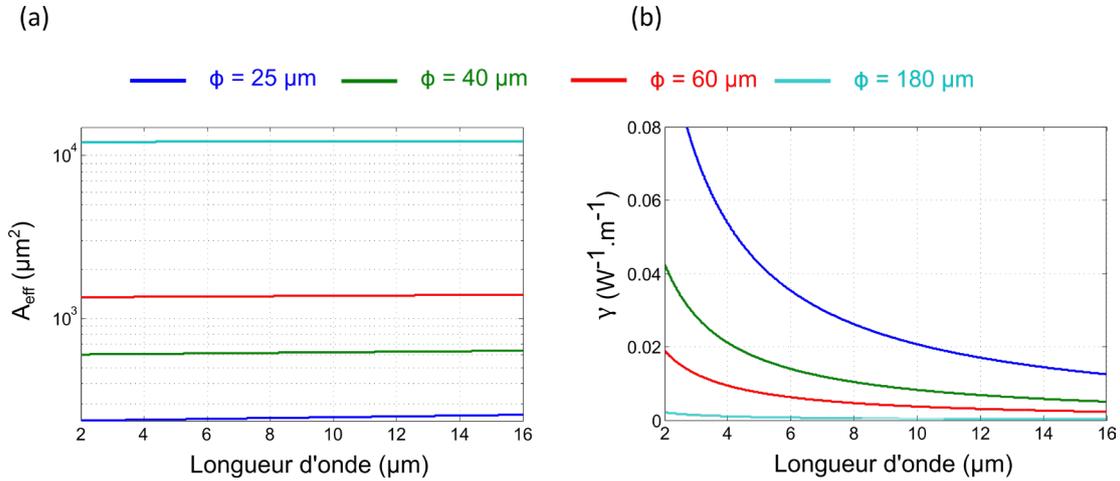


Figure III.4 – (a) Aire effective calculée du mode fondamental guidé pour différents diamètres de fibre de 25, 40, 60 et $180 \mu\text{m}$. (b) Évolution du paramètre γ pour ces mêmes diamètres de fibre en fonction de la longueur d'onde.

Dans le but de caractériser l'évolution de la non-linéarité au cours de la propagation, nous avons calculé la longueur non-linéaire $L_{\text{NL}} = 1/(\gamma P_0)$ en fonction du diamètre de la fibre et pour trois puissances crêtes couplées différentes (250 kW, 500 kW et 1 MW). Cette longueur est très courte ($L_{\text{NL}} < 300 \mu\text{m}$) pour des diamètres fins et pour des puissances couplées importantes. Pour des diamètres plus élevés, cette longueur est supérieure au mm, avec notamment 6 mm pour un diamètre de $180 \mu\text{m}$ pour la plus petite puissance crête. Dans tous les cas, nous utilisons des fibres avec des longueurs de l'ordre de 5 cm, la longueur de propagation est donc largement supérieure à L_{NL} pour que les effets non-linéaires apparaissent et pour que les pertes ne soient pas préjudiciables.

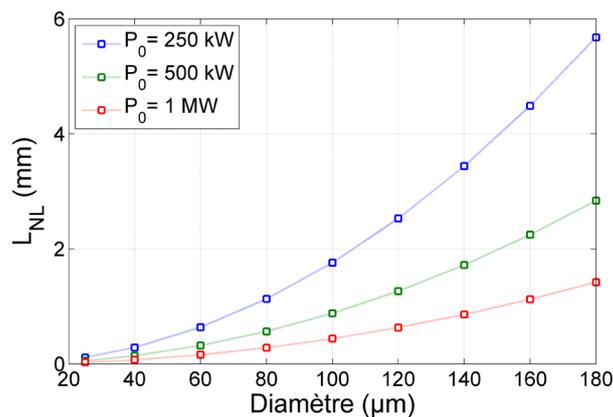


Figure III.5 – Longueur non-linéaire calculée en fonction du diamètre de la fibre pour trois puissances crêtes initiales de 250 kW, 500 kW et 1 MW.

Plusieurs fibres effilées ont donc été fabriquées avec des tailles de waist différentes entre 40 et $15 \mu\text{m}$. Ici, nous étudions des fibres effilées avec des transitions les plus douces possible, en partant du diamètre initial de $180\text{-}\mu\text{m}$ pour aller jusqu'au waist et revenir au diamètre initial. Des longueurs de transition ont donc été choisies allant de 10 mm à 15 mm. Avec les résultats expérimentaux

précédents, il a été décidé de prendre une longueur utile de fibre de 5 cm. Les profils fabriqués ont donc des profils du type 10-30-10 ou 12,5-25-12,5 avec par exemple, 10 mm de transition 1, 30 mm de longueur de waist et 10 mm de transition 2. La Figure III.6 (a) présente la variation du diamètre externe en fonction de la position le long de la fibre pour une fibre effilée de profil 10-30-10, telle qu'implémentée dans le logiciel. Cette variation du diamètre est comparée en Figure III.6 (b) avec la mesure expérimentale du diamètre externe. Nous observons un bon accord entre le profil numérique et expérimental.

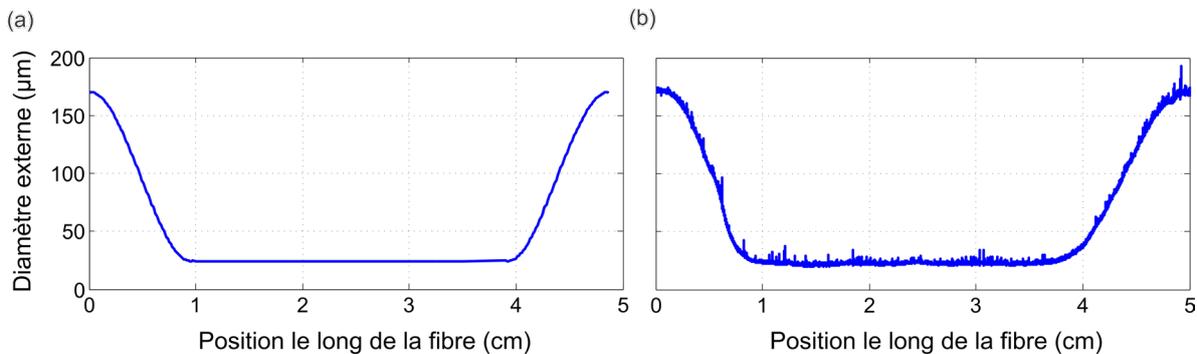


Figure III.6 – (a) Profil numérique de la fibre telle qu'implémenté dans le logiciel et (b) profil mesuré pour une fibre avec des transitions de 10 mm et une longueur de waist de 30 mm.

Afin de caractériser l'efficacité du couplage et des pertes induites par la section effilée, nous avons mesuré la transmission totale de plusieurs échantillons de 5-cm de long, pour différentes longueurs d'onde dans l'infrarouge moyen. La source laser utilisée est celle permettant de travailler jusqu'au MHz (Light Conversion (Chapitre II)). Le couplage de l'impulsion laser a été effectué via une lentille de 25-mm de longueur focale. Afin d'éviter le plus possible d'être dans un régime de propagation non-linéaire, des densités ainsi que des fenêtres en ZnSe ont été utilisées pour diminuer la puissance crête. Les résultats sont présentés dans la Figure III.7. D'une part, le taux de couplage que l'on peut obtenir dans une fibre non effilée est proche de 50 %. Ce taux de couplage relativement élevé peut s'expliquer par le fait qu'il soit plus simple de coupler de la puissance dans une fibre de 180 µm de diamètre en comparaison à une fibre à saut d'indice de petit diamètre de cœur. D'autre part, une augmentation de près de 2 à 3 dB des pertes induites par le fait d'avoir une section effilée est observée. Il faut noter que dans cette configuration expérimentale, le couplage a été optimisé sans tenir compte du nombre de modes excités (la propagation doit être fortement multimodale dans notre cas).

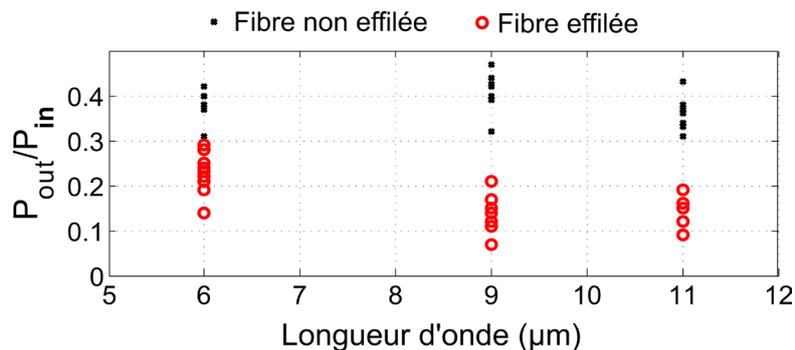


Figure III.7 – Ratio de la puissance en sortie de fibre sur la puissance en entrée pour une fibre non effilée et une fibre effilée de 25 µm de waist pour différentes longueurs d'onde.

Ces pertes supplémentaires peuvent être donc attribuées, dans un premier temps, à l'excitation de modes d'ordre supérieur qui sont filtrés dans la section du waist. Par exemple, le nombre de modes guidés à polarisation linéaire (LP_{0m}) (avec une symétrie circulaire) est réduit d'un facteur 7 dans la partie waist, en comparaison au diamètre initial pour la longueur d'onde de 6 µm. Cependant, nous

pouvons également supposer que le profil de la fibre effilée, ou tout autre défaut de surface, provoque des pertes de transmission sur les modes d'ordre supérieur [21]. Nous avons pu notamment vérifier que la transmission totale mesurée était fortement dépendante du couplage initial dans notre fibre.

2.2. Résultats

L'efficacité de nos fibres effilées Ge-Se-Te (GST) pour la génération de SC a été étudiée au laboratoire TTI (Toyota Technological Institute à Nagoya (Japon)), à l'aide de la source travaillant au kHz présentée dans le Chapitre II (1.1.1.). La longueur d'onde pompe choisie est située à $6,3 \mu\text{m}$ et l'énergie disponible est de $4 \mu\text{J}$. La distribution spatiale du SC est également caractérisée par imagerie en champ proche de la face de sortie de la fibre avec une caméra infrarouge travaillant sur la gamme $2\text{--}16 \mu\text{m}$ (WinCamD, FIR2-16-HR). La puissance moyenne en sortie est également mesurée via un puissance-mètre thermique.

Il convient de mentionner qu'identifier les conditions pour un couplage initial optimal est prioritaire dans ces fibres multimodes. La propagation non-linéaire d'impulsions dépend fortement des couplages spatiotemporels dans les guides d'ondes multimodes [22]. Pour maximiser l'élargissement spectral, tout en contrôlant le contenu spatial du SC généré, il faut veiller à coupler au mieux dans le mode fondamental. Par conséquent, cela permet une transition modale adiabatique dans la fibre effilée, tout en minimisant la perte d'énergie. Dans ce cas, des effets négatifs sont évités, tels que de nombreux couplages intermodaux. Cependant, même dans ce cas idéal d'excitation du mode fondamental combinée à des impulsions femtosecondes, un accord de phase intermodal peut être observé par le biais d'une émission conique discrète [23,24], lorsque des puissances crêtes sont utilisées au-delà du seuil d'autofocalisation.

Dans un premier temps, nous avons vérifié l'impact de la longueur focale de la lentille de couplage utilisée sur la largeur spectrale du SC. La Figure III.8 (a) présente les SC mesurés pour une fibre effilée de $25 \mu\text{m}$ de waist pour deux lentilles de Germanium de 12 et 15 mm de longueur focale. Ici, le profil utilisé est du type 10-30-10. Nous pouvons identifier que le couplage est plus optimal avec la lentille de 15 mm de focale pour $0,23 \mu\text{J}$ en sortie de fibre, en comparaison à la lentille de 12 mm de focale avec $0,15 \mu\text{J}$. L'élargissement spectral est donc plus important en travaillant avec la lentille de 15 mm de focale.

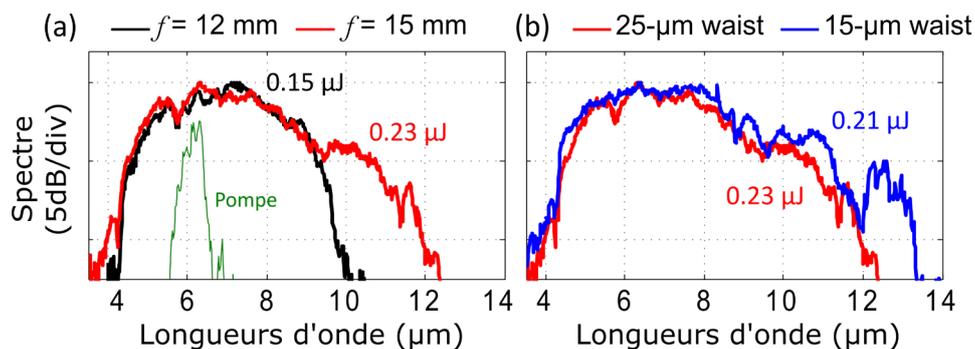


Figure III.8 – (a) Spectres SC mesurés pour une fibre effilée ($25 \mu\text{m}$ de waist) de 5 cm de long pompée à $6,3 \mu\text{m}$ au moyen de deux lentilles de couplage de longueur focale $f = 12 \text{ mm}$ et $f = 15 \text{ mm}$. Le spectre de la pompe est également présenté. (b) Spectres SC obtenus pour la même fibre de $25 \mu\text{m}$ de waist et pour une autre fibre avec un waist de $15 \mu\text{m}$ pour la lentille de 15 mm de longueur focale. Les énergies mesurées en sortie de fibre sont également indiquées.

Pour illustrer l'impact de la taille du waist sur la gamme spectrale du SC, une fibre effilée de $15 \mu\text{m}$ de waist a été étudiée avec la même lentille. Le résultat présenté en Figure III.8 (b) montre que l'élargissement spectral est plus important, notamment en raison du plus fort confinement des modes (avec $\gamma \sim 0,1 \text{ W}^{-1} \cdot \text{m}^{-1}$ à λ_0). Néanmoins, les fibres avec des diamètres de waist de $15 \mu\text{m}$ ont été plus souvent sujettes à des endommagements irréversibles. De plus, la bonne tenue du profil lors de la

fabrication pour un waist de 15 μm est également plus compliquée. Par conséquent, notre approche expérimentale nous a conduit à favoriser principalement des fibres effilées de 25- μm de diamètre de waist avec un profil de 12,5 mm pour les longueurs de transition et 25 mm de longueur de waist.

En l'occurrence, la Figure III.9 présente les meilleurs spectres obtenus expérimentalement pour une fibre mono-indice non effilée (Fig. III.9 (a & c)) et effilée de 25- μm de waist (Fig. III.9 (b & d)). Dans le cas de la fibre non effilée, le spectre s'étend de 2,5 à 12,5 μm , et l'énergie mesurée en sortie est de 0,36 μJ . Ici, le SC généré est obtenu en pompant dans le régime de dispersion normale de la fibre $\lambda_0 = 6,3 \mu\text{m}$ ($ZDW \sim 7,2 \mu\text{m}$).

Pour notre fibre effilée optimisée, le SC s'étend cette fois de 1,6 à 15,6 μm comme le montre la Figure III.9 (b). L'énergie en sortie est de 0,16 μJ ($P_0 = 0,94 \text{ MW}$), soit deux fois moins que dans le cas de la fibre non effilée. Nous pouvons s'attendre à cette différence en puissance couplée, au vu des mesures de transmission préliminaires (Fig. III.7). Cependant, nous pouvons également expliquer cette différence par le fait que le spectre s'étend sur une plage de longueurs d'onde plus grande et que les pertes linéaires soient plus importantes. Nous observons clairement la forte amélioration de la génération du SC sur les deux bords du spectre de notre fibre GST effilée. La largeur spectrale est augmentée de 67 THz dans le proche infrarouge et de 5 THz dans l'infrarouge moyen, soit une source large bande de $\sim 170 \text{ THz}$.

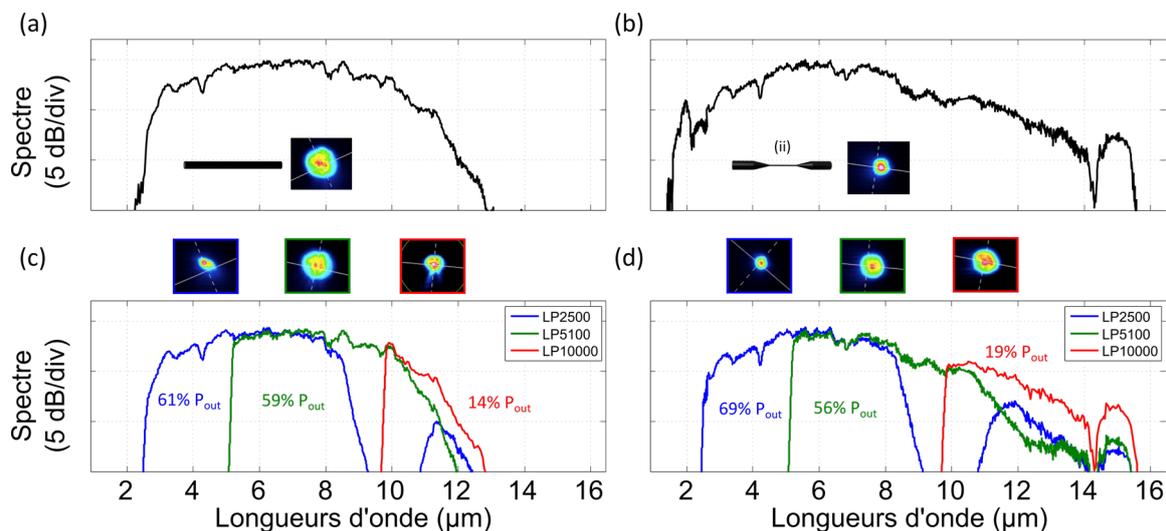


Figure III.9 - Spectres SC mesurés pompés à 6,3 μm pour des segments de 5 cm d'une fibre GST (a) et (c) non effilée et (b) et (d) effilée (25 μm de waist). (a) et (b) présentent les spectres complets mesurés. Les encarts montrent l'image en champ proche obtenue en sortie de fibre. (c) et (d) présentent la distribution de la puissance après l'utilisation de filtres spécifiques dans l'infrarouge. Il convient de noter que la qualité des clives effectuées à l'aide d'une lame de scalpel, peut avoir une incidence sur les profils spatiaux présentés.

L'amélioration du confinement de la puissance dans le waist, combinée au décalage progressif du ZDW vers les courtes longueurs d'onde le long de la fibre, facilite l'élargissement spectral de la source SC. La caractérisation de la densité spectrale de puissance, en filtrant certaines fenêtres de longueurs d'onde (Fig. III.9 (c-d)), a permis d'identifier que près de 20% de la puissance transmise en sortie est délivrée au-delà de 10 μm . Bien qu'il soit difficile de décrire précisément le contenu modal avec nos mesures en champ proche, nous notons un nettoyage du profil spatial du SC à la sortie de la fibre effilée. Cela peut résulter d'un filtrage des modes d'ordre supérieur par la section du waist de la fibre GST.

Dans le cas des deux spectres présentés ci-dessus (fibre effilée ou non), nous estimons la puissance crête en entrée de fibre supérieure à 2 MW. Lors de la propagation de telles impulsions ultra-courtes et intenses, il se produit généralement un phénomène d'autofocalisation. Pour un faisceau

Gaussien, la puissance nécessaire pour que ce phénomène apparaisse est appelée puissance critique d'autofocalisation et est donnée par la relation suivante [25] :

$$P_{crit} = 1,86 \frac{\lambda_0^2}{4\pi n_0 n_2} \quad (III.1)$$

avec λ_0 la longueur d'onde de pompe, n_0 l'indice de réfraction du verre et n_2 l'indice non-linéaire.

Par rapport à nos valeurs P_{crit} dans les deux cas, la puissance crête en entrée est bien au-delà du seuil d'autofocalisation ($\sim 7 \times P_{crit}$). Ce phénomène d'autofocalisation peut donc se produire lors de la propagation de l'impulsion laser, et impacter significativement la dynamique non-linéaire et l'élargissement spectral dans l'infrarouge moyen dès les premiers millimètres [26]. Rappelons que des études de génération de SC avaient été effectuées au sein de l'équipe dans des verres massifs pour des puissances crêtes très supérieures à la puissance critique ($P_0 > 100 \times P_{cr}$), impliquant alors les phénomènes d'autofocalisation. Les verres de chalcogénures étudiés étaient des compositions de Ge-S-Se, Ge-Se ou Te-Ge-Ga avec des épaisseurs de l'ordre de 4 mm. Les spectres obtenus s'étendaient au-delà de 10 μm et jusqu'à 16 μm pour un verre Te-Ge-Ga [26].

Concernant la génération des spectres en Figure III.9, on peut supposer une dynamique équivalente à celle étudiée récemment dans les fibres multimodes en silice [23,24]. L'exemple présenté avec la Figure III.10 correspond à la propagation d'une impulsion gaussienne de 100 fs dans 4 cm de fibre multimode (MMF) à saut d'indice non effilée tirée de la référence [23]. Dans le cas d'un pompage en dispersion normale et dans le mode fondamental, avec des puissances crêtes similaires à la puissance critique d'autofocalisation, le phénomène d'émission conique peut être observé. La Figure III.10 (a) illustre la distribution du spectre optique sur les différents modes (LP_{0m}) de la fibre avec une forme typique en X. On observe un couplage spontané important de l'énergie dans les modes d'ordre supérieur à partir du mode fondamental après seulement quelques centimètres. On note également que les fréquences les plus élevées (courtes longueurs d'onde) sont contenues dans les modes d'ordre supérieur. Les Figures III.10 (b-d) montrent que l'élargissement spectral s'effectue principalement lors de la fission de l'impulsion dans le domaine temporel. Ceci est lié plus particulièrement au phénomène d'auto-raïdissement du front retardé de l'impulsion (il faut également souligner que cette dynamique temporelle intervient lors de l'autofocalisation spatiale relevée dans la Figure III.10 (d)). Cette dynamique spatio-temporelle à l'origine de l'émission conique a déjà été observée de nombreuses fois dans les matériaux massifs, [27,28]. La fission de l'impulsion initiale s'accompagne donc d'un choc optique sur le front retardé en raison de la dépendance non-linéaire de l'indice de réfraction. Rappelons que le phénomène d'auto-raïdissement de l'impulsion provient de la variation de vitesse de groupe entre les ailes de l'impulsion et de son maximum [29,30]. Le pic de l'impulsion va alors se propager moins vite provoquant un raidissement du front retardé de l'impulsion, ce qui peut entraîner la formation d'un choc optique par analogie avec une onde acoustique. L'auto-raïdissement peut avoir un effet important sur l'impulsion avec notamment un fort élargissement spectral asymétrique. En effet, le front de l'impulsion plus raide va provoquer un élargissement spectral plus conséquent vers les hautes fréquences [29,31].

Ce choc optique sur le front retardé va donc provoquer un élargissement spectral important et un couplage simultané de l'énergie dans un nombre important de modes associé à l'autofocalisation spatiale. On assiste alors à la génération de multiples ondes dispersives, en accord de phase sur des modes d'ordre supérieur spécifiques. Celles-ci subsistent avec des intensités significatives lors du reste de la propagation (forme typique en X (Fig. III.10 (a))). Cet accord de phase (indiqué par des carrés blancs sur la figure III.10 (a)) est gouverné par les propriétés dispersives du milieu et la vitesse de groupe du choc optique (voir ligne pointillée figure III.10 (c)) [23,24]. Bien que cette dynamique soit illustrée dans le cas d'une fibre silice MMF non effilée, nous supposons une évolution spatio-temporelle et une distribution modale du spectre équivalentes dans nos fibres chalcogénures, à savoir

un élargissement spectral plus important aux courtes longueurs d'onde dans les modes d'ordre supérieur en comparaison à l'élargissement spectral dans le seul mode fondamental.

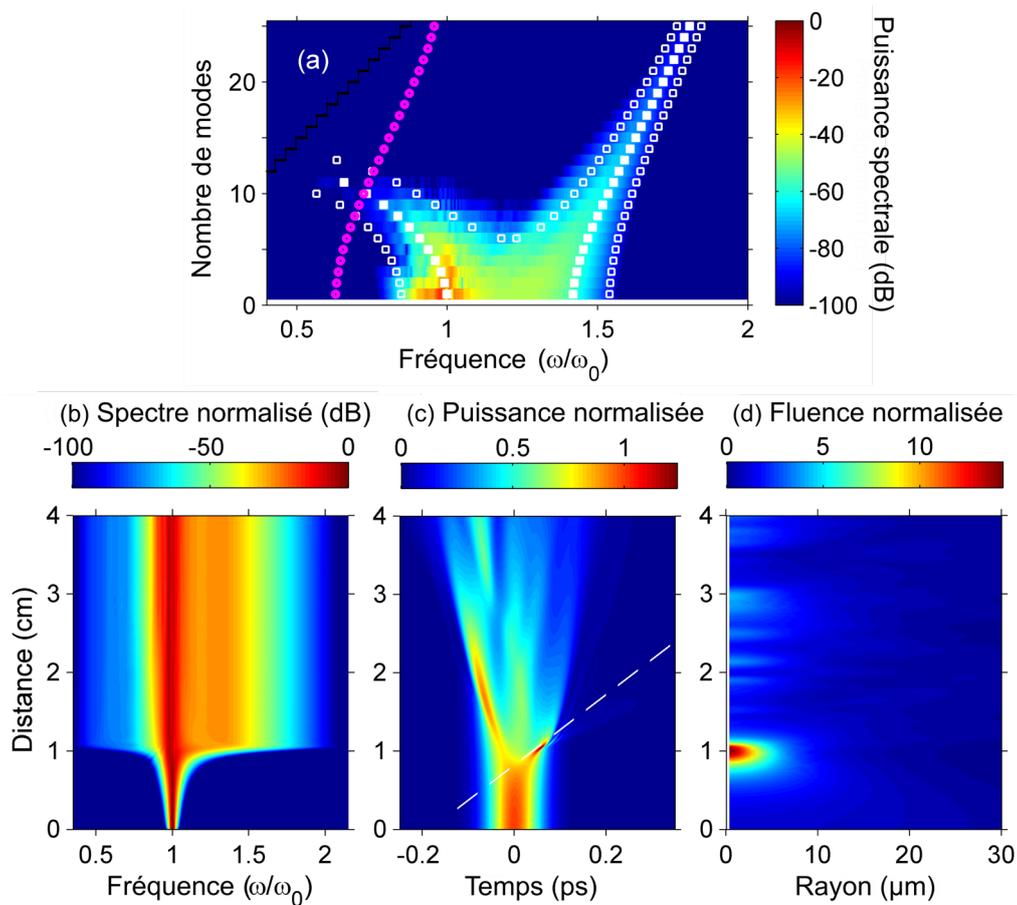


Figure III.10 – Exemple de propagation non-linéaire d’une impulsion de 100 fs (300 nJ à 800 nm) dans une fibre silice à saut d’indice multimode de 4 cm. (a) Distribution modale du spectre optique. Les carrés blancs représentent les accords de phase de l’onde conique discrète. La courbe noire représente le nombre de modes guidés. Les cercles roses représentent la fréquence de dispersion nulle pour les différents modes. (b) Évolution en fonction de la longueur de propagation du spectre optique et (c) évolution temporelle de l’impulsion. La droite en pointillés est indiquée pour souligner la vitesse de groupe du choc optique. (d) Évolution de la fluence. Figure tirée de [24].

Notre hypothèse, concernant le fait d’utiliser une fibre mono-indice avec une partie effilée afin d’obtenir un large spectre dans l’infrarouge, s’avère correcte. L’utilisation de ces fibres effilées avec des chaînes laser travaillant jusqu’au MHz pourrait permettre d’obtenir à la fois des spectres sur des largeurs spectrales intéressantes dans l’infrarouge moyen, et une puissance moyenne d’intérêt pour envisager des mesures de spectroscopie. Il est cependant important de mentionner que le profil du faisceau en sortie de fibre peut présenter encore un comportement multimode, ce qui pourrait présenter des limitations pour des applications spécifiques.

3. Pompage avec une source femtoseconde (cadence jusqu’au MHz)

Dans la suite de ce chapitre, nous nous intéressons à l’utilisation de ces fibres Ge-Se-Te pour la génération de supercontinuum avec la chaîne laser présentée au Chapitre II (Light Conversion, disponible à l’ICB). Cette source laser ne possédant pas une puissance crête aussi élevée que celle précédente, l’élargissement spectral attendu serait moins conséquent au-delà de 12 μm . Cependant l’intérêt est de pouvoir travailler à des taux de répétition plus important entre 10 kHz et 1 MHz, nous

permettant d'envisager de générer un SC présentant plusieurs dizaines ou centaines de mW en sortie de fibre.

3.1. Mesures préliminaires

Pour commencer notre étude, nous optons pour une longueur d'onde de pompe laser située à 6 μm pour avoir un compromis entre puissance disponible (Fig. II.2 (b)) et le ZDW de notre fibre, comme précédemment. Premièrement, le pompage est effectué au taux de répétition de 250 kHz dans une fibre Ge-Se-Te mono-indice de 180 μm de diamètre avec trois lentilles différentes, une CaF_2 de 20 mm de focale ou de 25 mm de focale et une lentille ZnSe de 40 mm de longueur focale. En considérant les propriétés d'un faisceau gaussien après son passage à travers une lentille, comme présenté au Chapitre II (1.2.1), nous pouvons estimer le diamètre du waist du faisceau pour nos différentes lentilles. La taille de ce waist estimée est en dessous de 140 μm , ce qui est en adéquation avec le diamètre du mode fondamental à mi-hauteur d'environ 90 μm pour la fibre de 180 μm de diamètre externe. Les résultats présentés avec la Figure III.11 montrent que l'élargissement spectral le plus optimal est obtenu avec la lentille de 40 mm de focale. Le choix est donc fait de tester, par la suite, nos fibres effilées en prenant cette lentille en ZnSe avec 40 mm de focale. Il est intéressant de noter que l'utilisation de ces lentilles avec une longue focale, permet de coupler une puissance moyenne importante : 43,7 mW, 46 mW et 42 mW, mesurées en sortie de fibre pour respectivement les lentilles de 20, 25 et 40 mm. Ces puissances moyennes couplées correspondent à environ 0,7 MW de puissance crête couplée.

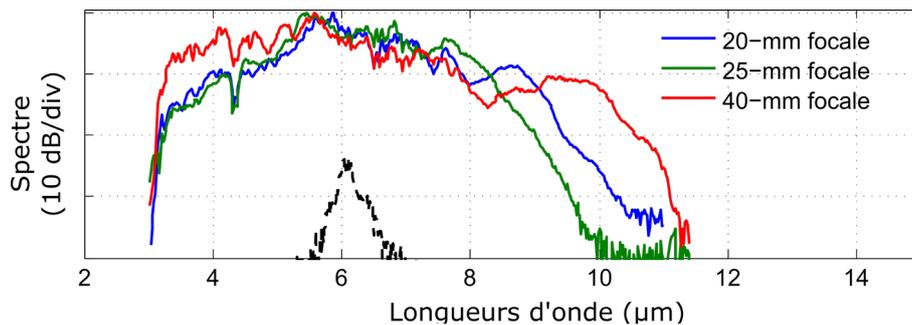


Figure III.11 – Spectres SC mesurés pour une fibre Ge-Se-Te de 5 cm de longueur de diamètre 180 μm , en pompant à 6 μm avec des lentilles de 20, 25 et 40 mm de longueur focale. La pompe est également présentée (pointillés en noir). La puissance crête couplée est de l'ordre de 700 kW.

Les résultats obtenus dans le cas d'un pompage d'une fibre non effilée de 180 μm de diamètre, avec plusieurs puissances crêtes sont présentés avec la Figure III.12. Comme attendu, la non-linéarité notable de cette composition GST conduit à un élargissement spectral important, s'étendant de 3 μm à 9 μm dans la fibre, en particulier pour la puissance crête la plus élevée (Fig. III.12). Grâce à l'utilisation des densités avant la fibre, les puissances crêtes couplées sont de 576 kW, 231 kW et 45 kW (cadence de 250 kHz) et sont estimées à partir de la puissance moyenne en sortie de fibre. Nous avons utilisé l'équation de Schrödinger non-linéaire généralisée (GNLSE) largement employée dans la littérature pour simuler nos résultats [32]. Il convient de noter que la modélisation la plus appropriée devrait être basée sur l'équation de propagation unidirectionnelle multimodale (MM-UPPE) [23,24,33,34]. En effet, comme présenté au Chapitre II, la simulation basée sur la GNLSE décrit un comportement monomode de la fibre avec la dispersion du seul mode fondamental guidé. Cependant pour modéliser la génération du SC avec un comportement multimodal, il serait nécessaire de caractériser le couplage spatial à l'entrée de la fibre pour différentes longueurs d'onde. De plus cela nécessiterait un temps de calcul important en raison des spectres s'étendant sur une large gamme spectrale. Par la suite, nous montrons qu'un contrôle minutieux de l'excitation du mode fondamental peut simplifier ces problèmes de modélisation, en limitant le plus possible le couplage de l'énergie dans les modes d'ordres supérieurs. Dans ce contexte, l'utilisation des lentilles à longue focale est un

atout, car elle permet d’optimiser cette excitation du mode fondamental. Cela participe d’ailleurs à expliquer les meilleurs résultats obtenus avec les longues focales.

Nous pouvons identifier que les résultats expérimentaux pour la fibre non effilée concordent bien avec les simulations numériques (Fig. III.12 (b)), malgré un léger désaccord aux courtes longueurs d’onde et principalement pour le SC le plus large. Nous pouvons probablement attribuer cette déviation au comportement fortement multimode de la fibre non effilée (couplage important de l’énergie dans les modes d’ordre supérieur). Nous pouvons relever que dans le cas de la puissance crête couplée la plus élevée (576 kW), la puissance critique est de nouveau dépassée ($P_{\text{crit}} \sim 260$ kW à 6 μm), conduisant probablement à un phénomène d’autofocalisation dans notre fibre et la dynamique présentée à la partie 2.2 de ce chapitre.

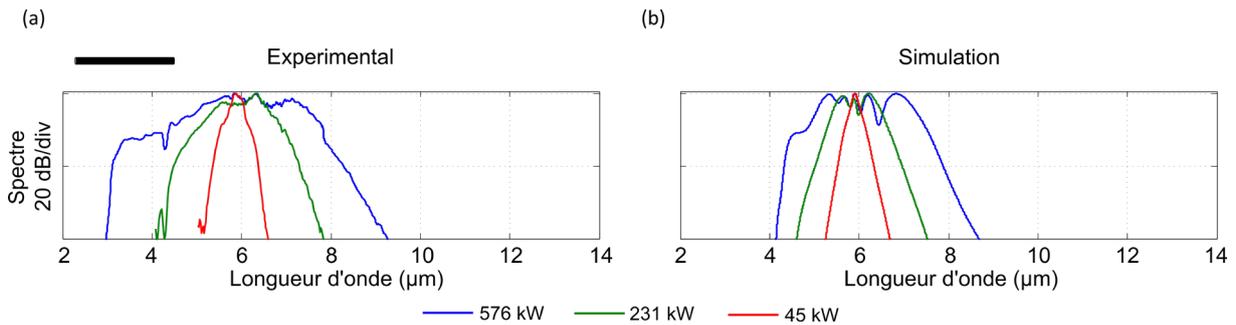


Figure III.12 – (a) Spectres SC mesurés expérimentalement dans une fibre mono-indice non effilée de diamètre de 180 μm avec $P_0 = 576$ kW, 231 kW et 45 kW (puissances crêtes couplées). (b) Spectres SC simulés pour les mêmes puissances crêtes.

Dans le but d’augmenter la cadence de répétition de la chaîne laser lors du pompage de fibres effilées et donc d’obtenir une puissance moyenne en sortie de fibre plus importante, nous avons testé différents diamètres de waist. Nous avons pu noter un taux d’endommagement plus important pour des fibres effilées avec un diamètre de waist < 30 μm . Cet endommagement conduit généralement à la cassure de la fibre au niveau du waist ou des problèmes d’échauffement sur la face d’entrée. Afin de limiter cet endommagement, une fibre avec un waist de 40 μm de diamètre a été choisie pour la suite des expériences. Dans cette configuration, le diamètre de 40 μm permet d’avoir un ZDW situé vers 6.3 μm . De plus, la non-linéarité est 20 fois plus importante dans un diamètre de cette taille en comparaison du diamètre initial de 180 μm . Concernant les modes polarisés linéairement (LP_{0m}) pour une symétrie circulaire, il y a une réduction de leur nombre d’un facteur ~ 5 dans la partie effilée de 40 μm en comparaison au diamètre initial de 180 μm .

Dans le cas de cette fibre effilée de 40- μm de waist, il y a clairement une amélioration de la largeur spectrale du SC dans l’infrarouge moyen comme le montre la Figure III.13. La raison de cette dynamique de formation du continuum est identique à celle obtenue avec la chaîne kHz présentée précédemment. L’augmentation du confinement combinée au décalage du ZDW le long de la fibre facilite l’élargissement du spectre et l’aplatissement de celui-ci. Les puissances moyennes mesurées en sortie de fibre sont de 28 %, 39 % et 95 % de la puissance mesurée en sortie de fibre non effilée pour les mêmes puissances crêtes en entrée. Cela signifie qu’à de faibles puissances crêtes, il n’y a pratiquement pas de perte supplémentaire entre la fibre effilée ou non, lorsque le mode fondamental est principalement excité. Cependant, lorsque la puissance crête est augmentée (supérieure au seuil d’autofocalisation), la transmission totale dans la fibre effilée diminue en raison du filtrage spatial des modes d’ordre supérieur dans le waist de la fibre. Ces modes d’ordre supérieur sont excités en raison de l’autofocalisation qui se produit dès les premiers mm de propagation, et d’autres couplages intermodaux peuvent se produire. Par conséquent, nous avons considéré les puissances moyennes mesurées en sortie de fibre effilée comme des indicateurs pour le calcul des puissances crêtes pour la modélisation numérique du SC. Ainsi, 164 kW, 90 kW et 44 kW ont été les valeurs utilisées pour générer les résultats numériques présentés dans la Figure III.13 (b).

Il est intéressant de noter que même pour la puissance crête la plus faible ($P_0 = 44$ kW), l'élargissement est plus important que dans la fibre non effilée. Pour les SC mesurés, nous pouvons confirmer la dynamique spectrale avec les simulations numériques. Nous notons un meilleur accord aux courtes longueurs d'onde contrairement aux résultats obtenus avec une fibre non effilée (Fig. III.12). Les propriétés de cohérence des spectres ont été calculées pour 200 spectres [32]. La cohérence de chaque SC est présentée dans le cadran au-dessus des spectres simulés. Pour les trois puissances crêtes, on garde une excellente cohérence sur la gamme spectrale du SC, ce qui peut s'expliquer par le pompage de la fibre en dispersion normale. Le nombre de solitons ($N^2 = L_D/L_{NL} = \gamma P_0 T_0^2 / |\beta_2|$), calculé pour le diamètre initial de 180 μm , vaut environ 5 pour une puissance crête de 164 kW. D'après la simulation à l'entrée de la partie effilée de 40 μm , la puissance crête est d'environ 121 kW, le N calculé est, cette fois, de 33.

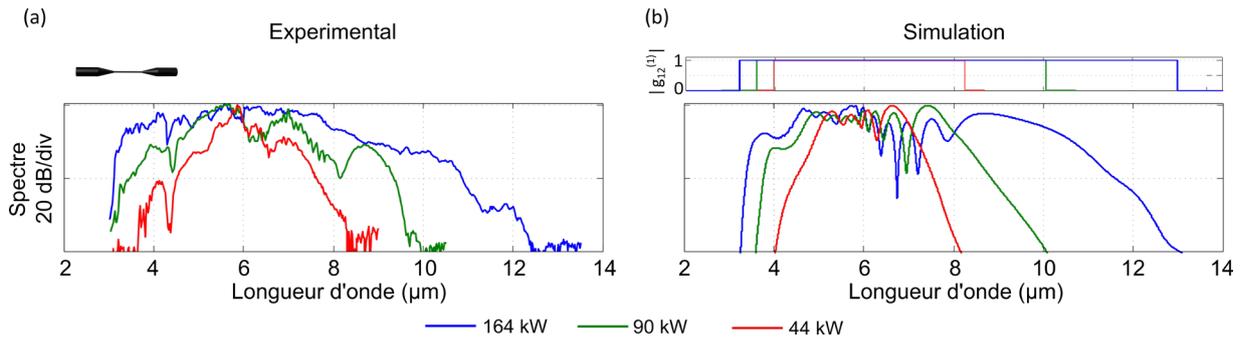


Figure III.13 – (a) Spectres SC mesurés expérimentalement dans une fibre effilée de 40 μm de waist pour une puissance crête $P_0 = 164$ kW, 90 kW et 44 kW. (b) Spectres SC simulés pour les mêmes puissances crêtes. Le cadran du dessus présente le degré de cohérence g_{12} calculé pour les différents SC en réalisant 200 simulations.

Les longueurs non-linéaires calculées sont de 9 mm ou de moins d'1 mm pour la section de 180 μm et 40 μm respectivement. Ces paramètres sont calculés pour donner un ordre de grandeur. En dispersion normale, cette valeur de N n'influe pas sur la cohérence de nos spectres. La mise en forme d'une fibre effilée, permet d'augmenter la largeur spectrale du SC mais pas au détriment de sa cohérence. Ce résultat est donc intéressant pour des applications dans l'infrarouge moyen, comme la spectroscopie d'absorption par exemple.

Nous notons clairement un bon accord de l'élargissement spectral du supercontinuum avec l'augmentation de la puissance crête, ce qui est confirmé avec la comparaison de la largeur de bande à -20 dB illustrée avec la Figure III.14.

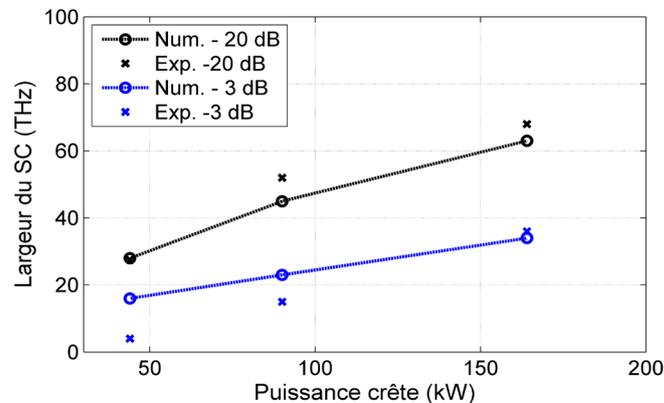


Figure III.14 – Comparaison des largeurs spectrales expérimentale et numérique à -20 dB ou -3 dB du SC, en fonction de la puissance crête injectée.

3.1.1. Influence du Raman dans la simulation numérique

Le spectre Raman de la composition de $\text{Ge}_{20}\text{Se}_{70}\text{Te}_{10}$ est disponible dans la littérature, en particulier dans les travaux de Sun *et al.* [20] comme présenté au Chapitre II. En revanche la valeur de la contribution Raman f_R n'est pas à notre connaissance reportée dans la littérature. Pour les fibres chalcogénures, nous trouvons des contributions Raman aux alentours de 0,1, avec par exemple $f_R=0,1$ pour une fibre As_2S_3 [16], $f_R=0,148$ pour une fibre As_2Se_3 [35] ou encore $f_R=0,115$ pour une fibre $\text{Ge}_{20}\text{As}_{20}\text{Se}_{15}\text{Te}_{45}$ [36]. Nous avons décidé de travailler avec une valeur de $f_R=0,1$. Bien entendu, une mesure du maximum de gain Raman sur les fibres Ge-Se-Te permettrait de calculer et d'utiliser une valeur f_R plus correcte. Afin d'étudier l'influence du Raman dans notre configuration, nous réalisons la simulation du SC généré avec la fibre effilée de $40\ \mu\text{m}$ de waist pour la puissance crête couplée de 164 kW (Fig. III.13). Pour rappel, dans l'équation de Schrödinger non-linéaire généralisée, l'effet Raman de la fibre est impliquée de la manière suivante :

$$R(t) = (1 - f_R)\delta(t) + f_R h_R(t) \quad (\text{III.2})$$

La simulation est effectuée pour deux configurations, avec ou sans réponse Raman (cad avec ou sans le terme $f_R h_R(t)$). La Figure III.15 illustre les résultats pour les deux configurations. La largeur spectrale à $-20\ \text{dB}$ est légèrement plus importante dans le cas où l'effet Raman est pris en compte. Nous pouvons voir que l'élargissement ne débute réellement qu'après 2 cm de propagation dans les deux cas (Fig. III.15 (b-c)). Le SC est principalement généré dans la partie du waist. La dynamique d'élargissement fait intervenir l'auto-modulation de phase (SPM) et il s'en suit alors un élargissement avec du signal franchissant le ZDW de la fibre, permettant la formation de solitons en dispersion anormale. La différence entre les deux spectres n'étant pas significative, il n'y a pas d'étude plus fine sur l'effet du Raman et notamment sur f_R pour nos simulations. Pour les modélisations des fibres Ge-Se-Te, la contribution Raman est fixée à $f_R=0,1$ et l'effet Raman est pris en compte avec le terme $f_R h_R(t)$.

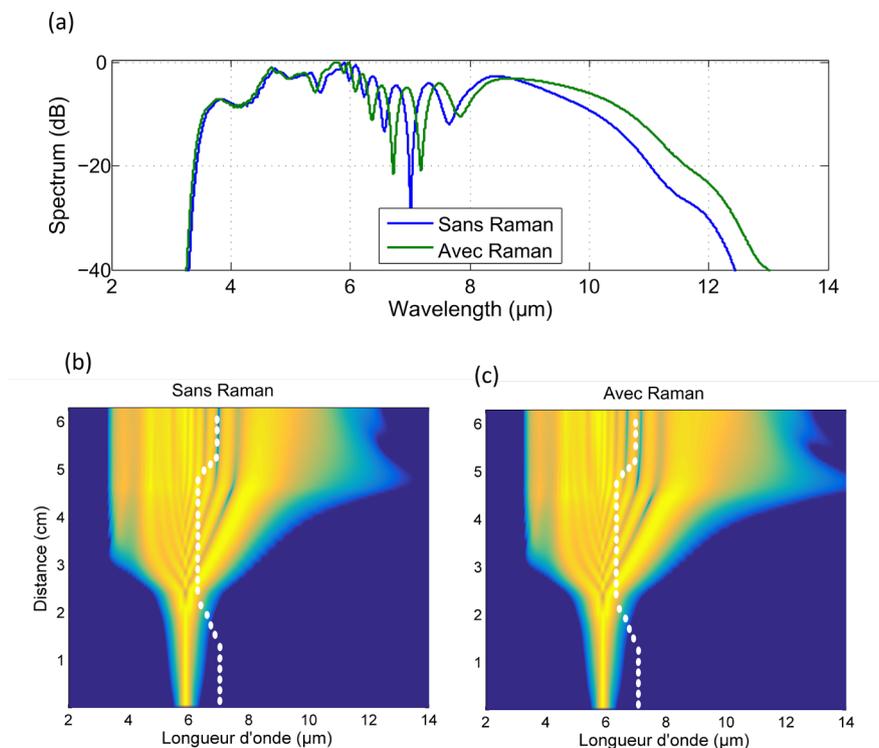


Figure III.15 – (a) Spectres SC numériques en prenant en compte ou non l'effet Raman. Évolution spectrale de l'impulsion laser (b) sans prendre en compte l'effet Raman ou (c) en le prenant en compte. Les points blancs représentent la position du ZDW le long de la fibre.

3.2. Montée en puissance moyenne

D'autres expériences ont été menées sur ces fibres de 40- μm de waist pour obtenir le spectre le plus optimisé possible, que ce soit en termes de puissance moyenne et de largeur spectrale. La Figure III.16 illustre deux spectres obtenus dans la même fibre avec des cadences de répétition différentes. Le premier spectre est celui pour une cadence de répétition de 500 kHz qui s'étend de 2 à 15 μm . L'élargissement spectral est donc un résultat intéressant, proche de celui obtenu avec la source travaillant au kHz et ayant une puissance crête plus élevée. La puissance moyenne mesurée est de 93 mW sur toute la gamme spectrale du SC. En utilisant des filtres appropriés, nous avons également pu mesurer une puissance moyenne de 11 mW après 9 μm et encore 4,3 mW après 11 μm .

Nous avons pu travailler sur la même fibre effilée à une cadence de 1 MHz et la puissance de sortie était cette fois de 170 mW. Cependant, le spectre ne s'étend plus jusqu'à 15 μm en raison d'un couplage moins optimal avec une puissance crête couplée de 661 kW en comparaison de 724 kW à 500 kHz. Il est intéressant de noter que cette fibre présente des performances robustes pour des taux de répétition élevés, supportant donc des niveaux de puissance moyenne de l'ordre de la centaine de mW ou davantage. En plus de cela, elle présente un élargissement spectral significatif dans l'infrarouge moyen au-delà de 10 μm . Ce spectre couvre l'intégralité de la fenêtre de transparence atmosphérique qui s'étend de 8 à 14 μm (bande III), ce qui représente un important potentiel en termes d'applications comme celles liées à la spectroscopie.

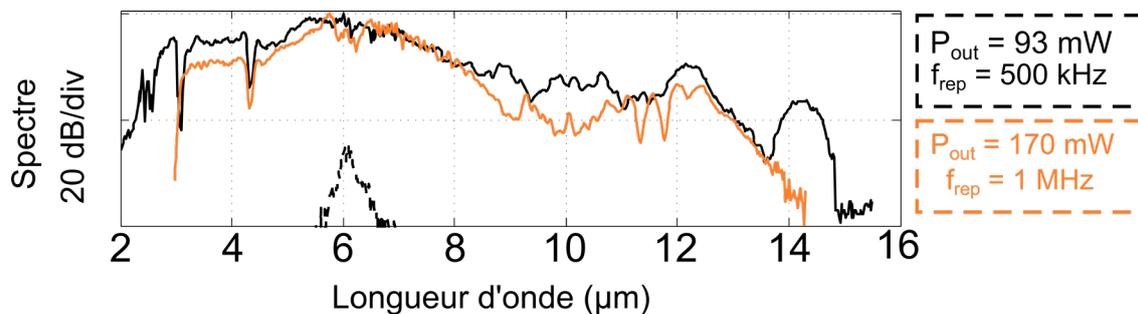


Figure III.16 – Spectres SC mesurés après un pompage laser à 6 μm dans une fibre effilée de 40 μm de diamètre de waist pour deux cadences de répétition (500 kHz et 1 MHz). Les puissances moyennes mesurées en sortie de fibre sont également indiquées.

Ces résultats font évoluer significativement l'état de l'art pour la largeur spectrale allant au-delà de 11 μm , combinée à la forte puissance moyenne. Comme présenté au Chapitre I, la plupart des SC allant loin dans l'infrarouge sont obtenus avec des sources kHz, ne permettant pas d'avoir de puissance moyenne en sortie. Concernant les SC avec une puissance moyenne comparable pour une largeur spectrale équivalente et dans le cas d'un pompage direct en régime femtoseconde, nous pouvons citer le travail présenté par Petersen *et al.* [15]. En effet, ils obtiennent un spectre avec une puissance moyenne en sortie de fibre de 35,4 mW, pour un SC allant de 1 à 11,5 μm . De même, nous pouvons citer le SC obtenu par Hudson *et al.* [16].

La Figure III.17 présente l'état de l'art de la puissance moyenne en sortie de fibre en fonction de la largeur du spectre obtenu à -20 dB, dans le cas d'impulsion femtoseconde mais également pour des durées d'impulsion plus longues (ps ou ns). En effet, nous pouvons le cas d'un système de cascade de fibres (silice, fluorure et chalcogénure), où le SC s'étend de 1,6 à 11 μm avec une puissance moyenne de 139 mW [37]. Toujours dans un système en cascade, Woyessa *et al.* [38] ont obtenu un spectre par allant de 1,5 à 10,5 μm avec 86 mW en sortie de fibre. Ce dispositif est d'ailleurs commercialisé par l'entreprise Norblis.

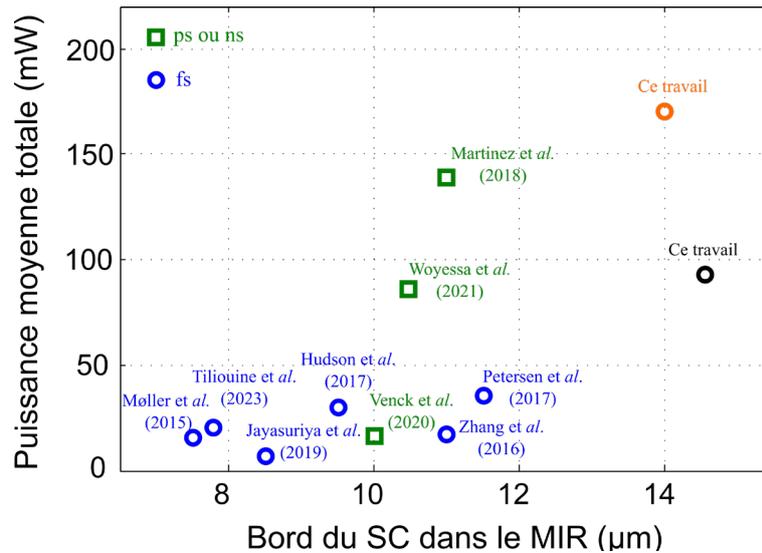


Figure III.17 – État de l’art de la puissance moyenne des SC les plus larges dans l’infrarouge moyen dans le cas d’un pompage direct en régime femtoseconde et pour des systèmes en cascade avec des impulsions longues. Les travaux cités sont les suivants [5,15,16,37–42].

Dans le cas des deux spectres présentés ci-dessus, nous pouvons voir que la puissance crête couplée est importante (724 kW et 661 kW soit 0,19 μ J et 0,17 μ J). Une nouvelle fois, la puissance est au-dessus du seuil d’autofocalisation. Les différents paramètres pour les deux configurations sont présentés dans le Tableau III.2.

Tableau III.2 – Différents paramètres pour le pompage à 6 μ m d’une fibre effilée de 40 μ m de diamètre de waist pour deux taux de répétition différents.

Composition	Pompe laser (μ m)	$n_{eff}(\lambda_p)$	P_{crit} (kW)	Puissance moyenne (mW)	Puissance crête (kW)	Taux de répétition
Ge ₂₀ Se ₇₀ Te ₁₀	6	2,494	260	93	724	500 kHz
				170	661	1 MHz

3.2.1. Étude numérique du supercontinuum pour la puissance crête de 724 kW

Pour tenter de décrire la propagation de l’impulsion dans cette fibre pour la puissance crête la plus élevée (724 kW), nous réalisons la simulation numérique du SC, ainsi que le calcul de la cohérence. Comme la Figure III.18 le présente, la simulation laisse penser qu’en couplant toute l’énergie (soit 0,19 μ J), le spectre s’étendrait légèrement plus loin dans l’infrarouge avec un soliton à -20 dB entre 14 et 16 μ m. Expérimentalement, il semble qu’un soliton soit formé aux alentours de 14 μ m, mais le signal chute vers 15 μ m. Cependant, on identifie clairement dans le cas de la simulation numérique que la pompe à 6 μ m est déplétée avec un signal entre 6 et 8 μ m au niveau de -10 dB. Expérimentalement, il y a toujours beaucoup d’énergie vers 6 μ m, confirmant un couplage non exclusif dans le seul mode fondamental ou un couplage dans les modes d’ordre supérieur dû à l’autofocalisation.

Nous pouvons également identifier qu’une bonne cohérence sur la plage spectrale du supercontinuum est conservée, mais nous notons une légère diminution de cette cohérence notamment entre 6 et 8 μ m. La puissance crête étant très importante, le nombre de solitons N vaut dans ce cas 11 pour le diamètre initial de 180 μ m, mais vaut plus de 60 pour la partie waist.

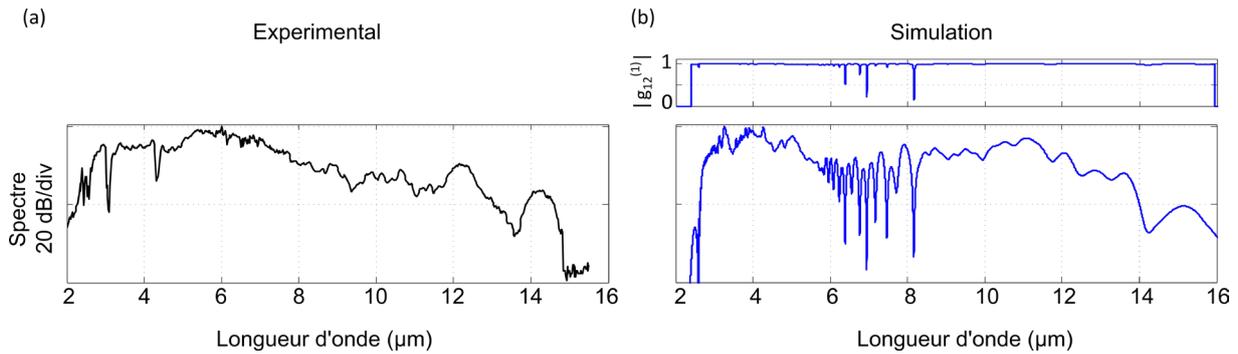


Figure III.18 – (a) Spectre SC mesuré expérimentalement en sortie de la fibre effilée de 40 µm de waist pour la cadence de 500 kHz avec la puissance crête couplée de 724 kW. (b) Spectre SC simulé pour la même puissance crête. Le cadran en dessus présente le degré de cohérence g_{12} , calculé pour les différents SC en réalisant 200 simulations.

Nous avons pu au moyen de différents filtres mesurer la puissance moyenne du spectre sur certaines plages spectrales. Pour comparer ces différentes mesures avec le spectre simulé numériquement, nous avons calculé cette fraction de la puissance au-delà de certaines longueurs d'onde. Cette fraction peut se définir par le rapport de l'intégrale du spectre, au-delà de la longueur d'onde considérée rapportée à l'intégrale totale du spectre. Les résultats sont présentés avec la Figure III.19.

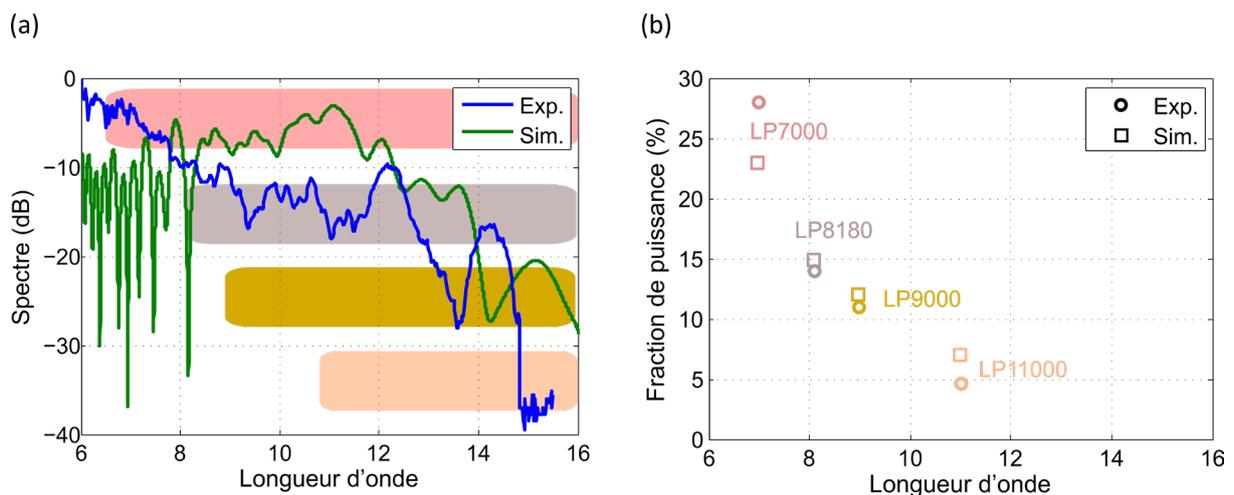


Figure III.19 – (a) Spectres SC expérimental et numérique pour la fibre GST effilée avec un diamètre de waist de 40 µm pour une puissance crête de 724 kW (cadence de 500 kHz). Les bandes de transmission des différents filtres sont également illustrées. (b) Fraction de la puissance totale du spectre mesurée expérimentalement ou calculée après chaque filtre LP-X (avec X la longueur d'onde en nm).

Le spectre expérimental est comparé avec celui numérique (Fig. III.19 (a)) et les différentes plages spectrales couvertes par les filtres sont illustrées. Nous avons utilisé un filtre LP7000, LP8180, LP9000 et LP11000 pour couvrir tout le spectre côté infrarouge moyen. La fraction de la puissance mesurée expérimentalement pour chaque filtre est plutôt en bon accord avec la simulation. Nous notons une fraction de puissance de 15 % (soit 14 mW) au-delà de 8 µm, ce qui est important pour des applications en spectroscopie par exemple. En effet, au-delà de 8 µm, nous entrons dans la fenêtre de transparence atmosphérique 8-14 µm, qui offre de nombreuses perspectives.

3.3. Perspectives pour les fibres Ge-Se-Te

Dans le cas du pompage à 6 µm à la cadence de 500 kHz, nous avons pu mesurer 93 mW en sortie de fibre. Cependant, nous pouvons nous demander si nous aurions pu coupler davantage de

puissance. L'énergie disponible à cette longueur d'onde est d'environ 0,51 μJ après la lentille de ZnSe de focale 40 mm par exemple, représentant 255 mW moyen. Le coefficient de Fresnel R_F , défini dans la partie 1.3.2 du Chapitre I, vaut à cette longueur d'onde et pour un verre de $\text{Ge}_{20}\text{Se}_{70}\text{Te}_{10}$ environ 18 %. La puissance moyenne maximale possible mesurable en sortie de fibre serait donc de l'ordre de 170 mW (2 interfaces air/verre), sans prendre en compte les pertes de la fibre, qui sont négligeables sur 5 cm de longueur. Le couplage expérimental était donc de $\sim 93/170 = 55 \%$, soit une valeur déjà importante. Cette composition GST montre expérimentalement une bonne tenue au flux (que ce soit en puissance crête et en puissance moyenne). Une optimisation encore plus fine du couplage permettrait de générer un spectre équivalent, ou allant légèrement plus loin dans l'infrarouge moyen, mais avec une puissance moyenne encore plus élevée jusqu'à plus de 200 mW avec cette source en travaillant au MHz.

La génération de SC dans les fibres Ge-Se-Te ont déjà montré du potentiel pour la détection d'espèces chimiques par la spectroscopie IR [8]. Ces précédents travaux ont démontré la capacité à détecter du CH_4 à la longueur d'onde de 7,66 μm . Cependant, la cadence était de 77 kHz et le couplage n'était pas le plus optimal (problèmes de couplage dans des cœurs $< 20 \mu\text{m}$). L'amélioration du couplage avec nos fibres effilées permet, à la fois de générer des spectres de façon plus optimale dans l'infrarouge, mais également d'avoir une puissance moyenne disponible en sortie de fibre nettement plus importante. De nouvelles mesures de spectroscopie, que ce soit avec des liquides ou des gaz, sont désormais envisageables à des longueurs d'onde situées au-delà de 10 μm . De plus, l'acquisition en cours d'une caméra infrarouge sur la gamme 2-16 μm permettra prochainement de réaliser une analyse détaillée du contenu modal du SC.

4. Conclusion

Nous avons vu dans ce chapitre qu'il était possible de générer des spectres SC, allant loin dans l'infrarouge moyen avec des fibres effilées, de la composition $\text{Ge}_{20}\text{Se}_{70}\text{Te}_{10}$. Ce verre permettant, sous forme de fibre, de travailler avec des puissances crêtes élevées ($P_0 = 2,12 \text{ MW}$ (puissance crête en entrée)) pour une chaîne femtoseconde à la cadence de 1 kHz. Des puissances moyennes élevées sont également obtenues (jusqu'à 170 mW actuellement) disponibles en sortie de fibre, en pompant ce type de fibre avec une chaîne femtoseconde cadencée au MHz. Ces fibres nous permettent donc d'aller assez loin dans l'infrarouge moyen, avec une puissance moyenne suffisamment élevée pour envisager le développement d'une plateforme de spectroscopie IR pour des liquides ou des gaz à des longueurs d'onde d'intérêt.

De plus, nous avons montré que nous pouvions décrire nos spectres SC expérimentaux au moyen de l'équation de Schrödinger non-linéaire généralisée avec un bon accord, malgré le fait que nos fibres soient fortement multimodes. Une simulation avec une approche multimodale permettrait de décrire de façon encore plus précise le comportement de nos fibres effilées.

Pour envisager d'obtenir des spectres allant encore plus loin dans l'infrarouge et en gardant une puissance moyenne en sortie importante, d'autres verres chalcogénures peuvent être envisagés. Des verres plus riches en Te, pourraient permettre d'augmenter la non-linéarité du guide d'onde. De plus, l'utilisation de verres moins non-linéaires permettraient de conforter le concept de fibre effilée mono-indice.

Bibliographie

1. A. Lemière, F. Désévéday, B. Kibler, P. Mathey, G. Gadret, J.-C. Jules, C. Aquilina, P. Béjot, F. Billard, O. Faucher, and F. Smektala, "Mid-infrared two-octave spanning supercontinuum generation in a Ge–Se–Te glass suspended core fiber," *Laser Phys. Lett.* **16**, 075402 (2019).
2. A. Lemière, F. Désévéday, P. Mathey, P. Froidevaux, G. Gadret, J.-C. Jules, C. Aquilina, B. Kibler, P. Béjot, F. Billard, O. Faucher, and F. Smektala, "Mid-infrared supercontinuum generation from 2 to 14 μm in arsenic- and antimony-free chalcogenide glass fibers," *J. Opt. Soc. Am. B, JOSAB* **36**, A183–A192 (2019).
3. A. Lemière, R. Bizot, F. Désévéday, G. Gadret, J.-C. Jules, P. Mathey, C. Aquilina, P. Béjot, F. Billard, O. Faucher, B. Kibler, and F. Smektala, "1.7–18 μm mid-infrared supercontinuum generation in a dispersion-engineered step-index chalcogenide fiber," *Results in Physics* **26**, 104397 (2021).
4. B. Kibler, E. Serrano, A. Maldonado, L.-R. Robichaud, S. Duval, M. Bernier, R. Bizot, F. Désévéday, R. Vallée, Y. Messaddeq, and F. Smektala, "All-fiber 2–6 μm coherent supercontinuum source based on chalcogenide fibers pumped by an amplified mid-IR soliton laser," *Optics Communications* **542**, 129568 (2023).
5. I. Tiliouine, G. Granger, C. E. Jimenez-Durango, Y. Leventoux, B. Wetzel, V. Couderc, and S. Février, "Two-octave spanning supercontinuum from a 4.53 μm fiber-based laser," *Results in Physics* **47**, 106326 (2023).
6. L.-R. Robichaud, S. Duval, L.-P. Pleau, V. Fortin, S. T. Bah, S. Châtigny, R. Vallée, and M. Bernier, "High-power supercontinuum generation in the mid-infrared pumped by a soliton self-frequency shifted source," *Opt. Express* **28**, 107 (2020).
7. S. Duval, J.-C. Gauthier, L.-R. Robichaud, P. Paradis, M. Olivier, V. Fortin, M. Bernier, M. Piché, and R. Vallée, "Watt-level fiber-based femtosecond laser source tunable from 2.8 to 3.6 μm ," *Opt. Lett.*, OL **41**, 5294–5297 (2016).
8. R. Bizot, "Génération de supercontinuum dans des fibres de chalcogénures : application à la spectroscopie de gaz dans la bande atmosphérique III," Thèse de l'Université de Bourgogne (2023).
9. B. Luo, Y. Wang, Y. Sun, S. Dai, P. Yang, P. Zhang, X. Wang, F. Chen, and R. Wang, "Fabrication and characterization of bare Ge-Sb-Se chalcogenide glass fiber taper," *Infrared Physics & Technology* **80**, 105–111 (2017).
10. T. A. Birks, W. J. Wadsworth, and P. S. J. Russell, "Supercontinuum generation in tapered fibers," *Opt. Lett.*, OL **25**, 1415–1417 (2000).
11. Y. Sun, S. Dai, P. Zhang, X. Wang, Y. Xu, Z. Liu, F. Chen, Y. Wu, Y. Zhang, R. Wang, and G. Tao, "Fabrication and characterization of multimaterial chalcogenide glass fiber tapers with high numerical apertures," *Opt. Express* **23**, 23472 (2015).
12. C. R. Petersen, M. B. Lotz, G. Woyessa, A. N. Ghosh, T. Sylvestre, L. Brilland, J. Troles, M. H. Jakobsen, R. Taboryski, and O. Bang, "Nanoimprinting and tapering of chalcogenide photonic crystal fibers for cascaded supercontinuum generation," *Opt. Lett.* **44**, 5505 (2019).
13. N. Zhang, X. Peng, Y. Wang, S. Dai, Y. Yuan, J. Su, G. Li, P. Zhang, P. Yang, and X. Wang, "Ultrabroadband and coherent mid-infrared supercontinuum generation in Te-based chalcogenide tapered fiber with all-normal dispersion," *Opt. Express* **27**, 10311 (2019).
14. Y. Wang, S. Dai, G. Li, D. Xu, C. You, X. Han, P. Zhang, X. Wang, and P. Xu, "1.4–7.2 μm broadband supercontinuum generation in an As-S chalcogenide tapered fiber pumped in the normal dispersion regime," *Opt. Lett.* **42**, 3458 (2017).
15. C. R. Petersen, R. D. Engelsholm, C. Markos, L. Brilland, C. Caillaud, J. Trolès, and O. Bang, "Increased mid-infrared supercontinuum bandwidth and average power by tapering large-mode-area chalcogenide photonic crystal fibers," *Opt. Express* **25**, 15336 (2017).
16. D. D. Hudson, S. Antipov, L. Li, I. Alamgir, T. Hu, M. E. Amraoui, Y. Messaddeq, M. Rochette, S. D. Jackson, and A. Fuerbach, "Toward all-fiber supercontinuum spanning the mid-infrared," *Optica* **4**, 1163 (2017).
17. Z. Eslami, P. Ryczkowski, L. Salmela, and G. Genty, "Low-noise octave-spanning mid-infrared supercontinuum generation in a multimode chalcogenide fiber," *Opt. Lett.* **45**, 3103 (2020).

18. Z. Eslami, P. Ryczkowski, C. Amiot, L. Salmela, and G. Genty, "High-power short-wavelength infrared supercontinuum generation in multimode fluoride fiber," *J. Opt. Soc. Am. B* **36**, A72 (2019).
19. J. Picot-Clemente, C. Strutynski, F. Amrani, F. Désévéday, J.-C. Jules, G. Gadret, D. Deng, T. Cheng, K. Nagasaka, Y. Ohishi, B. Kibler, and F. Smektala, "Enhanced supercontinuum generation in tapered tellurite suspended core fiber," *Optics Communications* **354**, 374–379 (2015).
20. L. Sun, F. Chen, Y. Xu, Y. Huang, S. Liu, Z. Zhao, X. Wang, P. Zhang, S. Dai, and X. Zhang, "Investigation of the third-order nonlinear property of Ge–Se–Te glasses at mid-infrared," *Appl. Phys. A* **122**, 816 (2016).
21. S. Ravets, J. E. Hoffman, P. R. Kordell, J. D. Wong-Campos, S. L. Rolston, and L. A. Orozco, "Intermodal energy transfer in a tapered optical fiber: optimizing transmission," *J. Opt. Soc. Am. A* **30**, 2361 (2013).
22. K. Krupa, A. Tonello, A. Barthélémy, T. Mansuryan, V. Couderc, G. Millot, P. Grelu, D. Modotto, S. A. Babin, and S. Wabnitz, "Multimode nonlinear fiber optics, a spatiotemporal avenue," *APL Photonics* **4**, 110901 (2019).
23. B. Kibler and P. Bédot, "Discretized Conical Waves in Multimode Optical Fibers," *Phys. Rev. Lett.* **126**, 023902 (2021).
24. K. Stefańska, P. Bédot, K. Tarnowski, and B. Kibler, "Experimental Observation of the Spontaneous Emission of a Space–Time Wavepacket in a Multimode Optical Fiber," *ACS Photonics* **10**, 727–732 (2023).
25. A. Couairon and A. Mysyrowicz, "Femtosecond filamentation in transparent media," *Physics Reports* **441**, 47–189 (2007).
26. O. Mouawad, P. Bédot, P. Mathey, P. Froidevaux, A. Lemièrre, F. Billard, B. Kibler, F. Désévéday, G. Gadret, J.-C. Jules, O. Faucher, and F. Smektala, "Expanding up to far-infrared filamentation-induced supercontinuum spanning in chalcogenide glasses," *Appl. Phys. B* **124**, 182 (2018).
27. J. K. Ranka, R. W. Schirmer, and A. L. Gaeta, "Observation of Pulse Splitting in Nonlinear Dispersive Media," *Phys. Rev. Lett.* **77**, 3783–3786 (1996).
28. A. Dubietis and A. Couairon, *Ultrafast Supercontinuum Generation in Transparent Solid-State Media*, SpringerBriefs in Physics (Springer International Publishing, 2019).
29. G. P. Agrawal, *Nonlinear Fiber Optics*, Sixth edition (Academic Press, 2019).
30. F. DeMartini, C. H. Townes, T. K. Gustafson, and P. L. Kelley, "Self-Steepening of Light Pulses," *Phys. Rev.* **164**, 312–323 (1967).
31. S. L. Chin, S. A. Hosseini, W. Liu, Q. Luo, F. Théberge, N. Aközbeke, A. Becker, V. P. Kandidov, O. G. Kosareva, and H. Schroeder, "The propagation of powerful femtosecond laser pulses in optical media: physics, applications, and new challenges," *Can. J. Phys.* **83**, 863–905 (2005).
32. J. M. Dudley, G. Genty, and S. Coen, "Supercontinuum generation in photonic crystal fiber," *Rev. Mod. Phys.* **78**, 1135–1184 (2006).
33. P. Bédot, "Multimodal unidirectional pulse propagation equation," *Phys. Rev. E* **99**, 032217 (2019).
34. K. Tarnowski, S. Majchrowska, P. Bédot, and B. Kibler, "Numerical modelings of ultrashort pulse propagation and conical emission in multimode optical fibers," *J. Opt. Soc. Am. B* **38**, 732 (2021).
35. T. Cheng, K. Nagasaka, T. H. Tuan, X. Xue, M. Matsumoto, H. Tezuka, T. Suzuki, and Y. Ohishi, "Mid-infrared supercontinuum generation spanning 2 to 15.1 μm in a chalcogenide step-index fiber," *Opt. Lett.* **41**, 2117 (2016).
36. W. Gao, W. Dai, Z. Zheng, K. Chen, Y. Chu, Q. Luo, X. Wang, K. Zhang, S. Huang, Y. Zhou, W. Fang, X. Chen, X. Ma, and M. Liao, "Simulation and analysis of supercontinuum generation in the waveband up to 25 μm ," *Appl. Opt.* **61**, 6697 (2022).
37. R. A. Martinez, G. Plant, K. Guo, B. Janiszewski, M. J. Freeman, R. L. Maynard, M. N. Islam, F. L. Terry, O. Alvarez, F. Chenard, R. Bedford, R. Gibson, and A. I. Ffarraguerri, "Mid-infrared supercontinuum generation from 1.6 to $>11 \mu\text{m}$ using concatenated step-index fluoride and chalcogenide fibers," *Opt. Lett.*, **OL 43**, 296–299 (2018).
38. G. Woyessa, K. Kwarkye, M. K. Dasa, C. R. Petersen, R. Sidharthan, S. Chen, S. Yoo, and O. Bang, "Power stable 1.5–10.5 μm cascaded mid-infrared supercontinuum laser without thulium amplifier," *Opt. Lett.*, **OL 46**, 1129–1132 (2021).

39. U. Møller, Y. Yu, I. Kubat, C. R. Petersen, X. Gai, L. Brilland, D. Méchin, C. Caillaud, J. Troles, B. Luther-Davies, and O. Bang, "Multi-milliwatt mid-infrared supercontinuum generation in a suspended core chalcogenide fiber," *Opt. Express* **23**, 3282 (2015).
40. S. Venck, F. St-Hilaire, L. Brilland, A. N. Ghosh, R. Chahal, C. Caillaud, M. Meneghetti, J. Troles, F. Joulain, S. Cozic, S. Poulain, G. Huss, M. Rochette, J. M. Dudley, and T. Sylvestre, "2–10 μm Mid-Infrared Fiber-Based Supercontinuum Laser Source: Experiment and Simulation," *Laser & Photonics Reviews* **14**, 2000011 (2020).
41. B. Zhang, Y. Yu, C. Zhai, S. Qi, Y. Wang, A. Yang, X. Gai, R. Wang, Z. Yang, and B. Luther-Davies, "High Brightness 2.2–12 μm Mid-Infrared Supercontinuum Generation in a Nontoxic Chalcogenide Step-Index Fiber," *J. Am. Ceram. Soc.* **99**, 2565–2568 (2016).
42. D. Jayasuriya, C. R. Petersen, D. Furniss, C. Markos, Z. Tang, Md. S. Habib, O. Bang, T. M. Benson, and A. B. Seddon, "Mid-IR supercontinuum generation in birefringent, low loss, ultra-high numerical aperture Ge-As-Se-Te chalcogenide step-index fiber," *Opt. Mater. Express* **9**, 2617 (2019).

Chapitre IV

Généralisation du concept à d'autres verres et gammes spectrales

Résumé du chapitre : Ce chapitre présente les résultats de génération de supercontinuum dans d'autres verres et gammes spectrales pour généraliser le concept de fibre mono-indice effilée. Des mesures sont effectuées dans des fibres chalcogénures, tellurites et en silice.

Table des matières

1. Introduction	89
2. Fibres effilées Te-As-Se	89
2.1. Généralités sur les verres Te-As-Se	89
2.2. Applications des fibres Te-As-Se.....	90
2.3. Génération de supercontinuum avec une source femtoseconde (cadence au kHz).....	91
2.3.1. Caractéristiques de la fibre TAS	91
2.3.2. Pompage avec une source femtoseconde MIR (cadence au kHz)	94
2.4. Génération de supercontinuum avec une source femtoseconde MIR (cadence jusqu'au MHz)	95
3. Fibres effilées TeO ₂ -ZnO-La ₂ O ₃	97
3.1. Généralités des verres TeO ₂ -ZnO-La ₂ O ₃	97
3.2. Matériels et méthodes	100
3.3. Résultats.....	100
3.3.1. Génération de supercontinuum	100
3.3.2. Montée en puissance moyenne	102
4. Fibres effilées SiO ₂	102
4.1. Propriétés de la fibre SiO ₂	103
4.2. Génération de supercontinuum	105
5. Conclusion.....	108

1. Introduction

Après avoir généré des élargissements spectraux à partir d'une fibre effilée mono-indice multimode (Chapitre III), nous avons mis en place des mesures avec des verres différents. Les travaux présentés dans ce chapitre ont pour but de tester notre système de fibre multimode effilée avec des verres plus ou moins non-linéaires que les verres GST. Le but est de tester les limites de la génération de SC et d'ainsi de généraliser le concept à d'autres verres et gammes spectrales.

Dans la première partie de ce chapitre, nous allons présenter nos travaux sur la génération de supercontinuum dans un verre, *a priori*, davantage non-linéaire que les verres GST. L'objectif est d'optimiser en termes de largeur et de puissance moyenne les spectres SC obtenus, et d'envisager des mesures de spectroscopie d'absorption. Dans un deuxième temps, nous allons présenter des résultats obtenus pour des verres moins non-linéaires que les verres GST, avec un verre de tellurite fabriqué au laboratoire et une fibre silice commerciale.

2. Fibres effilées Te-As-Se

2.1. Généralités sur les verres Te-As-Se

Comme renseigné dans le Chapitre I, les verres chalcogénures (ChG) présentent de nombreuses caractéristiques adéquates pour la génération de SC. Dans la littérature, plusieurs compositions de fibres ChG ont été utilisées, telles que As-S, As-Se ou encore Ge-As-Se. Parmi ces matériaux, les verres du système ternaire Te-As-Se (TAS) ont été largement étudiés en raison de leur excellente stabilité thermique pour le fibrage ou encore la large transmission dans l'infrarouge moyen [1–3]. Les fibres TAS possèdent de faibles pertes de transmission et spécialement sur toute la gamme 2-12 μm , ce qui convient pour l'utilisation d'une faible longueur de fibre. Ces fibres ont donc suscité un grand intérêt dans plusieurs domaines, comme la biochimie ou encore le diagnostic médical [4–7]. En effet, ces fibres ont été utilisées pour faire des mesures de spectroscopie d'absorption par ondes évanescentes notamment avec des sections effilées.

Les verres Te-As-Se ont été reportés pour la première fois dans les années 1970 [8]. Depuis, plusieurs études ont été menées d'une part pour optimiser la synthèse de ces verres et leur purification [1,9,10], et d'autre part pour comprendre leurs structures moléculaires [11,12]. Prenons l'exemple de la composition $\text{Te}_{20}\text{As}_{30}\text{Se}_{50}$ qui présente une bonne transmission dans l'infrarouge, comme l'illustre la Figure IV.1, avec une barrière multiphonon située vers 19 μm .

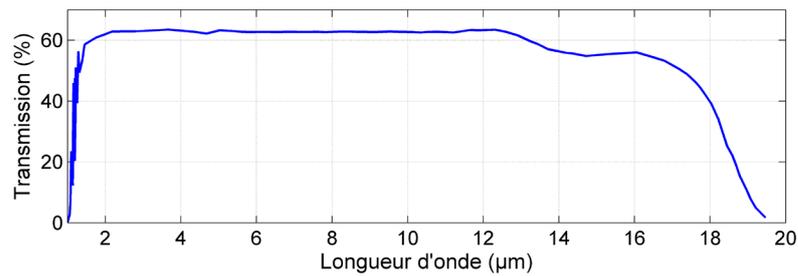


Figure IV.1 – Courbe de transmission d'un verre de $\text{Te}_{20}\text{As}_{30}\text{Se}_{50}$ de plusieurs mm d'épaisseur [13].

Conseil *et al.* [14] ont mesuré la variation de l'indice linéaire de réfraction pour plusieurs compositions du système ternaire Te-As-Se. Ces mesures effectuées par la méthode du minimum de déviation avec différents prismes ont une précision de 1.10^{-4} [14]. Avec la Figure IV.2, nous présentons ces variations d'indice pour la composition $\text{Te}_{20}\text{As}_{30}\text{Se}_{50}$ et $\text{Te}_{23}\text{As}_{30}\text{Se}_{47}$.

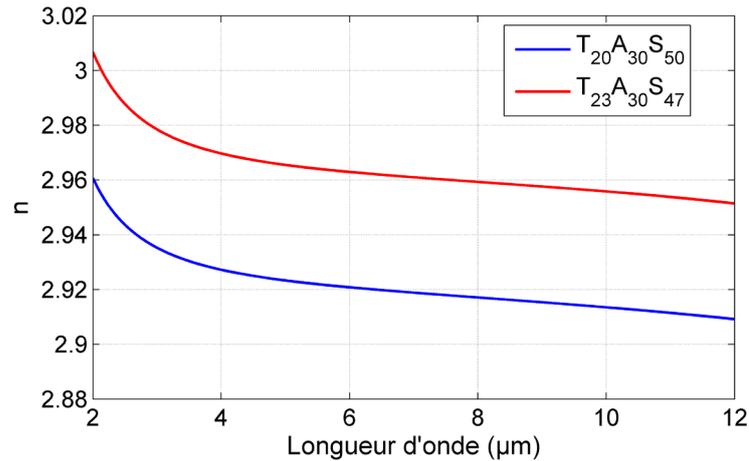


Figure IV.2 – Évolution de l'indice linéaire de réfraction en fonction de la longueur d'onde pour deux compositions de verres TAS d'après la Réf. [14].

En comparaison à la composition $\text{Ge}_{20}\text{Se}_{70}\text{Te}_{10}$ étudiée au Chapitre III, nous pouvons noter une différence au niveau de l'indice linéaire. En effet, à la longueur d'onde de $6 \mu\text{m}$, l'indice linéaire pour la GST est de $n=2,533$ contre $n=2,921$ ou $n=2,963$ pour les compositions de $\text{Te}_{20}\text{As}_{30}\text{Se}_{50}$ et $\text{Te}_{23}\text{As}_{30}\text{Se}_{47}$, respectivement. Ces compositions ont donc des indices linéaires plus élevés. En suivant l'évolution logique de n_2 en fonction de n , nous pouvons supposer que ces compositions ont des propriétés non-linéaires plus importantes.

2.2. Applications des fibres Te-As-Se

Dans la littérature, les fibres TAS ont été utilisées principalement pour la détection d'espèces chimiques, avec notamment la technique de spectroscopie par ondes évanescentes (FEWS) [6,7]. Un état de l'art sera effectué dans le Chapitre V concernant cette thématique.

Comme indiqué lors des précédents chapitres, les verres de chalcogénures permettent la génération de spectres SC très larges dans l'infrarouge moyen, recouvrant la région des principales absorptions moléculaires ($2\text{-}14 \mu\text{m}$). Les verres TAS possèdent des indices élevés, ainsi qu'une bonne transmission dans cette région spectrale. Cependant, dans la littérature, très peu d'études se sont intéressées à la génération de SC dans ce type de fibres optiques. Nous pouvons citer le travail reporté par Anashkina *et al.* [15] en 2017, qui présente des résultats obtenus par simulation numérique dans des fibres à saut d'indice Te-As-Se/As-S. Leur étude numérique utilise une pompe laser centrée à $2 \mu\text{m}$ et une durée d'impulsion de 150 fs .

Plus récemment, Wu *et al.* [16] ont reporté expérimentalement la génération de SC dans des fibres TAS. La Figure IV.3 illustre les spectres obtenus par ces auteurs, dans les deux configurations suivantes. Un premier spectre est obtenu avec une source femtoseconde (150 fs), centrée à $5 \mu\text{m}$ (cadence de 1 kHz) dans une fibre à saut d'indice $\text{Te}_{20}\text{As}_{40}\text{Se}_{40}/\text{Te}_{18}\text{As}_{40}\text{Se}_{42}$ avec un cœur de $63,5 \mu\text{m}$ pour une longueur de 15 cm . Le SC s'étendant de $2,1$ à $11,2 \mu\text{m}$ (Fig. IV.3 (a)). Dans une deuxième série d'expériences avec la même source, un spectre allant de $1,8$ à $13 \mu\text{m}$ est obtenu dans une fibre mono-indice de $\text{Te}_{20}\text{As}_{40}\text{Se}_{40}$ de $300 \mu\text{m}$ de diamètre et de 15 cm de longueur également (Fig. IV.3 (b)). Le SC obtenu dans la fibre mono-indice est plus large que celui obtenu dans une fibre plus optimisée au niveau de la dispersion (saut d'indice). Les auteurs expliquent cette différence par le fait que les pertes soient plus grandes ($5,8 \text{ dB/m}$) dans la fibre à saut d'indice que dans fibre mono-indice (2 dB/m). Nous pouvons également expliquer cette différence par un couplage beaucoup plus important dans le cas d'une fibre de $300 \mu\text{m}$ de diamètre que dans une fibre à saut d'indice. Ces résultats sont d'ailleurs en accord avec ceux présentés au Chapitre III, indiquant qu'une simple fibre mono-indice chalcogénure (sans partie effilée) permet déjà d'obtenir un spectre relativement large grâce à un bon couplage de la puissance.

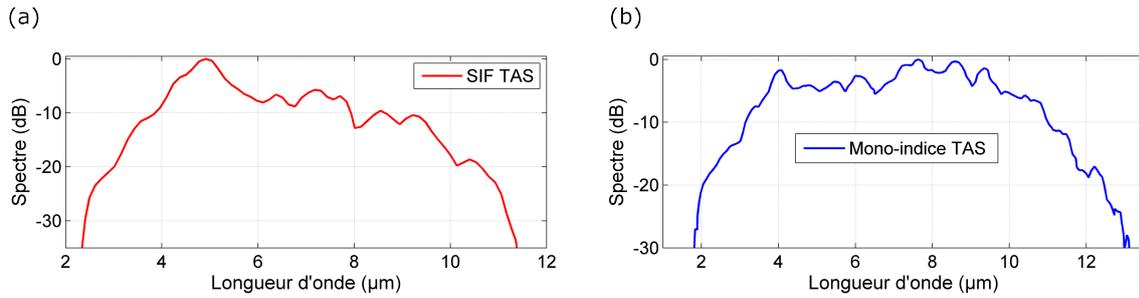


Figure IV.3 – (a) Spectre SC expérimental obtenu dans une fibre à saut d'indice TAS et pompée à 5 μm (1 kHz). (b) Spectre SC expérimental obtenu dans la fibre mono-indice TAS par la même source laser [16].

Les fibres Te-As-Se semblent intéressantes pour la génération d'effets non-linéaires dans l'infrarouge moyen. C'est dans ce cadre qu'une collaboration a pu être mise en place avec l'*Institut des Sciences Chimiques* de Rennes avec Dr. C. Boussard-Plédel et Dr. D. Le Coq pour nous fournir des fibres en $\text{Te}_{20}\text{As}_{30}\text{Se}_{50}$ (mono-indice), avec des diamètres externes de 150 μm . En effet, ce laboratoire de recherche possède une grande expertise sur la fabrication de ces fibres depuis plusieurs années [17–19].

2.3. Génération de supercontinuum avec une source femtoseconde (cadence au kHz)

2.3.1. Caractéristiques de la fibre TAS

D'une manière équivalente à la fibre Ge-Se-Te dans le Chapitre III, nous avons cherché à étudier les propriétés de dispersion chromatique d'une fibre Te-As-Se pour différents diamètres. La Figure IV.4 (a) présente les courbes de dispersion calculées pour des diamètres de 150 μm à 25 μm , à partir de la variation de l'indice linéaire de la composition $\text{Te}_{20}\text{As}_{30}\text{Se}_{50}$ (Fig. IV.2). La variation de la longueur d'onde de dispersion nulle (ZDW) en fonction du diamètre de la fibre est illustrée avec la Figure IV.4 (b). Nous notons que le ZDW se décale vers les courtes longueurs d'onde jusqu'à 6,47 μm pour un diamètre de 25 μm , alors que le ZDW du verre est situé vers 7,97 μm . Le ZDW se décale donc d'environ 8,7 THz entre le diamètre initial et de 25 μm .

Le mode fondamental guidé à la longueur d'onde de 7 μm est fortement confiné (> 99,9 %) grâce à la forte différence d'indice entre les deux milieux, que ce soit dans le diamètre de 150 μm ou de 25 μm . Ce confinement du mode est confirmé avec les faibles variations de l'aire effective avec la longueur d'onde (Fig. IV.6 (a)).

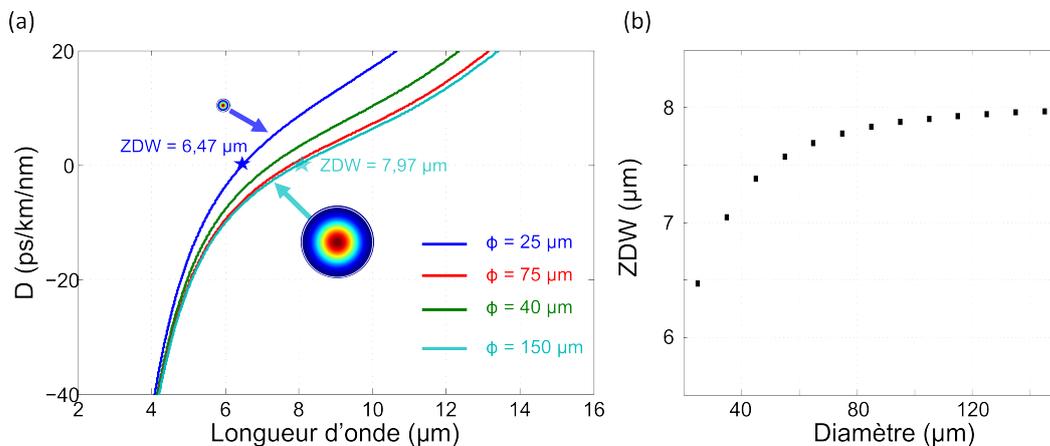


Figure IV.4 - (a) Profils de dispersion calculés du mode fondamental guidé pour un diamètre de fibre de $\phi = 25, 40, 75$ et 150 μm . La distribution spatiale du mode fondamental est également présentée

pour le diamètre de 150 μm et pour celui de 25 μm à 7 μm . (b) Évolution de la position spectrale du ZDW en fonction du diamètre de la fibre.

Pour calculer le coefficient non-linéaire γ pour le mode fondamental guidé, il nous faut une valeur d'indice non-linéaire n_2 pour la composition de TAS utilisée. Il n'y a cependant pas eu de mesures de la valeur de n_2 pour un verre TAS à notre connaissance. Pour estimer cette valeur, nous utilisons donc la règle de Miller. Cette règle est une relation semi-empirique permettant de prédire la non-linéarité d'un verre. Grâce à une relation entre la susceptibilité linéaire et non-linéaire qui a la forme suivante [20] :

$$\chi^{(3)} = \frac{n_2 n^2}{0,0395} = \alpha \left[\frac{(n^2 - 1)}{4\pi} \right]^4 \quad (IV.1)$$

avec $\chi^{(3)}$ la susceptibilité d'ordre 3 en esu, α est le coefficient de Miller pour les verres chalcogénures ($2,7 \times 10^{-10}$), n l'indice de réfraction linéaire et n_2 l'indice non-linéaire. Le calcul de n_2 peut être effectué de la manière suivante [20–22] :

$$n_2 = 4,27 \times 10^{-16} \frac{(n^2 - 1)^4}{n^2} \text{ cm}^2/\text{W} \quad (IV.2)$$

La Figure IV.5 présente la variation de l'indice non-linéaire en fonction de l'indice linéaire pour plusieurs verres chalcogénures. L'indice des verres TAS est situé vers 2,90, ce qui nous permet d'estimer une valeur de n_2 valant $1,7 \times 10^{-17} \text{ m}^2/\text{W}$ en suivant la règle de Miller. Cette valeur est cohérente par rapport à ce que nous pouvions attendre. En effet, la seule publication reportant des simulations numériques de SC dans une fibre TAS (Anashkina *et al.* [15]) utilise une valeur de n_2 de $2,2 \times 10^{-17} \text{ m}^2/\text{W}$, en prenant une valeur mesurée dans une composition d' As_2Se_3 . Cependant, nous trouvons plusieurs études avec des mesures ou des estimations du n_2 d'un verre As_2Se_3 entre $1,1 \times 10^{-17} \text{ m}^2/\text{W}$ et $2,2 \times 10^{-17} \text{ m}^2/\text{W}$ [15,21,23,24]. Ainsi, un verre TAS a un indice de réfraction linéaire plus élevé qu'un verre d' As_2Se_3 , il est donc raisonnable de penser que sa non-linéarité va être plus élevée. La relation de Miller n'étant pas linéaire, l'indice n_2 croit plus vite pour des valeurs élevées d'indice n . La mise en place d'une expérience de caractérisation du n_2 , par la technique du Z-scan [21,25] pour la composition $\text{Te}_{20}\text{As}_{30}\text{Se}_{50}$, permettrait d'affiner cette valeur et ainsi compléter cette étude.

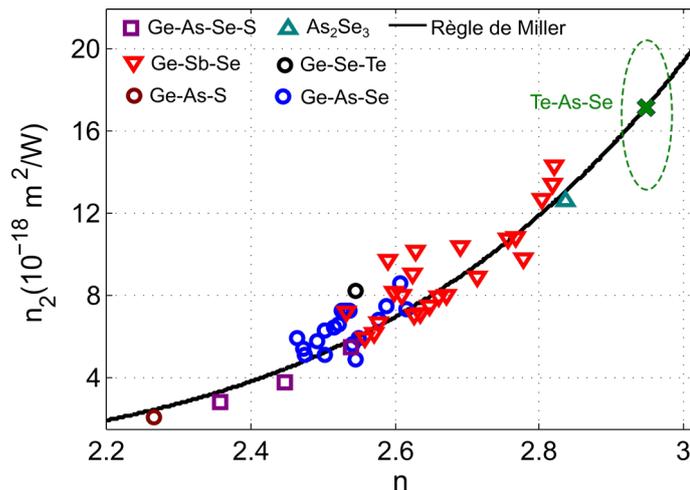


Figure IV.5 – Variation de l'indice de réfraction non-linéaire n_2 en fonction de l'indice linéaire n , pour plusieurs compositions de chalcogénures, dans différents systèmes vitreux. Les données proviennent de la Réf. [21]. L'indice non-linéaire pour la composition Ge-Se-Te est également ajouté. La courbe pour la règle de Miller, en suivant l'équation (IV.2), est également présentée. La zone où l'indice n_2 d'un verre TAS pourrait se situer est présentée en vert (en prenant +/- 20 % d'écart par rapport à la règle de Miller).

Le calcul du coefficient non-linéaire γ pour le mode fondamental guidé est donc effectué en prenant en compte un indice non-linéaire $n_2=1,7 \times 10^{-17} \text{ m}^2/\text{W}$. L'évolution de γ avec la longueur d'onde suit la même logique que pour le verre GST du Chapitre III. La non-linéarité est 35 fois supérieure dans le waist de diamètre de $25 \mu\text{m}$ en comparaison au diamètre initial de $150 \mu\text{m}$.

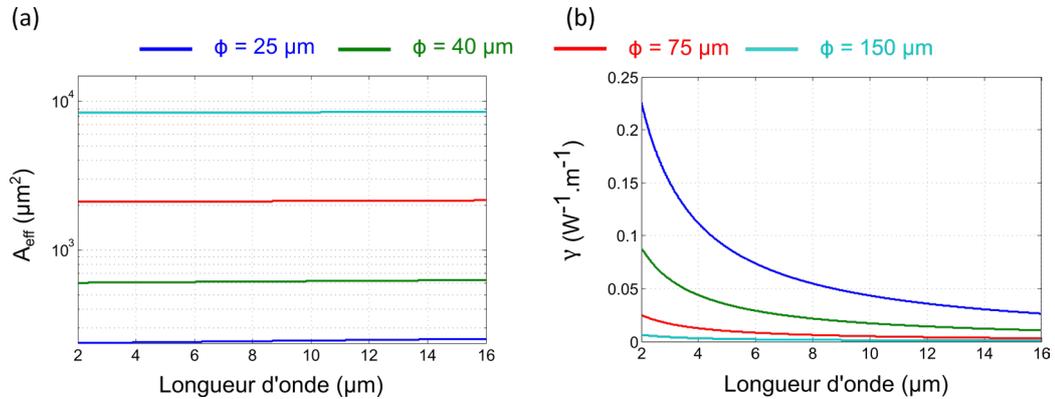


Figure IV.6 - (a) Courbes calculées de l'aire effective du mode fondamental guidé pour un diamètre de fibre de 25, 40, 75 et $150 \mu\text{m}$. (b) Evolution du paramètre γ en fonction de ces mêmes diamètres.

Les pertes optiques de la fibre TAS sont illustrées avec la Figure IV.7. Nous observons un pic d'absorption à $4,57 \mu\text{m}$ lié aux liaisons Se-H, ainsi qu'une absorption multiphonon située vers $11 \mu\text{m}$. Le fond continu des pertes est faible pour cette composition. En effet, il est en dessous de $0,5 \text{ dB/m}$ (entre 5 et $9 \mu\text{m}$), avec un minimum de $0,15 \text{ dB/m}$ à $7 \mu\text{m}$. Les pertes sont donc légèrement meilleures que celles de la fibre Ge-Se-Te (fond continu de l'ordre du dB/m (voir Chapitre III et les Réfs. [26,27])). Selon les longueurs de fibre requises dans nos expériences, ces faibles pertes pourront être bénéfiques pour les spectres SC générés dans l'infrarouge moyen.

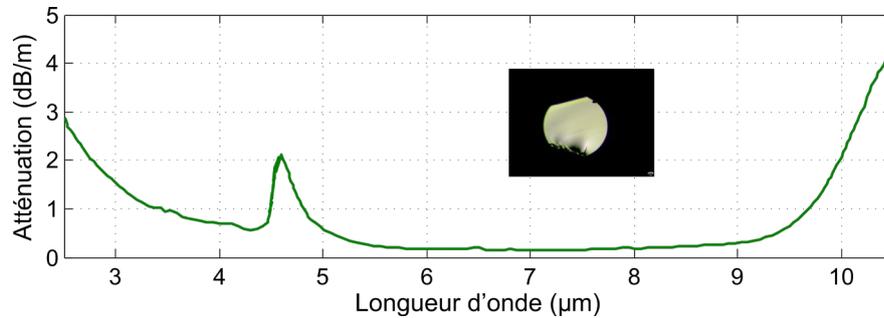


Figure IV.7 - Pertes optiques de la fibre Te-As-Se. Mesures par la technique de cut-back. Une photographie microscope de la fibre est également présentée.

Le spectre de la réponse Raman pour la composition $\text{Te}_{20}\text{As}_{30}\text{Se}_{50}$ est obtenu par Delaizir *et al.* [12], sur un échantillon massif de verre. Nous modélisons la fonction de la réponse Raman avec les coefficients présentés dans le Tableau IV.1, comme décrit au Chapitre II. La courbe expérimentale, ainsi que la courbe analytique sont illustrées avec la Figure IV.8 [28].

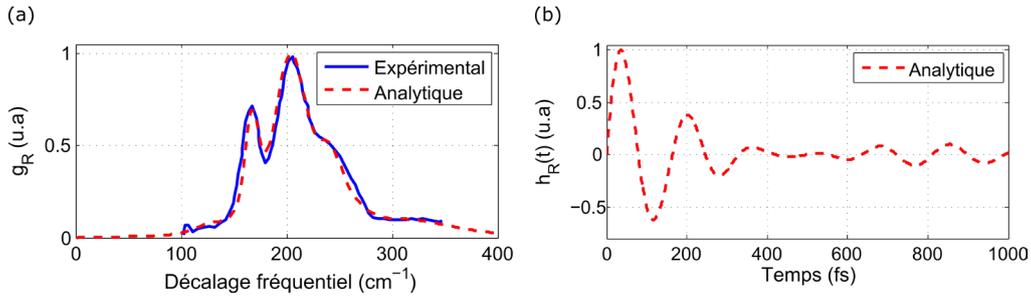


Figure IV. 8 – Réponse Raman de la composition $\text{Te}_{20}\text{As}_{30}\text{Se}_{50}$ (a) en décalage fréquentiel avec la comparaison expérimentale et (b) dans le domaine temporel [12].

Tableau IV.1 - Valeurs utilisées pour la méthode d'élargissement intermédiaire de la composition $\text{Te}_{20}\text{As}_{30}\text{Se}_{50}$ d'après [12].

Numéro du mode i	Position (cm^{-1})	Intensité (u.a)	Gaussienne FWHM (cm^{-1})	Lorentzienne FWHM (cm^{-1})
1	127	2	40,13	2,03
2	167	17	13,01	9,00
3	203	55	30,06	17,02
4	222	15	37,83	36,05
5	241	12	24,11	12,09
6	258	7	34,00	25,07
7	321	16	29,91	90,00

2.3.2. Pompage avec une source femtoseconde MIR (cadence au kHz)

Le montage expérimental est celui disponible au *Toyota Technological Institute* de Nagoya présenté au Chapitre II, et utilisé pour pomper les fibres GST au Chapitre III. Dans le cas des fibres TAS, le ZDW se situant plus loin dans l'infrarouge en comparaison aux fibres GST, la longueur d'onde de pompe a été fixée à $7 \mu\text{m}$. L'énergie disponible à cette longueur d'onde est de $3,52 \mu\text{J}$. Pour rappel, l'énergie disponible à $6 \mu\text{m}$ pour pomper les GST était de $4 \mu\text{J}$. Les premiers tests ont été effectués dans des fibres non effilées avec un diamètre externe de $150 \mu\text{m}$. La Figure IV.9 illustre les meilleurs résultats obtenus dans cette configuration pour trois puissances crêtes différentes. La puissance crête maximale couplée à la longueur d'onde de $7 \mu\text{m}$ est de $2,18 \text{ MW}$, soit une valeur équivalente à celle couplée dans la fibre non effilée Ge-Se-Te ($2,12 \text{ MW}$ à $6 \mu\text{m}$). Cette puissance est 15 fois supérieure au seuil d'autofocalisation pour la fibre TAS ($P_{\text{cr}} \sim 146 \text{ kW}$ ($n_0 = 2,919$)). L'élargissement spectral obtenu à pleine puissance est déjà conséquent, avec un spectre atteignant $14 \mu\text{m}$ dans l'infrarouge. Ce spectre est cohérent avec celui reporté par Wu *et al.* [16] dans une mono-indice TAS (voir Fig. IV.3) pour un pompage avec une cadence de 1 kHz .

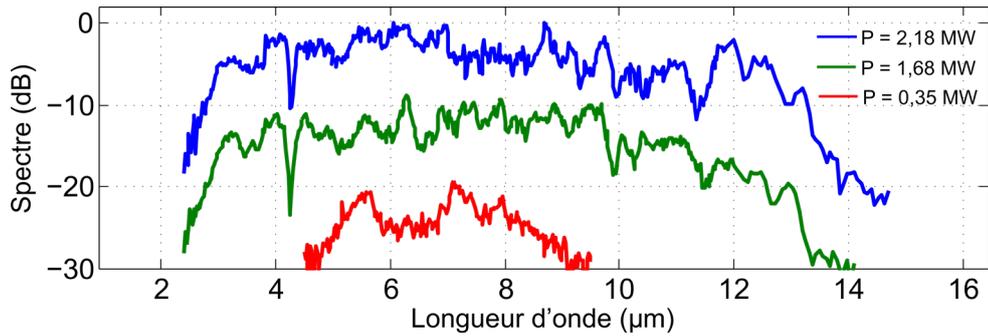


Figure IV.9 – Spectres SC mesurés expérimentalement pour une fibre Te-As-Se non effilée de 150 µm de diamètre externe, pour trois puissances crêtes différentes ($P_0 = 2,18$ MW, 1,68 MW et 0,35 MW).

Par la suite, pour exploiter au mieux la non-linéarité des fibres TAS, nous avons mis en forme plusieurs fibres effilées avec des diamètres de waist allant de 15 à 40 µm. Plusieurs essais ont été tentés, mais nous n'avons pas obtenus de spectres SC significatifs suite à des endommagements de nos fibres (séjour limité en temps au Japon).

Cependant, les résultats dans la fibre non effilée sont encourageants avec un spectre couvrant la zone spectrale de 2 à 14 µm. L'utilisation de la source femtoseconde, avec une cadence plus élevée et une puissance crête moins importante, pourrait être une alternative pour tester nos fibres effilées TAS dans un régime de propagation non-linéaire.

2.4. Génération de supercontinuum avec une source femtoseconde MIR (cadence jusqu'au MHz)

Le montage expérimental est identique à celui utilisé dans le Chapitre III. Des tests préliminaires ont été effectués à la longueur d'onde de 6 µm, avec une cadence de répétition de 100 kHz. La Figure IV.10 présente les résultats obtenus dans des fibres effilées de 15, 20 et 25 µm de diamètre de waist. La puissance moyenne en sortie de fibre est de l'ordre de 5 mW, représentant une puissance crête couplée de l'ordre de 195 kW. L'élargissement spectral le plus important s'étend de 2 à 14 µm dans la fibre effilée, avec un diamètre de 25 µm de waist. Nous pourrions nous attendre à obtenir un spectre plus large dans l'infrarouge moyen avec des diamètres de waist plus petits (< 20 µm). Cependant, ce n'est pas ce que nous avons pu obtenir, peut-être dû à la qualité du profil de la fibre effilée, comme discuté dans le Chapitre III. La montée en puissance moyenne en pompant à 6 µm n'a pas été possible à cause d'endommagements importants. Pour la suite des expériences, la longueur d'onde de pompe a été décalée à 7 µm. L'énergie disponible à cette longueur d'onde est de 0,38 µJ, soit 1,5 MW crête. Cette longueur d'onde permet également de pomper nos fibres près du ZDW (7,97 µm pour un diamètre 150 µm).

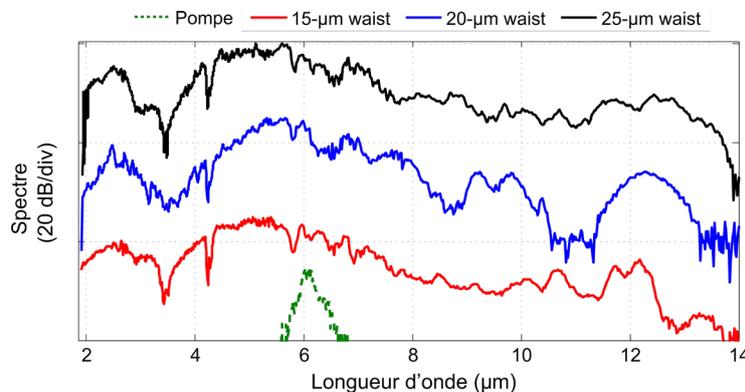


Figure IV.10 – Spectres SC mesurés expérimentalement en pompant des fibres effilées de diamètres de waist de 15, 20 et 25 µm à 6 µm.

Dans le cas d'un pompage à 7 μm , nous avons pu obtenir les résultats présentés en Figure IV.11. Pour la fibre non effilée, le spectre s'étend de 3 μm à 12 μm , sur 20 dB de dynamique. L'élargissement spectral le plus optimal dans l'infrarouge moyen est obtenu dans la fibre effilée de 25 μm de diamètre de waist, avec une largeur spectrale allant de 2 μm à 16 μm . Les fibres TAS sont multimodes à la longueur d'onde de pompe de 7 μm . Cependant, nous pouvons supposer que le SC, obtenu dans la fibre de 25 μm de waist, est supporté principalement par le mode fondamental guidé. En effet, le nombre de modes LP_{0m} passe de 59 dans un diamètre de 150 μm à 10 dans un diamètre de 25 μm . Il y a également une amélioration du spectre en comparaison au diamètre de waist de 40 μm . Ce phénomène peut s'expliquer par un meilleur confinement de la lumière et une non-linéarité (paramètre γ) plus élevée. Pour un diamètre de 40 μm , le comportement est également légèrement plus multimode (16 modes LP_{0m} à 7 μm).

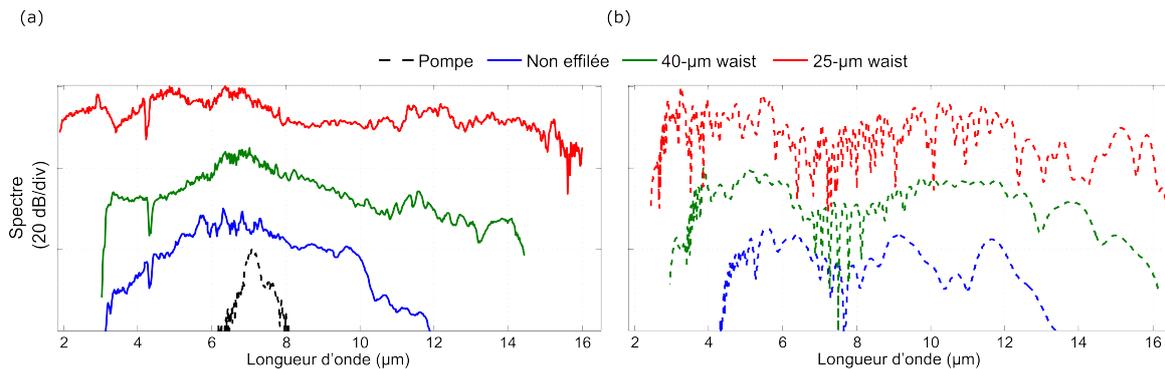


Figure IV.11 – (a) Spectres SC mesurés expérimentalement en pompant à 7 μm dans une fibre TAS non effilée et dans des fibres effilées de 40 et 25 μm de diamètre de waist. (b) Résultats des simulations numériques correspondants. Les puissances crêtes utilisées proviennent des puissances moyennes mesurées en sortie de fibre.

Les simulations numériques de génération de SC dans les fibres TAS, avec des diamètres de waist similaires à ceux des fibres testées sont présentées dans la Figure IV.11 (b). Les élargissements obtenus numériquement sont en bon accord avec les spectres expérimentaux pour les trois configurations. Les différences dans les spectres peuvent s'expliquer de plusieurs façons. Le couplage dans le mode fondamental guidé n'est probablement pas optimal. En effet, nous pouvons voir, dans le cas d'un waist de 40 μm ou de 25 μm , que dans le spectre numérique, au niveau de la longueur d'onde de pompe l'énergie est déplétée (signal plus bas de 12 dB comparé au niveau maximal sur le spectre). Au contraire, il reste de l'énergie au niveau de la pompe laser pour les spectres expérimentaux. Il reste donc de la puissance à 7 μm qui n'est pas couplée dans le mode fondamental guidé. D'une autre façon, nous pouvons aussi imaginer que l'indice non-linéaire, estimé avec la règle de Miller ($n_2=1,7 \times 10^{-17} \text{ m}^2/\text{W}$), est plus élevé que le véritable indice pour cette composition de verre.

D'une façon analogue à la composition Ge-Se-Te, nous avons tenté d'augmenter la cadence de répétition du laser pour augmenter la puissance moyenne en sortie de fibre. Dans le cas de la fibre non effilée, nous avons pu obtenir, en sortie de fibre, une puissance moyenne de l'ordre de la quarantaine de mW, pour une cadence de 250 kHz. Pour les fibres effilées, l'augmentation de la puissance moyenne n'a pu être possible que jusqu'à ~ 20 mW au maximum (cadence de 250 kHz). Les fibres ont été endommagées pour des cadences supérieures au niveau de la face d'entrée. La nature des dommages est principalement due à l'accumulation thermique. La composition des verres chalcogénures est connue pour avoir un impact sur le seuil d'endommagement du laser, de même que les paramètres de l'impulsion (durée d'impulsion, cadence de répétition) déterminent les mécanismes d'endommagement [29,30]. Une étude complète sur le seuil d'endommagement laser (laser damage threshold (LDT)) permettrait de quantifier ces observations expérimentales et de le calculer de la manière suivante [29] :

$$LDT = \frac{P_{cr}}{R\tau\pi(d/2)^2} \quad (IV.3)$$

avec P_{cr} la puissance moyenne dite critique à partir de laquelle on note une modification de l'état de surface, R la cadence de répétition, τ la durée d'impulsion et d le diamètre à $1/e^2$ du laser focalisé sur le verre.

Une étude récente a reporté des valeurs de densité d'énergie laser menant à l'endommagement laser pour des compositions $Te_xAs_{40}Se_{60-x}$, avec des impulsions fs à $3 \mu\text{m}$ (à 1 kHz) [31]. Les valeurs reportées passent de 29,45 à 21,93 mJ/cm^2 avec l'augmentation de Te (de 0 à 50 %). Bien que ce soient des compositions légèrement différentes que celle utilisée dans nos expériences, nous pouvons supposer que la valeur pour la composition $Te_{20}As_{30}Se_{50}$ soit du même ordre de grandeur. Dans notre configuration, en fonction de la lentille utilisée, la densité d'énergie du laser, à une cadence de 250 kHz, est comprise entre 5 et 20 mJ/cm^2 . Il est donc possible que ce soit une des raisons pour lesquelles nous avons rencontré à plusieurs reprises des problèmes d'endommagement avec cette composition, ce qui n'était pas le cas avec les fibres GST. De plus, les valeurs sont obtenues pour un régime au kHz (à priori pas d'effet thermique), ce qui n'est probablement plus le cas en régime MHz. Avec une chaîne laser équivalente travaillant au kHz (source laser du TTI (voir 2.3.2.)), la densité d'énergie du laser est également de l'ordre de 20 mJ/cm^2 .

La génération de SC dans les fibres TAS semble plus optimale en terme de largeur spectrale que pour des fibres GST, grâce à un indice linéaire plus élevé ($n_{GST}=2,494$ et $n_{TAS}=2,921$ à $6 \mu\text{m}$) et donc une non-linéarité plus élevée ($n_{2(GST)}=8,2 \times 10^{-18} \text{ m}^2/\text{W}$ et $n_{2(TAS)} \sim 1,7 \times 10^{-17} \text{ m}^2/\text{W}$). Cependant, d'après les résultats expérimentaux, cette composition ne semble pas idéale pour obtenir des spectres avec une forte puissance moyenne en sortie de fibre. La tenue au flux de la fibre optique pourrait être améliorée par des techniques de post-traitement, comme le dépôt de revêtements antireflets, l'utilisation de connecteur de terminaison appelé « end-cap », ou un façonnage plus complexe de la face d'entrée avec une structure « moth eye » par exemple [32]. Malgré tout, avec nos fibres actuelles et dans cette configuration, il est possible d'entreprendre des premiers tests de spectroscopie dans l'infrarouge moyen, qui sont présentés dans la suite de ce manuscrit au Chapitre V.

3. Fibres effilées TeO_2 -ZnO- La_2O_3

3.1. Généralités des verres TeO_2 -ZnO- La_2O_3

Depuis les années 1950, les verres à base d'oxyde de tellure TeO_2 (verres tellurites) sont beaucoup étudiés notamment pour la diversité des compositions, ainsi que pour leurs propriétés physico-chimiques [33,34]. Ces verres possèdent généralement des indices de réfraction linéaire assez élevés (autour de 2), et possèdent des propriétés non-linéaires importantes comparées aux silicates. En fonction de la composition chimique du verre, des valeurs de n_2 sont reportées dans la littérature entre $1,7 \times 10^{-19} \text{ m}^2/\text{W}$ et $5,9 \times 10^{-19} \text{ m}^2/\text{W}$ à la longueur d'onde de $1,55 \mu\text{m}$ [35–38]. Les verres tellurites présentent également de forts gains Raman [39–41]. Les tellurites sont donc des candidats potentiels pour des applications en optique non-linéaire dans la région spectrale 1-5 μm [33,42,43]. De nombreuses études ont reporté plusieurs compositions de verre de tellurite, avec notamment les verres TZN (TeO_2 -ZnO- Na_2O) [44,45] ou TNb (TeO_2 - Nb_2O_5) [39,46,47] par exemple. Récemment, le système ternaire TZL (TeO_2 -ZnO- La_2O_3) a été étudié pour obtenir des verres avec une meilleure transmission, et des températures de transition vitreuse entre 325 °C et 450 °C [48]. La fibre optique utilisée dans la suite de ce chapitre est fabriquée à partir d'un verre du système TZL.

La fabrication d'un verre de ce système est réalisée par la méthode de fusion-trempe (voir Fig. IV.12). Les précurseurs sont de type « oxyde » et sont les suivants : TeO_2 , ZnO et La_2O_3 . Après la pesée des différents éléments en proportions stœchiométriques, ils sont introduits dans un creuset en platine et placés dans un four à 850° C pendant 1 heure. Après une agitation manuelle du creuset toutes les 15 minutes, le mélange en surfusion est coulé dans un moule préchauffé à la température $T_g - 45^\circ \text{C}$, où il

subit donc une trempe thermique. Pour relaxer les différentes contraintes mécaniques induites par la trempe, un recuit est effectué à $T_g - 10\text{ °C}$ pendant 8 heures. Une préforme de verre est ainsi obtenue et peut être ensuite étirée sous forme de fibre optique [48–50]. L'ensemble du processus de fabrication se déroule dans une atmosphère contrôlée d'air sec, où la concentration en H_2O est maintenue en dessous de 0,5 ppm (vol.).

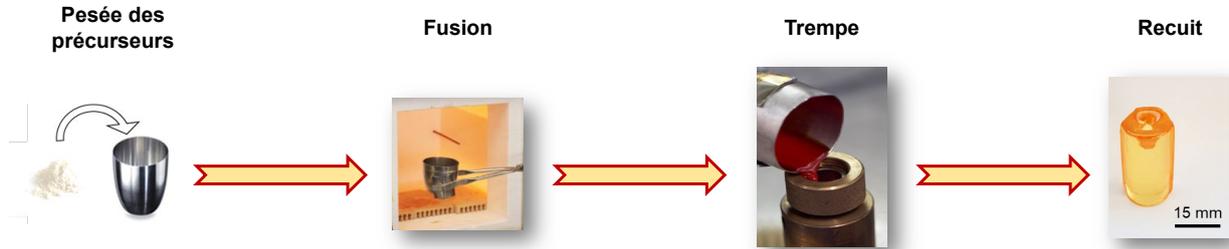


Figure IV.12 – Principe de la méthode fusion-trempe utilisée pour la fabrication d'un verre de tellurite (d'après la Réf. [50]).

Le verre utilisé pour la suite de ces expériences a comme composition chimique : $70\text{TeO}_2\text{-}25\text{ZnO}\text{-}4.25\text{La}_2\text{O}_3\text{-}0.75\text{La}_2\text{F}_6$ que l'on appellera TZL. L'ajout de La_2F_6 est effectué pour purifier le verre [51]. Il permet de réduire la concentration en groupement hydroxyles (OH), responsables d'une forte absorption entre 3 et 3,5 μm , et ainsi étendre la transparence des fibres optiques jusqu'à 4,5 μm contre 2,8 μm sans LaF_3 [51]. La transmission du verre recouvre la gamme spectrale 0,37 – 6,20 μm , comme présentée sur la Figure IV.13 avec une mesure effectuée sur un verre massif de 4,30 mm d'épaisseur [52].

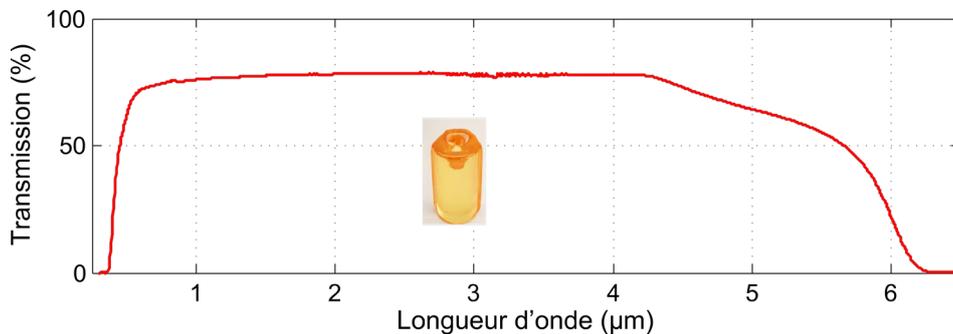


Figure IV.13 – Courbe de transmission d'un verre massif de $\text{TeO}_2\text{-ZnO-La}_2\text{O}_3$ (4,30 mm d'épaisseur) [52].

La variation de l'indice de réfraction linéaire a été mesurée et reportée par Evrard *et al.* [52], à l'aide d'un ellipsomètre de J.A. WOOLLAM sur la gamme 0,5 – 4,0 μm . Les coefficients de Sellmeier obtenus sont reportés dans le Tableau IV.2. L'indice évolue entre 2 et 1,95 dans la gamme de longueur d'onde entre 2 et 4 μm . La longueur d'onde de dispersion nulle pour le matériau est située vers 2,31 μm .

Tableau IV.2 – Coefficients de Sellmeier pour la composition de TZL [52].

Composition	A_0	A_1	λ_1	A_2	λ_2
TZL	0,67321	3,23196	0,16139	0,63972	9,97791

Par la suite, le coefficient de gain Raman pour cette composition a été déterminé à partir du spectre de diffusion Raman spontanée, mesuré à la longueur d'onde de 532 nm (voir Fig. IV.14). Cette caractérisation est d'un grand intérêt pour évaluer la réponse optique non-linéaire de ce verre [53]. D'une manière équivalente aux autres verres, nous modélisons la fonction réponse Raman avec les coefficients

présentés avec le Tableau IV.3. Le maximum de gain Raman relevé à 532 nm est 45 fois supérieur à celui de la silice ($g_{\text{Raman}}(\text{SiO}_2)(532 \text{ nm}) = 1,86 \cdot 10^{-13} \text{ m/W}$).

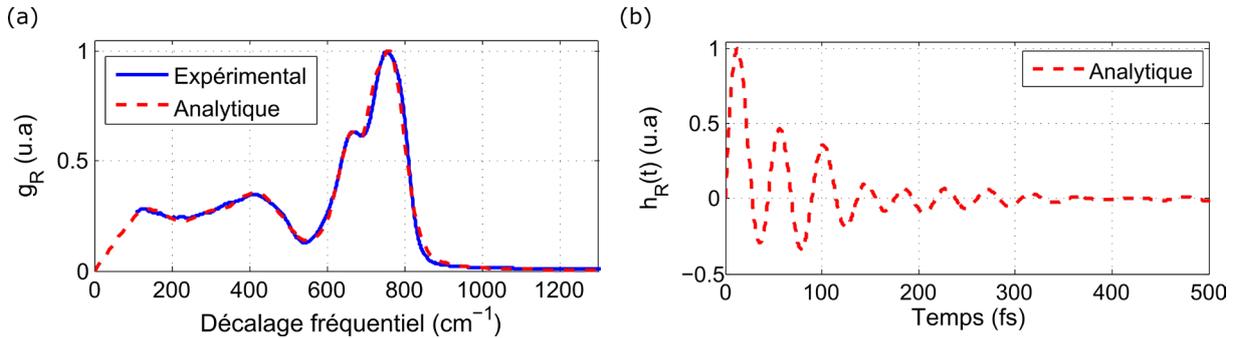


Figure IV.14 – Réponse Raman de la composition TZL (a) en décalage fréquentiel avec la comparaison expérimentale et (b) dans le domaine temporel [53].

Tableau IV.3 – Valeurs utilisées pour la méthode d'élargissement intermédiaire de la composition TZL.

Numéro du mode i	Position (cm^{-1})	Intensité (u.a)	Gaussienne FWHM (cm^{-1})	Lorentzienne FWHM (cm^{-1})
1	134,39	50,52	166,32	66,52
2	285,23	18,80	114,24	45,69
3	419,46	58,03	173,02	53,21
4	597,42	5,04	71,29	28,51
5	660,00	40,89	73,97	25,59
6	716,83	10,36	38,68	15,47
7	762,66	86,49	85,23	30,49

Concernant les pertes optiques de la fibre mono-indice, l'absorption multiphonon apparaît vers $4 \mu\text{m}$ (voir Fig. IV.15). Le fond continu est environ de $0,6 \text{ dB/m}$ entre $1,8 \mu\text{m}$ et $2,8 \mu\text{m}$, toujours en dessous de 8 dB/m à $4 \mu\text{m}$.

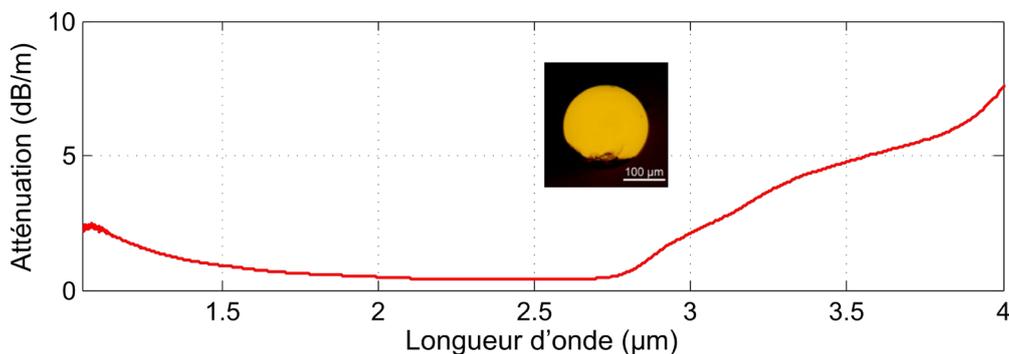


Figure IV.15 - Pertes optiques de la fibre monoindice $\text{TeO}_2\text{-ZnO-La}_2\text{O}_3$. Mesures par la technique de cut-back. Une photographie microscope de la section de la fibre est présentée.

Les valeurs de gain Raman élevées en comparaison de la silice ainsi que les pertes relativement faibles, font des fibres TZL des candidates idéales pour la conversion de fréquence large bande, dans une zone spectrale couvrant la fin du visible jusqu'au début de l'infrarouge moyen. Dans la littérature,

une étude récente a reporté la génération de SC dans une fibre optique de cette composition vitreuse [53]. L'impulsion était centrée à 1030 nm, avec une puissance crête variable entre 11 kW et 6,1 MW, en étant injectée dans une fibre multimode rectangulaire de 33 cm de long. Le spectre SC obtenu pour la puissance crête la plus importante s'étend de 700 à 1650 nm. Sa dynamique est celle d'un pompage en dispersion normale.

3.2. Matériels et méthodes

Nous avons pu fabriquer des fibres effilées présentant plusieurs diamètres de waist, entre 25 et 40 μm à partir de fibres monoindices de diamètre externe 160 μm . Plusieurs essais préliminaires de génération de SC ont été effectués en particulier avec des diamètres de waist de 25 μm . Cependant, nous avons noté plusieurs dommages irréversibles dans la partie la plus fine de la fibre, notamment lors d'un couplage important de la puissance. Pour la suite de cette étude, nous avons opté pour un diamètre de waist de 40 μm .

La fibre non effilée de 160 μm présente les mêmes propriétés de dispersion que le verre massif avec un ZDW situé vers 2,31 μm (voir Fig. IV.16). A l'inverse, la fibre effilée de 40 μm de waist, ce ZDW est décalé jusqu'à 2,29 μm . Le décalage est de 1,13 THz. Pour la suite des expériences, la longueur d'onde de pompe est fixée à 2,5 μm . Cette longueur d'onde nous permet de pomper la fibre proche du ZDW dans le régime de dispersion anormale, favorisant ainsi la dynamique solitonique, mais également de bénéficier d'une énergie disponible importante ($\sim 3 \mu\text{J}$).

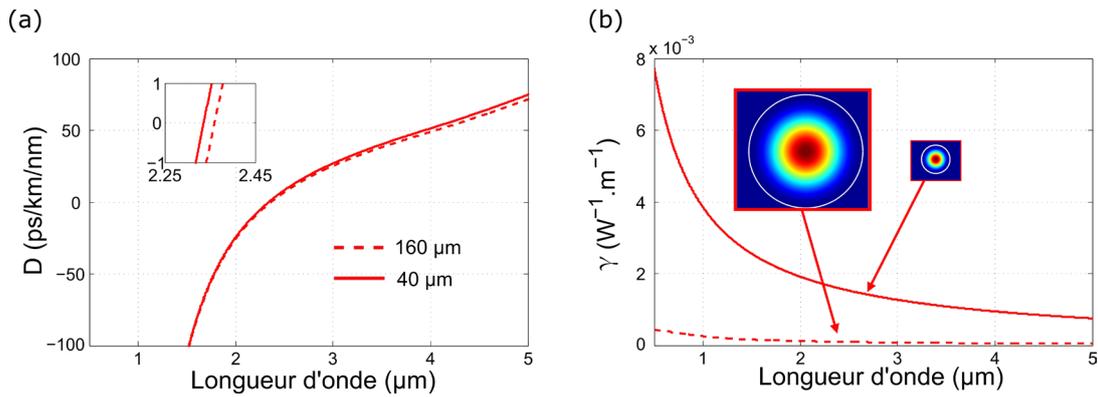


Figure IV.16 – (a) Courbes de dispersion D calculées du mode fondamental en fonction de la longueur d'onde pour un diamètre de 40 ou 160 μm . (b) Évolutions calculées du coefficient non-linéaire γ en fonction de la longueur d'onde pour ces mêmes diamètres. La distribution spatiale du mode fondamental à la longueur d'onde de 2,5 μm est également illustrée.

Pour cette longueur d'onde, la différence d'indice verre/air permet au mode fondamental d'être toujours confiné avec $> 99,99 \%$ dans la fibre, que ce soit dans le diamètre de 160 μm ou 40 μm . Le comportement de notre fibre est toujours fortement multimode, avec un nombre de modes LP_{0m} passant de 109 à 27 entre les deux diamètres. Le coefficient non-linéaire est considérablement plus élevé dans la région du waist et atteint un niveau 16 fois plus élevé que dans le diamètre initial. Concernant le seuil d'autofocalisation, il vaut $P_{\text{crit}} = 1,24 \text{ MW}$ à la longueur d'onde de pompe, en prenant $n_0 = 1,969$ et $n_2 = 3,8 \cdot 10^{-19} \text{ m}^2 \cdot \text{W}^{-1}$ [54]. Cette puissance critique est plus élevée que dans le cas des deux verres chalcogénures présentés auparavant ($P_{\text{crit}} = 0,26 \text{ MW}$ pour la GST et $P_{\text{crit}} = 0,11 \text{ MW}$ pour la TAS).

3.3. Résultats

3.3.1. Génération de supercontinuum

Le montage expérimental est le même que pour les études précédentes. Cependant, cette fois le module DFG n'est pas utilisé. Pour la longueur d'onde de 2,5 μm , nous utilisons le faisceau laser idler (entre 2,06 et 4,5 μm). Nous avons utilisé différents filtres pour limiter le niveau d'énergie ($< 1 \mu\text{J}$), afin d'éviter des dommages irréversibles dans nos fibres. Dans cette série d'expériences, la cadence de

répétition est fixée à 10 kHz, permettant une puissance moyenne de l'ordre de 6 mW en sortie de fibre. La Figure IV.17 (a-b) présente les résultats expérimentaux et numériques, dans le cas d'une fibre non effilée de 160 μm de diamètre externe. La non-linéarité de ce verre est suffisante pour générer un SC, s'étendant de 1 à 4 μm pour la puissance crête couplée la plus élevée de 2,90 MW (environ deux fois le seuil d'autofocalisation estimé). D'après les simulations, l'élargissement spectral est principalement mené par la dynamique solitonique et la génération d'ondes dispersives, par accord de phase en dessous du ZDW.

Une fois de plus, nous confirmons que l'utilisation d'une fibre effilée améliore la largeur du SC, ainsi que la planéité du spectre, même à des puissances crêtes plus faibles comme le montre les Figures IV.17 (a-c). Le SC généré dans le cas de la fibre effilée s'étend de 0,6 μm à 4,8 μm . En sortie de la fibre effilée, nous avons mesuré près de 77 % de la puissance mesurée en sortie de fibre non effilée et ce pour toutes les puissances crêtes testées (2,9 MW, 1,9 MW et 0,5 MW). Les valeurs de puissances crêtes couplées correspondantes de 2,29, 1,46 et 0,38 MW sont utilisées pour les simulations numériques illustrées en Figure IV.17 (d). Les simulations numériques sont en accord avec nos résultats expérimentaux, tout en présentant un écart aux courtes longueurs d'onde analogue à celui relevé pour les autres verres. Contrairement aux résultats présentés au Chapitre III obtenus dans une fibre GST, la transmission totale de la puissance crête de la fibre effilée TZL est constante. Cependant, elle est plus faible pour la puissance crête la plus basse (en dessous du seuil d'autofocalisation), ce qui indique une moins bonne excitation du mode fondamental. Au vu du nombre de modes LP_{0m} de la fibre TZL, le comportement est bien plus multimodal que dans le cas de la fibre GST (Chapitre III), réduisant ainsi le filtrage modal possible au niveau du waist.

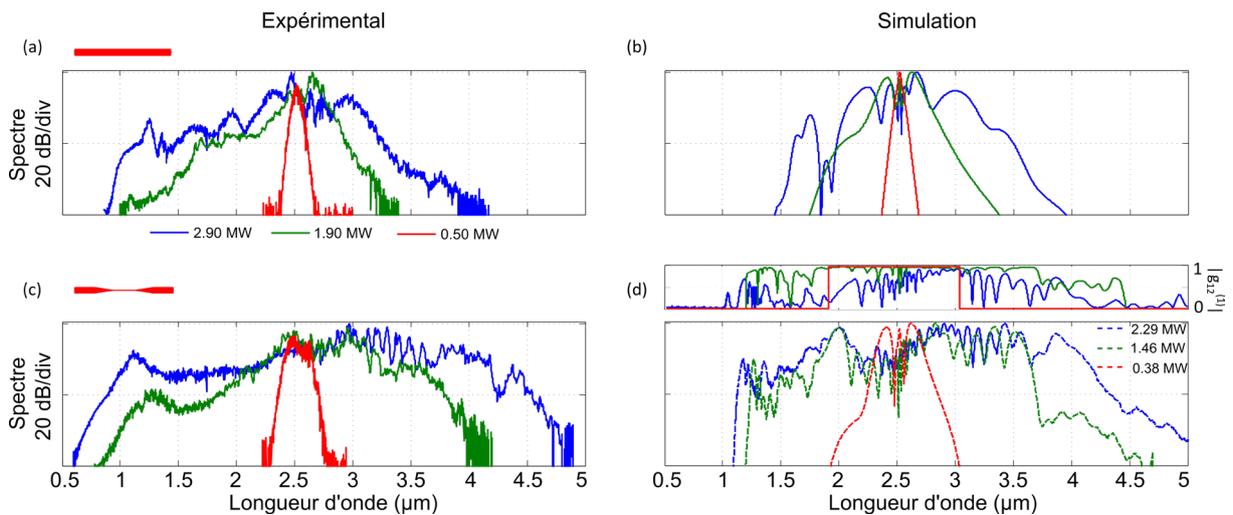


Figure IV.17 - Spectres SC obtenus dans une fibre mono-indice TZL (a-b) non effilée et (c-d) avec une section effilée de 40 μm de diamètre pour différentes puissances crêtes. Panneaux de gauche : Mesures expérimentales. Panneaux de droite : Résultats numériques, correspondant à la simulation numérique sur 200 spectres. Le degré de cohérence du premier ordre g_{12} est également représenté en (d) pour la fibre effilée.

Contrairement au cas des verres chalcogénures, l'augmentation de la puissance crête dégrade significativement la cohérence spectrale du SC, en particulier dès que l'on approche du seuil d'autofocalisation. En effet, le nombre de solitons en entrée est de $N > 10$, et la pompe est dans le régime de dispersion anormale. Pour donner un ordre de grandeur, pour le diamètre de 160 μm , la valeur N est d'environ 11 pour une puissance crête $P_0 = 2,28$ MW, mais dépasse 30 pour un diamètre de 40 μm en raison d'un paramètre γ 16 fois plus élevé dans le waist de la fibre (voir Fig. IV.18).

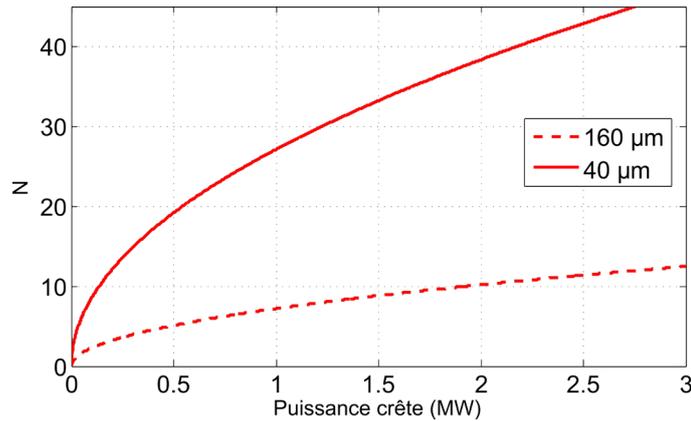


Figure IV.18 - Évolution du nombre de solitons N en fonction de la puissance crête pour les deux diamètres de fibre.

3.3.2. Montée en puissance moyenne

Dans le cas de la fibre tellurite, nous avons pu augmenter la cadence de répétition de 10 kHz à 500 kHz. Le spectre pour la cadence de 500 kHz est illustré avec la Figure IV.19, où l'élargissement s'étend du visible jusqu'à 5 µm pour 40 dB de dynamique. La puissance moyenne en sortie de fibre pour ce spectre est de 237 mW. Pour comparaison, Kedenburg *et al.* [55] ont reporté un spectre SC allant de 1,3 à 5,3 µm, avec une puissance moyenne de 150 mW en pompant à 2,4 µm, avec une cadence de répétition de 43 MHz. La fibre utilisée est une fibre à saut d'indice tellurite avec un cœur de 3,5 µm et une longueur de 9 cm. Ce résultat est intéressant et confirme que ces verres TZL pourraient être des candidats appropriés pour la génération de dispositifs non-linéaires dans la région spectrale de 2 à 5 µm. Ainsi, ces résultats permettraient de tirer parti du développement récent des lasers à fibre émettant des impulsions ultracourtes (sub ps) au-delà de 2 µm [56,57].

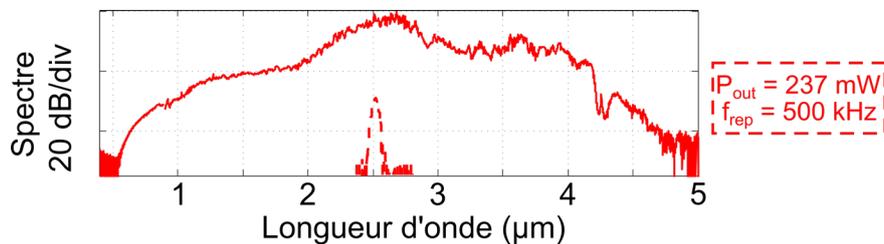


Figure IV.19 – Spectre SC expérimental pour un pompage à 2,5 µm dans une fibre TZL effilée de 40 µm de diamètre de waist en travaillant à la cadence de 500 kHz. La puissance moyenne en sortie de fibre est de 237 mW.

4. Fibres effilées SiO₂

Dans le but de déterminer s'il est également possible de générer un spectre SC large, nous avons utilisé un matériau moins non-linéaire qu'un verre de chalcogénure ou de tellurite et dans une autre gamme spectrale : une fibre silice. Depuis la première démonstration d'un SC dans une fibre multimode à saut d'indice silice de 33 µm de diamètre de cœur allant de 0,7 à 2,1 µm en 1978 [58], de nombreuses études ont été effectuées sur les fibres en silice. La première démonstration d'une fibre silice microstructurée en 1996 [59] et, par la suite, la génération de SC en 2000 dans ce type de fibre [60], ont permis d'optimiser les propriétés dispersives et non-linéaires dans ces fibres pour ce type d'applications. Cependant, les SC générés ont généralement une limite dans l'infrarouge situé vers 2,4 µm à cause de l'absorption multiphonon de la silice [61,62]. Dans le cas d'impulsions courtes (fs), pour générer des spectres le plus loin possible dans une fibre silice, l'ajout de GeO₂ a été beaucoup étudié pour exploiter la gamme spectrale 2 à 3,5 µm. Des SC ont été obtenus dans des fibres présentant une dispersion all-normal, avec par exemple un SC allant jusqu'à 2,2 µm en pompant à 1,56 µm, ou encore 2,67 µm en

pompant à 2 μm . Les fibres utilisées ont une concentration en GeO_2 de 18 mol % [63,64]. Pour des concentrations plus élevées en GeO_2 , des SC ont été obtenus entre 1 et 2,6 μm dans une concaténation de deux fibres en silice (pompe à 1,56 μm) [65]. Pour des durées d'impulsions plus longues, nous pouvons noter le spectre reporté par Jain *et al.* [66] allant de 1.7 à 3,4 μm en pompant à 1556 nm.

4.1. Propriétés de la fibre SiO_2

La fibre utilisée est une fibre à saut d'indice commerciale provenant de chez Thorlabs (FG105LCA). Cette fibre possède un cœur en silice pure d'un diamètre de 105 μm , entouré d'une fine gaine en silice dopée fluor. C'est une fibre multimode avec une ouverture numérique ON de 0,22. Le diamètre externe de la fibre est de 125 μm . Cette fibre possède une faible concentration en groupements hydroxyles (OH), idéale pour les applications de l'UV au proche infrarouge. La Figure IV.20 présente les pertes optiques sur la gamme spectrale 200-2400 nm mesurées directement par le fabricant. Le fond continu est aux alentours de 1 dB/km entre 800 et 1900 nm et augmente jusqu'à 80 dB/km à 2180 nm.

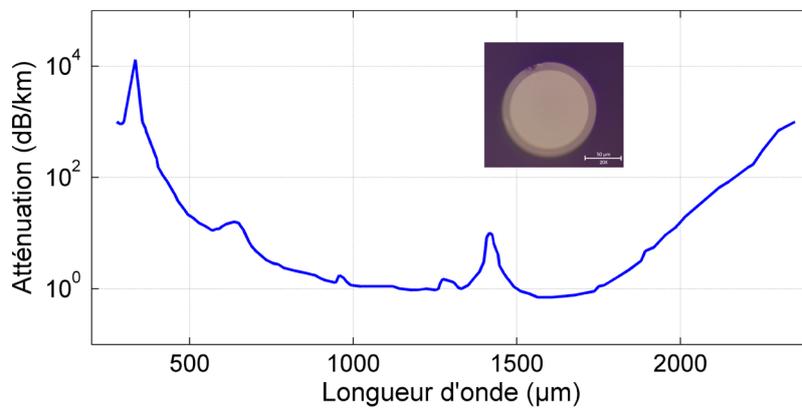


Figure IV.20 – Pertes optiques de la fibre silice (FG105LCA). Mesures par le fabricant (Thorlabs). Une photographie microscope est insérée.

Pour calculer les propriétés de dispersion du mode fondamental guidé, nous avons considéré la dispersion matériau de la silice pure basée sur la relation de Sellmeier provenant de la référence [67]. La différence d'indice entre le cœur et la gaine est approximée avec une valeur constante de $\Delta n = 0.01675$ (voir Réf. [68]).

Pour la suite des expériences, une fibre effilée avec un diamètre de waist de 25 μm est fabriquée. L'évolution de la dispersion pour le diamètre initial de 125 μm et 25 μm est présentée dans la Figure IV.21 (a). Le ZDW est décalé jusqu'à 1,25 μm pour le diamètre de taille de 25 μm , alors qu'il se situe autour de 1,27 μm pour le diamètre externe initial, représentant un décalage de 3,8 THz. L'aire effective du mode fondamental est également calculée pour ces deux diamètres (Fig. IV.21 (b)). Pour la longueur d'onde de 1,5 μm , l'aire effective dans le diamètre externe de 25 μm est 20 fois plus petite que dans le diamètre initial de 125 μm , conduisant à une non-linéarité 20 fois supérieure dans le waist.

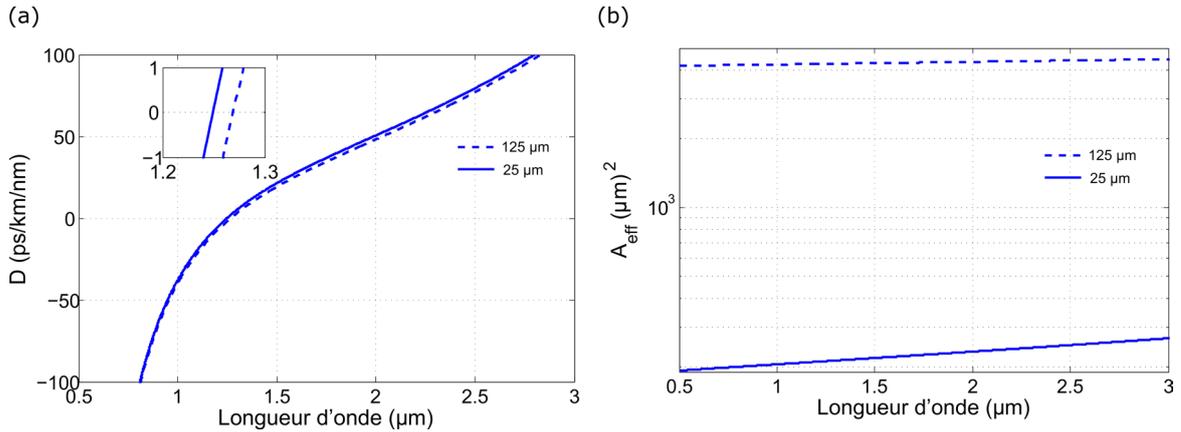


Figure IV.21 – (a) Courbes de dispersion du mode fondamental guidé en fonction de la longueur d'onde pour le diamètre initial de 125 μm ou le diamètre de waist de 25 μm . (b) Courbes calculées de l'aire effective en fonction de la longueur d'onde pour ces mêmes diamètres.

L'évolution du coefficient γ en fonction de la longueur d'onde est illustrée avec la Figure IV.22, ainsi que la représentation du profil 2D du mode fondamental guidé à la longueur d'onde de 1,5 μm et 3 μm . Ainsi, le mode fondamental reste bien confiné dans les deux diamètres à la longueur d'onde de 1,5 μm . Ce profil de mode s'élargit à mesure que la longueur d'onde augmente, avec par exemple à 3 μm , pour le diamètre de fibre de 25 μm , un diamètre à mi-hauteur de 6,2 μm contre 5,7 μm à 1,5 μm . Le guidage dans cette fibre est multimode avec un paramètre normalisé $V > 4$ dans la gamme spectrale 1-4 μm pour le diamètre de 125 μm .

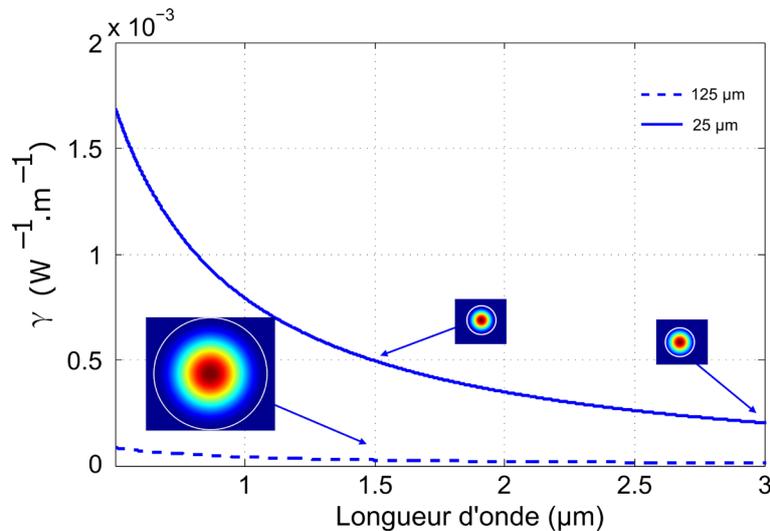


Figure IV.22 – Évolution du paramètre non-linéaire γ en fonction de la longueur d'onde pour des diamètres de 125 et 25 μm . Le profil 2D du mode fondamental guidé est également présenté.

Pour rendre compte de l'évolution du confinement en fonction du diamètre de la fibre, nous avons présenté avec la Figure IV.23, le profil d'intensité du mode fondamental à 1,5 μm (Fig. IV.23 (a&c)), ainsi que la proportion d'énergie dans le cœur de la fibre (Fig. IV.23 (b&d)) pour les deux diamètres. Il y a un très fort confinement dans la fibre pour le diamètre initial sur toute la gamme spectrale jusqu'à 99,90 % à 4 μm . En comparaison, dans le diamètre de waist (25 μm), le confinement est toujours bon mais avec plus de pertes car il y a moins de 95 % de l'énergie dans le cœur après 3,7 μm .

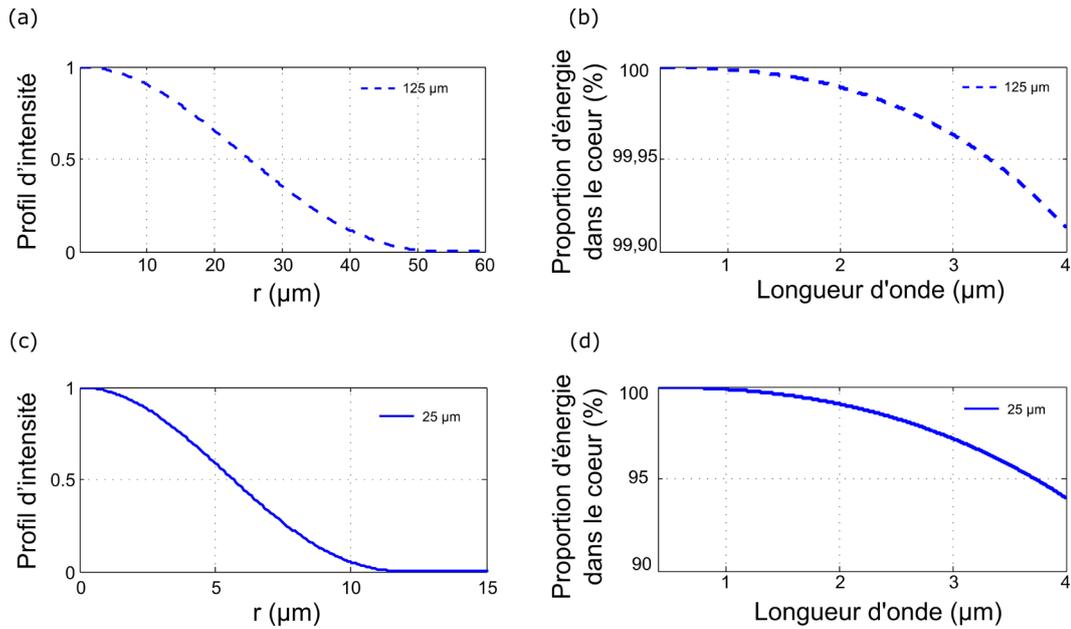


Figure IV.23 – Profil d'intensité du mode fondamental pour des diamètres de (a) 125 μm et (c) 25 μm en fonction du rayon. (b & d) Proportion d'énergie dans le cœur en fonction de la longueur d'onde pour les mêmes diamètres.

À titre informatif, nous calculons la longueur non-linéaire L_{NL} pour le diamètre initial et pour le diamètre de waist de 25 μm (Fig. IV.24). Dans le cas où toute la puissance est couplée dans le mode fondamental guidé, entre 500 kW et 3 MW, cette longueur non-linéaire varie entre 100 mm et 13 mm pour le diamètre de 125 μm, et entre 4 mm et 0,7 mm dans le cas du diamètre le plus petit. Une longueur de fibre de moins de 5 cm semble donc appropriée pour la génération d'effets non-linéaires et en particulier pour des puissances crêtes supérieures à 500 kW.

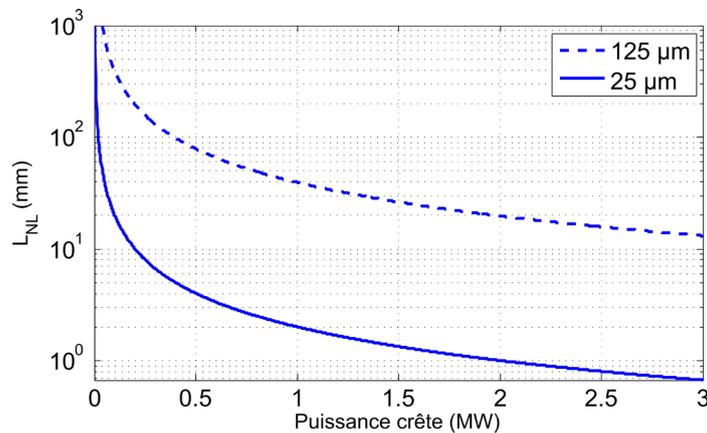


Figure IV.24 - Longueur non-linéaire ($L_{NL}=1/\gamma P_0$) en fonction de la puissance crête pour un diamètre de $\varnothing = 25$ et 125 μm.

4.2. Génération de supercontinuum

Pour obtenir la fibre effilée avec un diamètre de waist de 25 μm, nous avons utilisé un filament en graphite (FTAV2) nécessaire pour travailler avec des températures plus élevées que la fibre tellurite ou chalcogénure. Pour tester la génération de SC dans la fibre SiO₂ effilée, nous avons utilisé le même montage que celui pour le pompage des fibres tellurites (section 3 de ce chapitre). Cependant, la longueur d'onde de pompe provient du signal et non de l'idler de l'OPA (entre 1,35 et 2,06 μm), avec une énergie maximale disponible de 7 μJ. Cette énergie est limitée au μJ via des densités. La longueur d'onde de pompe est fixée à 1,5 μm pour pomper notre fibre au-delà de la longueur d'onde de dispersion

nulle (1,27 μm pour le diamètre de 125 μm) et ainsi bénéficier de la dynamique solitonique permettant un élargissement plus conséquent dans l'infrarouge. Nous avons également pu caractériser la distribution spatiale du SC en imageant la face de sortie de la fibre au moyen d'un capteur CMOS CinCam-1202 IR (Cinogy) pour le visible et l'infrarouge proche.

Nous avons donc procédé de la même manière que pour les fibres précédentes, avec un pompage dans une fibre non effilée puis avec un diamètre de waist de 25 μm (longueur fixe de 5 cm). La cadence de répétition du laser est de 125 kHz. Les résultats sont présentés sur la Figure IV.25. Dans le cas de la fibre non effilée, la longueur de 5 cm est trop faible pour générer un SC dans l'infrarouge, même avec une puissance crête élevée de 2,65 MW. Cette puissance crête maximale est d'ailleurs inférieure au seuil d'autofocalisation, qui vaut à 1,5 μm 8,86 MW ($n_0 = 1.445$ and $n_2 = 2.6 \times 10^{-20} \text{ m}^2 \cdot \text{W}^{-1}$) [69]. Le comportement de notre fibre est confirmé par les simulations numériques. De plus, il peut être facilement relié à la faible non-linéarité de la fibre silice. De la même manière que pour les autres matériaux testés dans le cadre de cette thèse, avec une section effilée, la génération de SC devient possible et considérablement plus efficace comme en témoigne le spectre généré qui s'étend de 0,4 à 2,7 μm , comme le montre la Figure IV.25 (c).

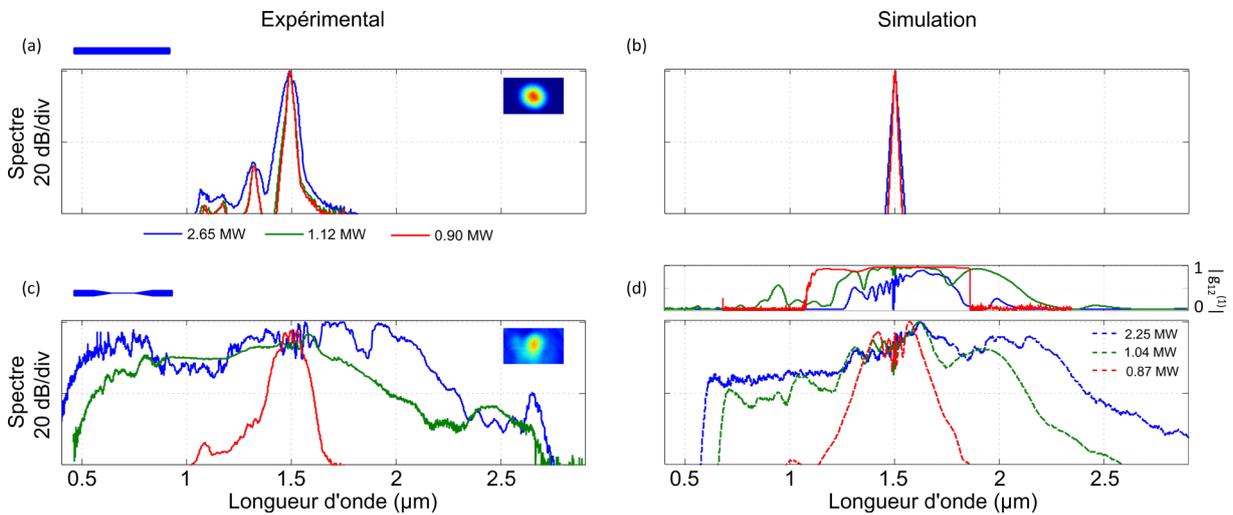


Figure IV.25 – Spectres SC obtenus dans une fibre de 5 cm de long à saut d'indice multimode SiO_2 (a-b) non effilée et (c-d) avec une section effilée de 25 μm de diamètre pour différentes puissances crêtes. Panneaux de gauche : Mesures expérimentales. Les images du contenu spatial en sortie de fibre est également présentée. Panneaux de droite : Résultats numériques correspondant à la simulation numérique sur 200 spectres. Le degré de cohérence du premier ordre g_{12} est également représenté en (d) pour la fibre effilée.

Nous mesurons en sortie de fibre effilée 85 %, 93 % et 97 % de la puissance mesurée en sortie de fibre non effilée pour les mêmes puissances crêtes de 2,65 MW, 1,12 MW et 0,9 MW, respectivement. Il n'y a pratiquement pas de pertes supplémentaires entre les fibres non effilée et effilée pour des puissances faibles, lorsque le mode fondamental est principalement excité. En augmentant la puissance crête, la transmission diminue légèrement et révèle le filtrage spatial de modes d'ordre supérieur dans la section effilée. Le nombre de modes LP_{0m} entre le diamètre initial et la section de 25 μm diminue de 16 à 3, ce qui illustre un comportement faiblement multimodal en comparaison aux autres matériaux utilisés précédemment. Les valeurs de puissances crêtes de 2,25, 1,04 et 0,87 MW sont celles utilisées pour réaliser les simulations numériques illustrées à la Figure IV.25 (d). L'élargissement spectral est confirmé par nos simulations numériques pour les différentes puissances crêtes. Nous notons tout de même une différence aux courtes longueurs d'onde, due probablement au comportement multimode de la fibre [69].

Comme précisé auparavant, toutes les puissances crêtes sont inférieures à la puissance critique d'autofocalisation. Cependant, pour les mêmes raisons que le verre TZL, le pompage en dispersion anormale et la grande valeur de N pour le diamètre de $25\ \mu\text{m}$ font que les propriétés de cohérence du spectre se dégradent, à mesure que la puissance crête augmente. Le calcul du nombre de solitons N en fonction de la puissance crête pour les deux diamètres est présenté dans la Figure IV.26. Il est accepté de considérer un nombre de solitons $N < 10$ comme une règle générale pour maintenir une cohérence élevée et une stabilité d'impulsion à impulsion [70]. La non-linéarité étant plus importante pour un diamètre de $25\ \mu\text{m}$, le nombre N est au-dessus de cette valeur de 10, même pour les plus petites puissances crêtes injectées. Dans cette configuration, il semble difficile d'obtenir un spectre large sans en dégrader les propriétés de cohérence.

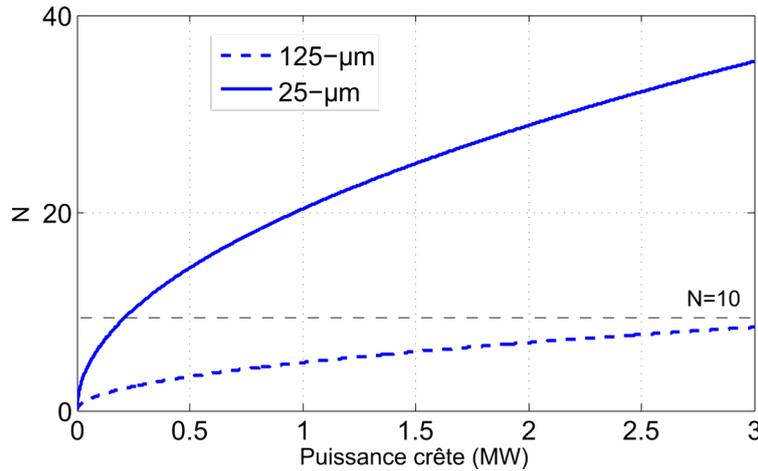


Figure IV.26 – Évolution du nombre de solitons N en fonction de la puissance crête pour les deux diamètres de fibre.

En ce qui concerne le contenu spatial du SC en sortie de fibre, nous sommes en mesure de caractériser le contenu modal dans le domaine visible et infrarouge proche (voir les encadrés de la Figure IV.25 (a & c)). Notre imagerie en champ proche confirme que le mode fondamental est principalement excité pour les deux fibres. Pour la fibre non effilée, il n'y a pas d'élargissement spectral, de sorte qu'elle fournit clairement une mesure de référence dans le régime de propagation presque linéaire. En revanche, dans la fibre effilée, un SC large bande est généré par un régime fortement non-linéaire, mais le signal SC reste significativement soutenu par le mode fondamental. Nous remarquons néanmoins quelques perturbations dans l'image qui pourraient être liées à des couplages intermodaux avec des modes d'ordre supérieur à symétrie non circulaire. Ici, nous avons pu vérifier que l'extension du SC pouvait être optimisée par l'analyse du profil spatial en sortie de fibre (c'est-à-dire une fois que le mode fondamental supporte de manière prédominante le SC).

La montée en puissance dans le cas de la fibre silice a été limitée à une cadence de répétition de 250 kHz. Le spectre SC mesuré expérimentalement est présenté en Figure IV.27 et possède une puissance moyenne en sortie de fibre de 132 mW et une largeur de bande de 640 THz. Il n'a pas été possible d'augmenter la cadence de répétition du laser à cause du seuil d'endommagement des différentes optiques utilisées pour limiter l'énergie de l'impulsion au μJ . Une photographie de la fibre silice est également insérée dans la Figure IV.27, où nous pouvons voir la génération de nouvelles fréquences dans le visible avec une fibre longue de 5 cm.

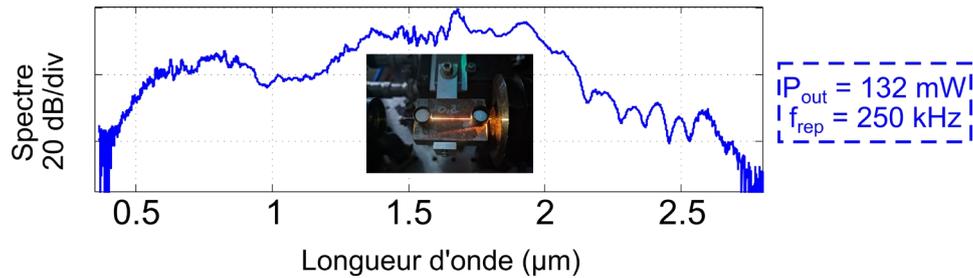


Figure IV.27 – Spectre SC mesuré expérimentalement dans la fibre silice de 5 cm, en pompant à 1,5 μm avec une cadence de 250 kHz. La puissance moyenne en sortie mesurée est de 132 mW. Une photographie de l'expérience est également présentée.

Ces résultats démontrent qu'il est possible de générer un élargissement spectral allant du visible à plus de 2,5 μm en pompant à 1,5 μm dans moins de 5 cm de fibre silice, à condition d'utiliser une source laser avec une puissance crête importante ($P_{crête} > 1 \text{ MW}$ pour générer du signal au-delà de 2 μm).

5. Conclusion

Nous avons ici réalisé une étude complète de la génération de SC dans trois matériaux différents (verre de chalcogénure TAS, verre de tellurite TZL et dans une fibre silice). Nous avons pu généraliser le concept de fibre mono-indice effilée pour la génération de SC avec d'autres verres et gammes spectrales. Dans le cas de la fibre TAS, nous avons observé des élargissements spectraux importants jusqu'à 16 μm dans l'infrarouge. Cependant, nous avons relevé des problèmes d'endommagements de nos fibres avec l'augmentation de la cadence du laser et donc de la puissance moyenne. Dans un deuxième temps, nous avons mis en place des mesures avec des fibres TZL et SiO_2 . Nous avons pu ainsi obtenir des élargissements équivalents à ceux reportés dans la littérature. Ces résultats montrent qu'il est possible de générer des spectres larges même avec des fibres moins non-linéaires que les chalcogénures par exemple, tout cela avec une géométrie simple et moins sujette au vieillissement. Cependant, la source laser utilisée pour ces mesures possède tout de même une puissance crête élevée, ce qui peut limiter les perspectives de ce système avec des sources laser commerciales moins puissantes.

Les simulations numériques effectuées dans le cas des trois verres différents sont en bon accord avec les résultats expérimentaux, nous permettant de confirmer nos hypothèses sur les mécanismes impliqués dans ce phénomène d'élargissement.

Bibliographie

1. Z. Wu, Y. Xu, D. Qi, Q. Nie, and X. Zhang, "Progress in preparation and applications of Te-As-Se chalcogenide glasses and fibers," *Infrared Physics & Technology* **102**, 102981 (2019).
2. G. Yang, J.-C. Sangleboeuf, C. Boussard-Plédel, and B. Bureau, "Effect of Physical Aging Conditions on the Mechanical Properties of Te₂As₃Se₅ (TAS) Glass Fibers," *Journal of the American Ceramic Society* **96**, 464–468 (2013).
3. D. Brandová and R. Svoboda, "Thermo-structural characterization of (As₂Se₃)_{100-x}-(As₂Te₃)_x glasses for infrared optics," *J Am Ceram Soc* **102**, 382–396 (2019).
4. S. Hocde, O. Loreal, O. Sire, B. Turlin, C. Boussard-Plédel, D. L. Coq, B. Bureau, G. Fonteneau, C. Pigeon, P. Leroyer, and J. Lucas, "Biological tissue infrared analysis by chalcogenide glass optical fiber spectroscopy," in *Biomonitoring and Endoscopy Technologies* (SPIE, 2001), Vol. 4158, pp. 49–56.
5. P. Lucas, G. J. Coleman, C. Cantoni, S. Jiang, T. Luo, B. Bureau, C. Boussard-Plédel, J. Troles, and Z. Yang, "Chalcogenide glass sensors for bio-molecule detection," in *Optical Fibers and Sensors for Medical Diagnostics and Treatment Applications XVII* (SPIE, 2017), Vol. 10058, pp. 146–159.
6. M.-L. Anne, C. Le Lan, V. Monbet, C. Boussard-Plédel, M. Ropert, O. Sire, M. Pouchard, C. Jard, J. Lucas, J. L. Adam, P. Brissot, B. Bureau, and O. Loréal, "Fiber evanescent wave spectroscopy using the mid-infrared provides useful fingerprints for metabolic profiling in humans," *J. Biomed. Opt.* **14**, 054033 (2009).
7. J. Keirsse, C. Boussard-Plédel, O. Loréal, O. Sire, B. Bureau, P. Leroyer, B. Turlin, and J. Lucas, "IR optical fiber sensor for biomedical applications," *Vibrational Spectroscopy* **32**, 23–32 (2003).
8. D. D. Thornburg, "Physical properties of the As₂(Se,Te)₃ glasses (Review article)," *J. Electron. Mater.* **2**, 495–532 (1973).
9. V. S. Shiryayev, J.-L. Adam, X. H. Zhang, C. Boussard-Plédel, J. Lucas, and M. F. Churbanov, "Infrared fibers based on Te-As-Se glass system with low optical losses," *Journal of Non-Crystalline Solids* **336**, 113–119 (2004).
10. V. S. Shiryayev, C. Boussard-Plédel, P. Houizot, T. Jouan, J.-L. Adam, and J. Lucas, "Single-mode infrared fibers based on TeAsSe glass system," *Materials Science and Engineering: B* **127**, 138–143 (2006).
11. P. Jóvári, B. Bureau, I. Kaban, V. Nazabal, B. Beuneu, and U. Rütt, "The structure of As₃Se₅Te₂ infrared optical glass," *Journal of Alloys and Compounds* **488**, 39–43 (2009).
12. G. Delaizir, M. Dussauze, V. Nazabal, P. Lecante, M. Dollé, P. Rozier, E. I. Kamitsos, P. Jovari, and B. Bureau, "Structural characterizations of As-Se-Te glasses," *Journal of Alloys and Compounds* **509**, 831–836 (2011).
13. B. Bureau, C. Boussard-Plédel, P. Lucas, X. Zhang, and J. Lucas, "Forming Glasses from Se and Te," *Molecules* **14**, 4337–4350 (2009).
14. C. Conseil, Q. Coulombier, C. Boussard-Plédel, J. Troles, L. Brilland, G. Renversez, D. Mechin, B. Bureau, J. L. Adam, and J. Lucas, "Chalcogenide step index and microstructured single mode fibers," *Journal of Non-Crystalline Solids* **357**, 2480–2483 (2011).
15. E. A. Anashkina, V. S. Shiryayev, G. E. Snopatin, S. V. Muraviev, and A. V. Kim, "On the possibility of mid-IR supercontinuum generation in As-Se-Te/As-S core/clad fibers with all-fiber femtosecond pump source," *Journal of Non-Crystalline Solids* **480**, 38–42 (2018).
16. Z. Wu, L. Yang, Y. Xu, P. Zhang, Q. Nie, and X. Wang, "1.8–13 μm supercontinuum generation by pumping at normal dispersion regime of As-Se-Te glass fiber," *J Am Ceram Soc* **102**, 5025–5032 (2019).
17. V. S. Shiryayev, J.-L. Adam, X. H. Zhang, C. Boussard-Plédel, J. Lucas, and M. F. Churbanov, "Infrared fibers based on Te-As-Se glass system with low optical losses," *Journal of Non-Crystalline Solids* **336**, 113–119 (2004).
18. V. S. Shiryayev, C. Boussard-Plédel, P. Houizot, T. Jouan, J.-L. Adam, and J. Lucas, "Single-mode infrared fibers based on TeAsSe glass system," *Materials Science and Engineering: B* **127**, 138–143 (2006).
19. P. Houizot, C. Boussard-Plédel, A. J. Faber, L. K. Cheng, B. Bureau, P. A. Van Nijnatten, W. L. M. Gielesen, J. Pereira do Carmo, and J. Lucas, "Infrared single mode chalcogenide glass fiber for space," *Opt. Express* **15**, 12529 (2007).

20. R. W. Boyd, *Nonlinear Optics, Third Edition* (Academic Press, Inc., 2008).
21. T. Wang, X. Gai, W. Wei, R. Wang, Z. Yang, X. Shen, S. Madden, and B. Luther-Davies, "Systematic z-scan measurements of the third order nonlinearity of chalcogenide glasses," *Opt. Mater. Express* **4**, 1011 (2014).
22. T. M. Monro and H. Ebendorff-Heidepriem, "Progress in microstructured optical fibers," *Annu. Rev. Mater. Res.* **36**, 467–495 (2006).
23. R. E. Slusher, G. Lenz, J. Hodelin, J. Sanghera, L. B. Shaw, and I. D. Aggarwal, "Large Raman gain and nonlinear phase shifts in high-purity As₂Se₃ chalcogenide fibers," *J. Opt. Soc. Am. B* **21**, 1146 (2004).
24. V. Hitaishi and N. Ashok, "Broadband Supercontinuum Generation Using Dispersion Engineered As₂Se₃-GeAsSe-GeAsS Waveguide at 6 μm," *IEEE Access* **11**, 12294–12302 (2023).
25. F. Smektala, C. Quemard, V. Couderc, and A. Barthélémy, "Non-linear optical properties of chalcogenide glasses measured by Z-scan," *Journal of Non-Crystalline Solids* **274**, 232–237 (2000).
26. A. Lemièrre, R. Bizot, F. Désévéday, G. Gadret, J.-C. Jules, P. Mathey, C. Aquilina, P. Béjot, F. Billard, O. Faucher, B. Kibler, and F. Smektala, "1.7–18 μm mid-infrared supercontinuum generation in a dispersion-engineered step-index chalcogenide fiber," *Results in Physics* **26**, 104397 (2021).
27. A. Lemièrre, F. Désévéday, P. Mathey, P. Froidevaux, G. Gadret, J.-C. Jules, C. Aquilina, B. Kibler, P. Béjot, F. Billard, O. Faucher, and F. Smektala, "Mid-infrared supercontinuum generation from 2 to 14 μm in arsenic- and antimony-free chalcogenide glass fibers," *J. Opt. Soc. Am. B* **36**, A183 (2019).
28. D. Hollenbeck and C. D. Cantrell, "Multiple-vibrational-mode model for fiber-optic Raman gain spectrum and response function," *J. Opt. Soc. Am. B* **19**, 2886 (2002).
29. M. Zhang, T. Li, Y. Yang, H. Tao, X. Zhang, X. Yuan, and Z. Yang, "Femtosecond laser induced damage on Ge-As-S chalcogenide glasses," *Opt. Mater. Express*, OME **9**, 555–561 (2019).
30. C. You, S. Dai, P. Zhang, Y. Xu, Y. Wang, D. Xu, and R. Wang, "Mid-infrared femtosecond laser-induced damages in As₂S₃ and As₂Se₃ chalcogenide glasses," *Sci Rep* **7**, 6497 (2017).
31. Z. Wu, Y. Xu, P. Zhang, D. Qi, C. Ma, and W. Li, "Fabrication, characterization and the effects of femtosecond laser ablation on Te-As-Se glasses," *Journal of Non-Crystalline Solids* **527**, 119755 (2020).
32. V. Fortin, Y. O. Aydin, M. Bernier, R. Vallée, M. Rochette, F. Chenard, O. Alvarez, L. E. Busse, L. B. Shaw, R. R. Gattass, and J. S. Sanghera, "Chapter 5 - Post-processing soft glass optical fibers," in *Mid-Infrared Fiber Photonics*, S. Jackson, M. Bernier, and R. Vallée, eds., Woodhead Publishing Series in Electronic and Optical Materials (Woodhead Publishing, 2022), pp. 233–302.
33. V. A. Rivera, *Technological Advances in Tellurite Glasses: Properties, Processing, and Applications* (Springer Science+Business Media, 2017).
34. J. E. Stanworth, "Tellurite Glasses," *Nature* **169**, 581–582 (1952).
35. P. Domachuk, N. A. Wolchover, M. Cronin-Golomb, A. Wang, A. K. George, C. M. B. Cordeiro, J. C. Knight, and F. G. Omenetto, "Over 4000 nm Bandwidth of Mid-IR Supercontinuum Generation in sub-centimeter Segments of Highly Nonlinear Tellurite PCFs," *Opt. Express*, OE **16**, 7161–7168 (2008).
36. X. Feng, W. H. Loh, J. C. Flanagan, A. Camerlingo, S. Dasgupta, P. Petropoulos, P. Horak, K. E. Frampton, N. M. White, J. H. V. Price, H. N. Rutt, and D. J. Richardson, "Single-mode tellurite glass holey fiber with extremely large mode area for infrared nonlinear applications," *Opt. Express*, OE **16**, 13651–13656 (2008).
37. M. Liao, X. Yan, G. Qin, C. Chaudhari, T. Suzuki, and Y. Ohishi, "A highly non-linear tellurite microstructure fiber with multi-ring holes for supercontinuum generation," *Opt. Express*, OE **17**, 15481–15490 (2009).
38. A. Lin, A. Rysanyanskiy, and J. Toulouse, "Fabrication and characterization of a water-free mid-infrared fluorotellurite glass," *Opt. Lett.*, OL **36**, 740–742 (2011).
39. C. Rivero, R. Stegeman, M. Couzi, D. Talaga, T. Cardinal, K. Richardson, and G. Stegeman, "Resolved discrepancies between visible spontaneous Raman cross-section and direct near-infrared Raman gain measurements in TeO₂-based glasses," *Opt. Express*, OE **13**, 4759–4769 (2005).

40. J. Jackson, C. Smith, J. Massera, C. Rivero-Baleine, C. Bungay, L. Petit, and K. Richardson, "Estimation of peak Raman gain coefficients for Barium-Bismuth-Tellurite glasses from spontaneous Raman cross-section experiments," *Opt. Express*, OE **17**, 9071–9079 (2009).
41. G. Dai, F. Tassone, A. L. Bassi, V. Russo, C. E. Bottani, and F. D'Amore, "TeO₂-based glasses containing Nb₂O₅, TiO₂, and WO₃ for discrete Raman fiber amplification," *IEEE Photonics Technology Letters* **16**, 1011–1013 (2004).
42. R. A. H. El-Mallawany, *Tellurite Glasses Handbook: Physical Properties and Data, Second Edition*, 2nd ed. (CRC Press, 2012).
43. R. El-Mallawany, M. D. Abdalla, and I. A. Ahmed, "New tellurite glass: Optical properties," *Materials Chemistry and Physics* **109**, 291–296 (2008).
44. J. de Clermont-Gallerande, S. Saito, M. Colas, P. Thomas, and T. Hayakawa, "New understanding of TeO₂-ZnO-Na₂O ternary glass system," *Journal of Alloys and Compounds* **854**, 157072 (2021).
45. S. Manning, H. Ebendorff-Heidepriem, and T. M. Monro, "Ternary tellurite glasses for the fabrication of nonlinear optical fibres," *Opt. Mater. Express*, OME **2**, 140–152 (2012).
46. J. Lin, W. Huang, L. Ma, Q. Bian, S. Qin, H. Wei, and J. Chen, "Crystallization of TeO₂-Nb₂O₅ glasses and their network structural evolution," *Materials Science Poland* Vol. **27**, No. **1**, (2009).
47. M. A. Villegas and J. M. F. Navarro, "Physical and structural properties of glasses in the TeO₂-TiO₂-Nb₂O₅ system," *Journal of the European Ceramic Society* **27**, 2715–2723 (2007).
48. A. Maldonado, M. Evrard, E. Serrano, A. Crochetet, F. Désévéday, J. C. Jules, G. Gadret, C. H. Brachais, C. Strutynski, Y. Ledemi, Y. Messaddeq, and F. Smektala, "TeO₂-ZnO-La₂O₃ tellurite glass system investigation for mid-infrared robust optical fibers manufacturing," *Journal of Alloys and Compounds* **867**, 159042 (2021).
49. M. A. Maldonado, "Elaboration de fibres optiques multimatériaux aux fonctionnalités électro-optiques," (n.d.).
50. M. Evrard, "Étude de nouveaux verres de tellurite du système TeO₂-ZnO-La₂O₃ (TZL) pour," (n.d.).
51. M. Evrard, T. Combes, A. Maldonado, F. Désévéday, G. Gadret, C. Strutynski, J. C. Jules, C. H. Brachais, and F. Smektala, "TeO₂-ZnO-La₂O₃ tellurite glass purification for mid-infrared optical fibers manufacturing," *Opt. Mater. Express* **12**, 136 (2022).
52. M. Evrard, E. Serrano, C. Strutynski, F. Désévéday, G. Gadret, J. C. Jules, B. Kibler, and F. Smektala, "(INVITED)Dispersion-shifted tellurite fibers for nonlinear frequency conversion," *Optical Materials: X* **15**, 100183 (2022).
53. M. Evrard, T. Mansuryan, V. Couderc, F. Désévéday, C. Strutynski, M. Dussauze, Y. Arosa Lobato, A. Tonello, M. Colas, G. El-Dib, S. Danto, T. Cardinal, and F. Smektala, "Highly Nonlinear Multimode Tellurite Fibers: From Glass Synthesis to Practical Applications in Multiphoton Imaging," *Advanced Photonics Research* **4**, 2200213 (2023).
54. M. Deroh, J.-C. Beugnot, K. Hammani, C. Finot, J. Fatome, F. Smektala, H. Maillotte, T. Sylvestre, and B. Kibler, "Comparative analysis of stimulated Brillouin scattering at 2 μm in various infrared glass-based optical fibers," *J. Opt. Soc. Am. B* **37**, 3792 (2020).
55. S. Kedenburg, C. Strutynski, B. Kibler, P. Froidevaux, F. Désévéday, G. Gadret, J.-C. Jules, T. Steinle, F. Mörz, A. Steinmann, H. Giessen, and F. Smektala, "High repetition rate mid-infrared supercontinuum generation from 1.3 to 5.3 μm in robust step-index tellurite fibers," *J. Opt. Soc. Am. B, JOSAB* **34**, 601–607 (2017).
56. I. Tiliouine, G. Granger, C. E. Jimenez-Durango, Y. Leventoux, B. Wetzels, V. Couderc, and S. Février, "Two-octave spanning supercontinuum from a 4.53 μm fiber-based laser," *Results in Physics* **47**, 106326 (2023).
57. S. Duval, J.-C. Gauthier, L.-R. Robichaud, P. Paradis, M. Olivier, V. Fortin, M. Bernier, M. Piché, and R. Vallée, "Watt-level fiber-based femtosecond laser source tunable from 2.8 to 3.6 μm," *Opt. Lett.*, OL **41**, 5294–5297 (2016).
58. C. Lin, V. T. Nguyen, and W. G. French, "Wideband near-i.r. continuum (0.7–2.1 μm) generated in low-loss optical fibres," *Electronics Letters* **14**, 822–823 (1978).
59. J. C. Knight, T. A. Birks, P. St. J. Russell, and D. M. Atkin, "All-silica single-mode optical fiber with photonic crystal cladding," *Opt. Lett.* **21**, 1547 (1996).
60. J. K. Ranka, R. S. Windeler, and A. J. Stentz, "Visible continuum generation in air-silica microstructure optical fibers with anomalous dispersion at 800 nm," *Opt. Lett.* **25**, 25 (2000).

61. J. M. Dudley, G. Genty, and S. Coen, "Supercontinuum generation in photonic crystal fiber," *Rev. Mod. Phys.* **78**, 1135–1184 (2006).
62. J. M. Dudley, L. Provino, N. Grossard, H. Maillotte, R. S. Windeler, B. J. Eggleton, and S. Coen, "Supercontinuum generation in air–silica microstructured fibers with nanosecond and femtosecond pulse pumping," *J. Opt. Soc. Am. B, JOSAB* **19**, 765–771 (2002).
63. K. Tarnowski, T. Martynkien, P. Mergo, K. Poturaj, G. Soboń, and W. Urbanczyk, "Coherent supercontinuum generation up to 2.2 μm in an all-normal dispersion microstructured silica fiber," *Opt. Express* **24**, 30523 (2016).
64. K. Tarnowski, T. Martynkien, P. Mergo, K. Poturaj, A. Anuszkiewicz, P. B  jot, F. Billard, O. Faucher, B. Kibler, and W. Urbanczyk, "Polarized all-normal dispersion supercontinuum reaching 2.5 μm generated in a birefringent microstructured silica fiber," *Opt. Express* **25**, 27452 (2017).
65. E. A. Anashkina, A. V. Andrianov, M. Yu. Koptev, V. M. Mashinsky, S. V. Muravyev, and A. V. Kim, "Generating tunable optical pulses over the ultrabroad range of 1.6–2.5 μm in GeO₂-doped silica fibers with an Er: fiber laser source," *Opt. Express* **20**, 27102 (2012).
66. D. Jain, R. Sidharthan, G. Woyessa, P. M. Moselund, P. Bowen, S. Yoo, and O. Bang, "Scaling power, bandwidth, and efficiency of mid-infrared supercontinuum source based on a GeO₂-doped silica fiber," *J. Opt. Soc. Am. B* **36**, A86 (2019).
67. H. R. D. Sunak and S. P. Bastien, "Refractive index and material dispersion interpolation of doped silica in the 0.6–1.8 μm wavelength region," *IEEE Photonics Technology Letters* **1**, 142–145 (1989).
68. K. Tarnowski, S. Majchrowska, P. B  jot, and B. Kibler, "Numerical modelings of ultrashort pulse propagation and conical emission in multimode optical fibers," *J. Opt. Soc. Am. B* **38**, 732 (2021).
69. K. Stefańska, P. B  jot, K. Tarnowski, and B. Kibler, "Experimental Observation of the Spontaneous Emission of a Space–Time Wavepacket in a Multimode Optical Fiber," *ACS Photonics* **10**, 727–732 (2023).
70. P. Froidevaux, A. Lemi  re, B. Kibler, F. D  s  v  davy, P. Mathey, G. Gadret, J.-C. Jules, K. Nagasaka, T. Suzuki, Y. Ohishi, and F. Smektala, "Dispersion-Engineered Step-Index Tellurite Fibers for Mid-Infrared Coherent Supercontinuum Generation from 1.5 to 4.5 μm with Sub-Nanojoule Femtosecond Pump Pulses," *Applied Sciences* **8**, 1875 (2018).

Chapitre V

Applications et perspectives des sources SC à fibre effilée mono-indice

Résumé du chapitre : Ce chapitre présente les résultats de génération de SC obtenus dans des fibres non effilées en Ge-Te-AgI. Une étude numérique est également effectuée pour souligner le potentiel de ces verres sous forme de fibres effilées. Des premiers résultats de spectroscopie par ondes évanescentes, avec notamment l'absorption entre 9 et 10 μm de l'éthanol, sont également présentés dans des fibres effilées Te-As-Se, qui servent à la fois de capteurs et de sources MIR via la génération de SC.

Table des matières

1) Introduction.....	115
2) Utilisation des verres Ge-Te-AgI.....	115
2.1 Généralités sur les verres Ge-Te-AgI.....	115
2.2 Propriétés des fibres Ge-Te-AgI.....	117
2.3 Études de génération de supercontinuum.....	120
2.3.1 Génération de SC dans un verre massif Ge-Te-AgI.....	120
2.3.2 Génération de SC dans une fibre mono-indice non effilée Ge-Te-AgI.....	121
2.4 Perspectives avec des fibres effilées Ge-Te-AgI.....	123
3) Applications en spectroscopie d'absorption dans l'infrarouge moyen.....	126
3.1 Spectroscopie d'absorption par ondes évanescentes (FEWS).....	126
3.2 Matériels et méthodes	127
3.3 Résultats.....	129
3.3.1 FEWS avec une fibre effilée.....	129
3.3.2 FEWS avec fibre double fonction.....	131
3.4 Perspectives des mesures FEWS.....	133
4) Conclusion.....	133

1) Introduction

Les régions spectrales de l'infrarouge moyen (MIR) ou de l'infrarouge lointain (FIR) présentent un fort intérêt pour l'identification de molécules complexes, que ce soit pour la détection d'explosifs ou l'astrochimie [1–3]. Cependant la région spectrale de l'infrarouge lointain (ici définie entre 20 et 50 μm) reste l'une des principales frontières restantes du spectre électromagnétique pour la recherche scientifique et en particulier pour la spectroscopie [4–6]. Contrairement aux deux régions spectrales voisines (infrarouge moyen et THz), les technologies de l'infrarouge lointain restent peu développées et l'étude expérimentale de génération de supercontinuum (SC) dans cette gamme spectrale avec des fibres optiques est inexistante. Récemment plusieurs études numériques se sont intéressées aux spectres SC dépassant la limite de 20 μm dans des fibres à cristaux photoniques (PCF) [7–9]. Cependant, ces résultats numériques sont obtenus avec des géométries complexes qui rendent la mise en place de l'expérience impossible.

L'utilisation de sources de lumière, possédant des largeurs spectrales importantes dans l'infrarouge, est une solution pour réaliser des mesures de spectroscopie d'absorption. En effet, plus le spectre de la source est large, plus il est possible d'identifier des absorptions multiples, et donc de détecter simultanément un grand nombre de molécules. Une des techniques utilisées dans la littérature avec les fibres optiques, est la spectroscopie d'absorption par ondes évanescentes (FEWS). Le développement de cette technologie dans l'infrarouge, et en particulier dans le MIR, est un domaine de recherche très actif. L'objectif est d'améliorer la sensibilité et d'étendre la portée opérationnelle en étudiant différentes géométries, sources ou matériaux [10–14]. L'une des principales limitations de cette technique peut être la source de lumière. Généralement, la source large bande utilisée provient d'un corps noir, couplée dans une fibre, aboutissant à une faible puissance. L'utilisation d'un SC dans l'infrarouge moyen permettrait de surmonter ce problème [15].

Dans ce chapitre, nous chercherons à étudier le concept de fibre effilée avec un verre de chalcogénures du système vitreux Ge-Te-AgI (TGAgI). Ce verre transmettant plus loin en longueur d'onde que les verres précédents. Enfin, nous présenterons une application possible de la génération de SC dans les fibres effilées multimodes avec des mesures de spectroscopie d'absorption par ondes évanescentes dans l'infrarouge avec des fibres Te-As-Se.

2) Utilisation des verres Ge-Te-AgI

2.1 Généralités sur les verres Ge-Te-AgI

Les verres de chalcogénures permettent de transmettre usuellement la gamme de longueurs d'onde 2-20 μm (voir Fig. IV.1). Plus récemment une nouvelle famille riche en tellure a été développée, provenant du système pseudo-binaire $\text{GeTe}_4\text{-AgI}$ [16,17]. Des verres de ce pseudo-système ont d'ailleurs présenté une forte transparence jusqu'à plus de 35 μm sur des échantillons massifs d'épaisseur 1 mm (voir Fig. V.1) [18].

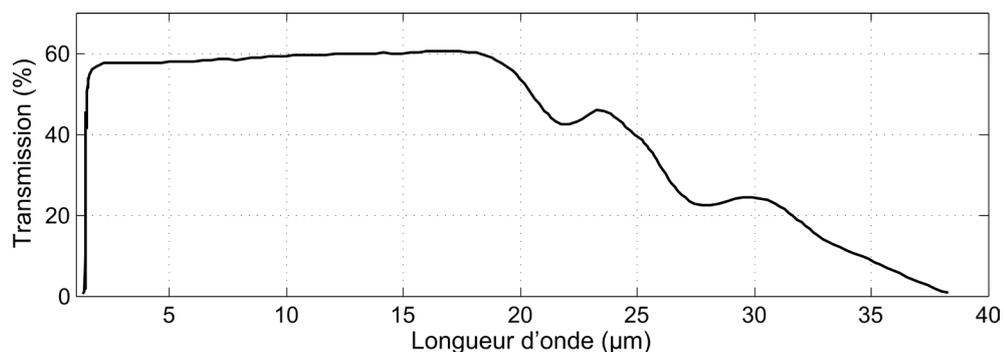


Figure V.1 – Courbe de transmission d'un verre $(\text{GeTe}_4)_{85}(\text{AgI})_{15}$ d'épaisseur 1 mm [18].

Une collaboration a été mise en place avec l'Institut des Sciences Chimiques de Rennes pour obtenir des verres de ce système pseudo-binaire GeTe₄-AgI. En effet, il y a dans le monde seulement quelques groupes développant ce type de matériau, en particulier sous forme de fibre optique (ISCR de Rennes et l'Université de Ningbo en Chine principalement). Le verre obtenu est de la composition suivante (Ge₂₁Te₇₉)₈₅(AgI)₁₅.

Concernant la variation de l'indice de réfraction linéaire, il n'y a pas de mesures directes pour cette composition précise. Conseil *et al.* [17] estime cet indice avec les pertes de Fresnel aux alentours de 3,3. À partir du niveau de transmission pour différentes compositions avec un taux d'AgI variable, une estimation de l'indice pour la composition (Ge₂₁Te₇₉)₈₅(AgI)₁₅ est donnée vers 3,15 [19]. Pour déterminer cet indice, les auteurs enregistrent le spectre de transmission d'un échantillon massif de verre (épaisseur 1 mm). En considérant les pertes par absorption négligeables pour 1 mm de propagation, l'indice n_1 du verre est calculé à partir de la transmission T , avec la relation suivante [19]:

$$T = \frac{2n_1n_2}{n_1^2 + n_2^2} \quad (V.1)$$

Ici, l'indice n_2 représente l'indice de l'air, présumé à $n_2 = 1$. La valeur est donc estimée sur la gamme spectrale où la transmission est plate. Cette méthode ne permet cependant pas d'avoir une valeur précise de l'indice et dépend grandement du parallélisme et de la planéité des deux faces. D'autres études présentent des mesures réalisées par ellipsométrie sur des compositions légèrement différentes [20,21]. Un premier résultat détermine pour la composition (GeTe_{4,3})₈₅(AgI)₁₅ un indice de 3,569 (à $\lambda = 10,6 \mu\text{m}$). Cependant, cette valeur peut être également à prendre avec précaution. En effet, les auteurs mesurent des transmissions qui diminuent avec l'augmentation d'AgI, ce qui est le résultat opposé relevé dans les références [18,19,22].

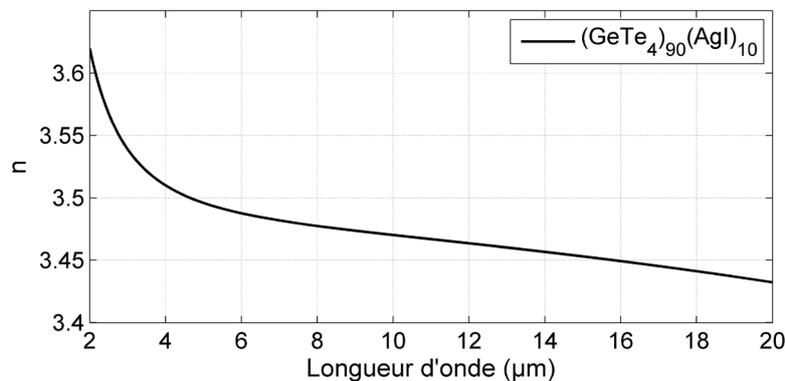


Figure V.2 – Évolution de l'indice linéaire de réfraction en fonction de la longueur d'onde pour une composition de (GeTe₄)₉₀(AgI)₁₀ d'après la Réf. [21].

Un autre résultat présente la variation de l'indice sur la gamme spectrale 2-20 μm pour la composition (GeTe₄)₉₀(AgI)₁₀. Pour la suite de cette étude, nous considérons la variation de cet indice présentée par Zhao *et al.* [21] pour cette composition (voir Fig. V.2). Il faut donc relever que ces verres Ge-Te-AgI présentent des indices linéaires bien plus élevés que ceux étudiés précédemment dans ce manuscrit. Plusieurs études ont été réalisées sur ces verres Ge-Te-AgI pour approfondir la compréhension des propriétés structurales [17,22–25] ou encore de leurs propriétés électriques [26]. Concernant des applications potentielles de ces verres, nous relevons un intérêt pour la détection d'éléments dans l'infrarouge lointain ($> 12 \mu\text{m}$), grâce à la transmission importante jusqu'à plus de 20 μm . Cui *et al.* [16] proposent une fibre Ge-Te-AgI effilée mono-indice avec un diamètre de waist de 160 μm pour la détection de chloroforme. En effet, les auteurs parviennent à détecter les absorptions à 13,3 μm et 14,9 μm causées par les liaisons C-Cl. L'atteinte de ces longueurs d'onde sur fibre est assez rare, notamment pour les compositions Te-As-Se ou AsSe, à cause d'une énergie de phonon élevée du Se. La mesure est ici effectuée via la spectroscopie par ondes évanescentes (FEWS). Ce résultat

démontre la possibilité d’avoir accès, sur plateforme fibrée, à des longueurs d’onde au-delà de 12 μm , pour lesquelles de nombreuses biomolécules complexes pourraient être détectées. Une autre étude présente les verres Ge-Te-AgI comme des candidats intéressants en tant que matériaux acousto-optiques pour le développement de modulateurs acousto-optiques pour l’infrarouge lointain [20].

Enfin, une étude a démontré l’intérêt de ces verres pour la génération de SC dans l’infrarouge [21]. Dans cette étude, une fibre à saut d’indice est fabriquée avec un cœur en $(\text{GeTe}_{4,3})_{90}(\text{AgI})_{10}$ et deux gaines en $(\text{GeTe}_4)_{90}(\text{AgI})_{10}$ puis $\text{Ge}_{10}\text{Sb}_{10}\text{Se}_{80}$. Le diamètre de cœur est de 20 μm et le segment utilisé mesure 14 cm. En pompant à 7 μm avec une source travaillant au kHz, un SC allant de 2 à 16 μm pour une dynamique de 40 dB est obtenu. Ce résultat démontre le fort potentiel de ces verres pour la génération de nouvelles fréquences dans l’infrarouge.

Concernant la réponse Raman de ce verre, plusieurs mesures ont été effectuées sur des compositions proches [23,25]. Le Tableau V.1 présente les paramètres utilisés pour modéliser la réponse Raman par la méthode d’élargissement intermédiaire (intermediate-broadening model) [27]. La courbe expérimentale ainsi que celle analytique sont présentées avec la Figure V.3. Nous pouvons identifier trois pics principaux pour le décalage Raman de ce verre : à 89 cm^{-1} , 129 cm^{-1} et 159 cm^{-1} . La majorité (en termes d’intensité) de ce décalage Raman, est globalement situé entre 80 cm^{-1} et 350 cm^{-1} . En comparaison, la composition $\text{Te}_{20}\text{As}_{30}\text{Se}_{50}$ (Chapitre IV) a un décalage Raman situé, entre 100 cm^{-1} et 400 cm^{-1} .

Tableau V.1 - Valeurs utilisées pour la méthode d’élargissement intermédiaire de la composition de Ge-Te-AgI d’après la Réf. [25].

Numéro du mode i	Position (cm^{-1})	Intensité (u.a)	Gaussienne FWHM (cm^{-1})	Lorentzienne FWHM (cm^{-1})
1	88,67	103	22,03	29,44
2	127,68	100	10,13	17,19
3	158,64	120	34,07	11,83
4	214,00	88	13,09	87,08
5	304,05	26	23,10	56,08

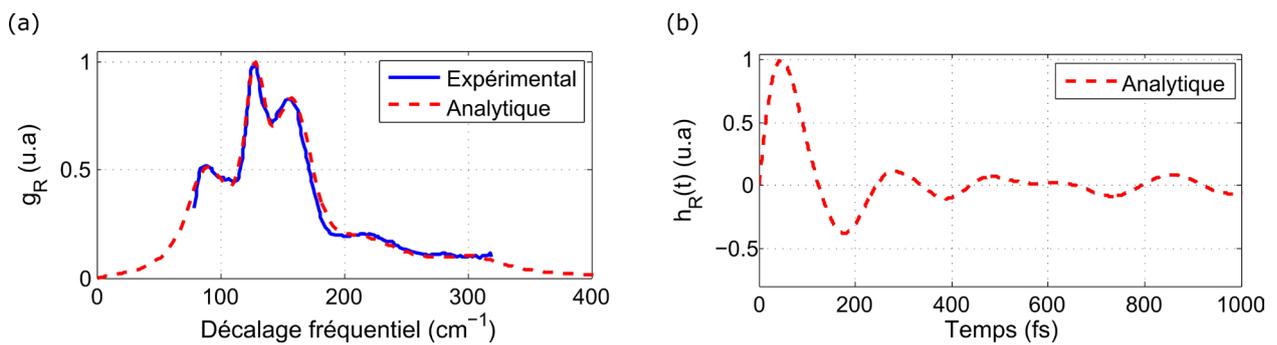


Figure V.3 - Réponse Raman de la composition $(\text{Ge}_{21}\text{Te}_{79})_{85}(\text{AgI})_{15}$ (a) en décalage fréquentiel avec la comparaison expérimentale et (b) dans le domaine temporel [25].

2.2 Propriétés des fibres Ge-Te-AgI

Nous avons pu obtenir plusieurs échantillons de fibre mono-indice Ge-Te-AgI avec un diamètre externe de 150 μm . Afin de déterminer les propriétés de dispersion de nos fibres, nous avons considéré la variation d’indice présentée précédemment. Un diamètre de fibre de 20 μm a été choisi, ainsi qu’un diamètre de 30, 50 et 150 μm . Les résultats sont présentés avec la Figure V.4 pour ces diamètres avec également la dispersion matériau.

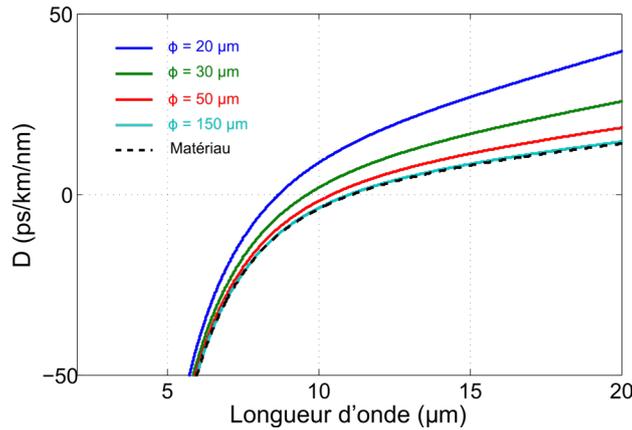


Figure V.4 – Profils de dispersion calculés du mode fondamental guidé pour un diamètre de fibre de 20, 30, 50 et 150 μm . Les pointillés noirs représentent la dispersion matériau.

Dans le cas de ce verre, le ZDW est très loin dans l'infrarouge, au-delà de 10 μm (plus exactement 11 μm). Ce ZDW est décalé jusqu'à 8,7 μm pour un diamètre de fibre de 20 μm . Un diamètre de waist de 10 μm serait nécessaire pour décaler ce ZDW à un niveau équivalent des verres Ge-Se-Te ou Te-As-Se (aux alentours de 7 μm). Concernant le nombre de modes LP_{0m} , il est de 72 à 7 μm pour un diamètre de 150 μm et passe à 10 pour un diamètre de 20 μm . À la longueur d'onde de 10 μm , le comportement est moins multimode avec 50 modes LP_{0m} supportés dans le diamètre de 150 μm et 7 pour le diamètre de 20 μm . Pour les deux longueurs d'onde, la réduction du diamètre de la fibre permet un filtrage significatif des modes d'ordre supérieur.

D'une manière équivalente aux verres Te-As-Se (Chapitre IV), il n'y a pas à ce jour de mesures de la valeur de n_2 pour un verre Ge-Te-AgI. Nous estimons alors de nouveau cette valeur en suivant la règle de Miller [28,29]. Le résultat est présenté avec la Figure V.5 en prenant les mêmes points de mesures pour différents verres de chalcogénures que dans le Chapitre IV. Pour rappel, la formule utilisée est la suivante pour un indice linéaire n [29]:

$$n_2 = 4,27 \times 10^{-16} \frac{(n^2 - 1)^4}{n^2} \text{cm}^2/\text{W} \quad (\text{V.2})$$

En prenant un indice $> 3,5$, nous estimons un indice non-linéaire n_2 d'une valeur de $6 \times 10^{-17} \text{m}^2/\text{W}$. C'est une valeur très élevée ($\sim 3,5 \times n_2$ pour un verre Te-As-Se, $\sim 7,3 \times n_2$ d'un verre Ge-Se-Te ou $\sim 2300 \times n_2$ d'un verre SiO_2), qui nécessiterait une mesure par la technique du Z-scan pour confirmer ou infirmer notre hypothèse [29,30]. L'indice linéaire étant bien plus élevé qu'un verre Te-As-Se, nous pouvons supposer que la non-linéarité est d'autant plus importante. Il n'est pas à exclure que cette valeur soit légèrement différente, notons que l'approximation réalisée avec l'Équation V.2 est habituellement utilisée pour des indices $n \leq 3$.

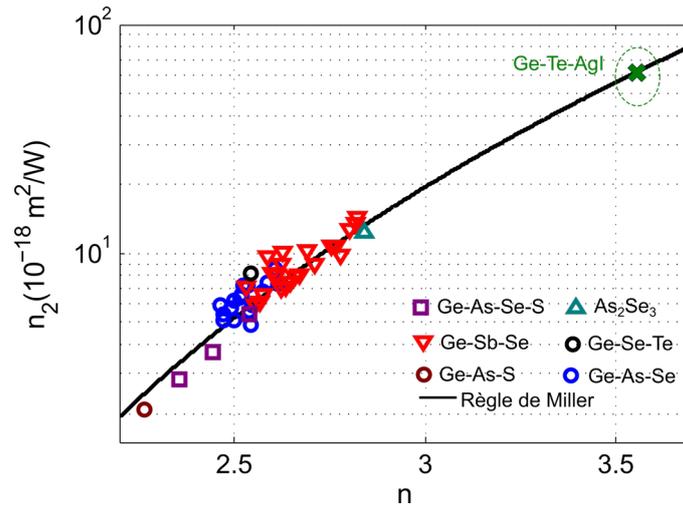


Figure V.5 - Variation de l'indice de réfraction non-linéaire n_2 (en échelle log) en fonction de l'indice linéaire n pour plusieurs compositions de chalcogénures dans différents systèmes vitreux. Les données proviennent de la Réf. [29]. L'indice non-linéaire pour la composition Ge-Se-Te est également ajouté. La courbe pour la règle de Miller en suivant l'équation (V.2) est également présentée. La zone où l'indice n_2 d'un verre Ge-Te-AgI pourrait se situer est présentée (en prenant +/- 20 % d'écart par rapport à la règle de Miller).

Pour la suite de cette étude, nous considérons cette valeur de n_2 pour le calcul du coefficient non-linéaire γ et donc pour les simulations numériques de génération de SC. L'évolution de γ en fonction de la longueur d'onde et pour les diamètres de 20, 30, 50 et 150 μm est illustrée avec la Figure V.6.

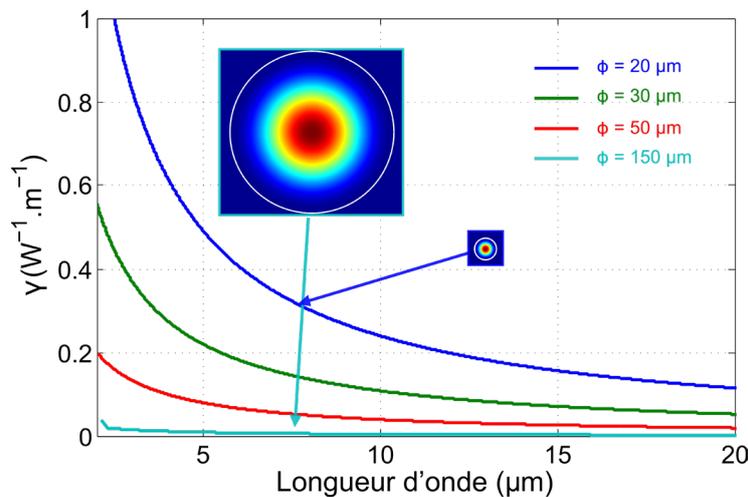


Figure V.6 – Courbes calculées du paramètre γ en fonction de la longueur d'onde pour les diamètres de 20, 30, 50 et 150 μm . Le mode fondamental guidé à 7 μm est également représenté pour les diamètres de 20 et 150 μm .

À la longueur d'onde de 7 μm , la non-linéarité est 55 fois plus importante dans un diamètre de 20 μm que pour un diamètre de 150 μm . Le confinement du mode est également très bon avec plus de 99,9 % à 7 μm , que ce soit dans le diamètre de 20 ou 150 μm . La distribution spatiale du mode fondamental guidé dans ces deux diamètres, à la longueur d'onde de 7 μm , est illustrée par les inserts sur la Figure V.6.

Les pertes optiques mesurées sur fibre mono-indice par la technique du cut-back sont illustrées avec la Figure V.7. Le fond continu est en-dessous de 5 dB/m sur la gamme 6-13 μm . La mesure d'atténuation au-delà de 15 μm n'étant pas possible à cause de la source lumineuse et de l'absorption

matériau, nous déduisons le coefficient d'absorption α (exprimé en cm^{-1}) à partir de la courbe de transmission du verre massif. Le coefficient α se détermine de la façon suivante à partir d'une épaisseur L et d'une transmission T :

$$\alpha = \frac{1}{L} \ln\left(\frac{1}{T}\right) \quad (\text{V.3})$$

La transmission du verre est mesurée sur un échantillon de 10,9 mm d'épaisseur, de 1,3 à 25 μm (voir Fig. V.1). Cette mesure ainsi que la prise en compte des réflexions de Fresnel, nous permet de reconstruire une courbe complète des pertes de la fibre, comme le montre la Figure V.7 (b). Les valeurs sont en bon accord avec la mesure réalisée sur fibre.

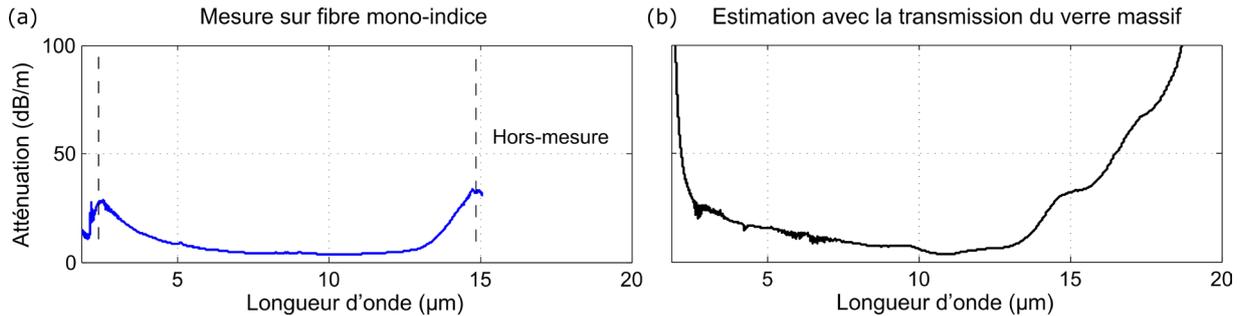


Figure V.7 – (a) Courbe d'atténuation mesurée par la technique du cut-back sur fibre mono-indice Ge-Te-AgI et (b) atténuation estimée à partir de la transmission du verre massif Ge-Te-AgI (10,9 mm d'épaisseur).

2.3 Études de génération de supercontinuum

2.3.1 Génération de SC dans un verre massif Ge-Te-AgI

Dans un premier temps, un barreau de verre massif a été utilisé. Pour optimiser le couplage, les faces d'entrée et de sortie ont été polies. Ce barreau de verre possède les caractéristiques suivantes ($L=1$ cm et diamètre 5,7 mm). Le spectre SC mesuré est présenté sur la Figure V.8 dans le cas d'un pompage à 7 μm , à une cadence de répétition de 143 kHz. Avec une dynamique de 30 dB, nous mesurons un spectre s'étendant de 3 μm à 13,7 μm . La puissance moyenne en sortie du verre massif est de 29 mW, ce qui nous permet d'estimer une puissance crête d'environ 790 kW.

Rappelons que lors du couplage d'une impulsion intense dans un matériau transparent, la puissance crête doit dépasser une puissance critique P_{cr} pour que l'autofocalisation apparaisse. Pour ce type de verre, nous pouvons estimer sa puissance critique à $P_{cr} = 35$ kW ($n_0 = 3,482$ et $n_2 = 6 \times 10^{-17}$), en suivant la formule $P_{cr} = 1,86 \lambda^2 / (4\pi n_0 n_2)$ pour la longueur d'onde de 7 μm [31]. Dans notre cas, le spectre enregistré est obtenu pour une puissance crête presque 23 fois supérieure à cette puissance critique. Le phénomène d'autofocalisation peut donc se produire lors de la propagation de l'impulsion laser et participer à la dynamique d'élargissement de l'impulsion. Ce résultat confirme que cette composition semble efficace pour la génération de SC dans l'infrarouge moyen sur des longueurs centimétriques.

En effet, le ZDW est loin dans l'infrarouge (~ 11 μm , voir Fig. V.4). Le pompage à 7 μm se situe donc loin dans le régime de dispersion normale du matériau et pourtant, le spectre est déjà conséquent. Ce résultat s'inscrit dans la continuité des résultats obtenus dans le laboratoire sur des verres massifs [32]. Cependant dans ces études, les échantillons étaient épais de ~ 4 mm, et la chaîne laser travaillait à la cadence de 1 kHz, avec d'importantes énergies d'impulsions de l'ordre de ~ 10 μJ , permettant d'avoir des puissances crêtes très élevées (~ 23 ou 46 MW soit plusieurs centaines de fois la P_{cr} des matériaux étudiés). L'utilisation de cette chaîne laser de forte puissance crête avec un échantillon de Ge-Te-AgI d'une épaisseur plus fine (de l'ordre de 5 mm) pourrait probablement générer un spectre bien plus étendu et couvrir la transparence du matériau jusqu'à plus de 20 μm .

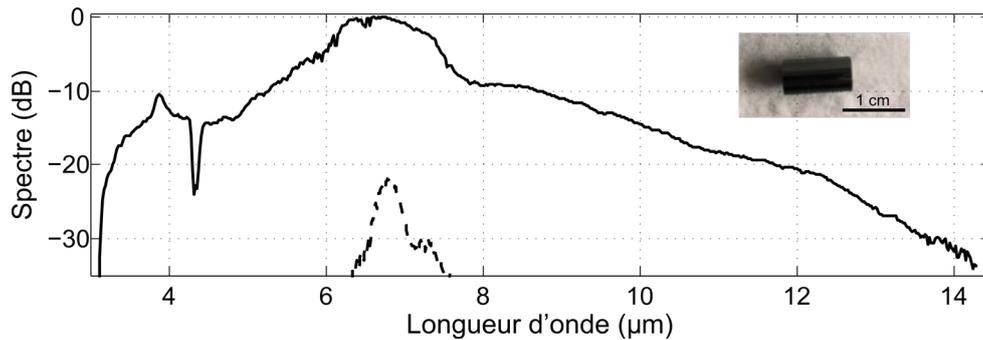


Figure V.8 – Spectre SC mesuré expérimentalement en pompant à 7 μm dans un verre massif de Ge-Te-AgI ($P_{\text{out}} = 29 \text{ mW}$, cadence de répétition 143 kHz). La photographie de l'échantillon est également présentée.

2.3.2 Génération de SC dans une fibre mono-indice non effilée Ge-Te-AgI

Pour la suite, nous avons testé les fibres mono-indices avec le même montage expérimental que précédemment. Les résultats obtenus dans le cas du pompage à 7 μm avec une fibre mono-indice non effilée de 150 μm de diamètre externe et de longueur 4 cm, à la cadence de 50 kHz sont illustrés avec la Figure V.9. La lentille utilisée dans ces expériences possède une longueur focale de 40 mm.

L'évolution de l'élargissement spectral en fonction de la puissance crête est également étudiée via différentes densités. Pour la puissance crête la plus importante, nous relevons un SC allant d'environ 4 μm jusqu'à 12,7 μm pour une dynamique de 30 dB. L'élargissement spectral devient de plus en plus limité avec la diminution de la puissance crête, avec tout de même un spectre allant de 4,5 μm à 10 μm pour 150 kW de puissance crête couplée. Nous utilisons également l'équation de Schrödinger non-linéaire généralisée (GNLSE) pour vérifier nos différents résultats (voir Fig. V.9 (b)). Les puissances crêtes utilisées dans les simulations proviennent des puissances moyennes mesurées en sortie de fibre (272 kW, 150 kW et 27 kW).

Les résultats numériques sont en accord avec les spectres mesurés expérimentalement. Nous notons toujours un élargissement moins important côté courtes longueurs d'onde en simulation pour les puissances crêtes 272 kW et 150 kW, soit les deux puissances supérieures à la puissance critique de 35 kW. Le phénomène d'autofocalisation devant probablement apparaître lors de la propagation de l'impulsion, le couplage spontané important de l'énergie dans les modes d'ordre supérieur avec la forme typique en X doit se dérouler avec notamment l'élargissement aux courtes longueurs d'onde dû à ces modes d'ordre supérieur (voir Chapitre III (2.2.)) [33,34].

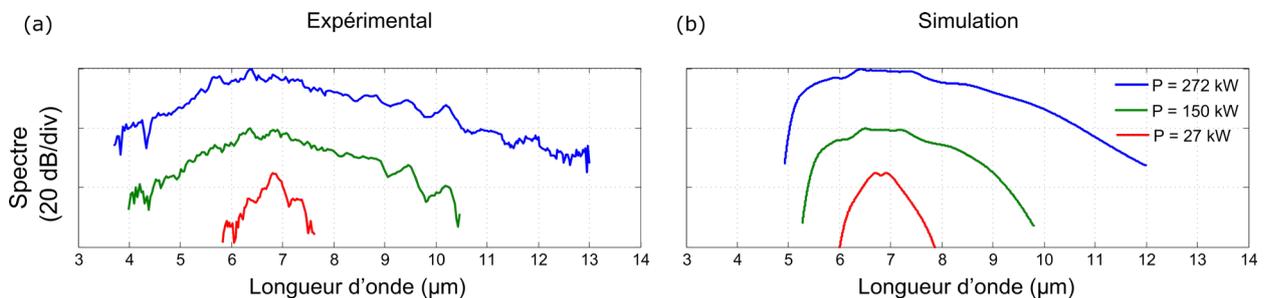


Figure V.9 – (a) Spectres SC mesurés expérimentalement en pompant à 7 μm dans une fibre mono-indice Ge-Te-AgI de 4 cm de longueur et 150 μm de diamètre externe pour différentes puissances crêtes. (b) Simulations numériques correspondantes.

La Figure V.10 présente le spectre avec la largeur spectrale la plus optimisée en pompant une fibre de 4 cm de long en Ge-Te-AgI à 7 μm pour la même cadence de 50 kHz. A -20 dB, le bord du SC dans l'infrarouge moyen est situé à 13,7 μm (soit plus que pour la puissance de 272 kW (Fig. V.9), plus loin que pour le verre massif à -20 dB pour une puissance de 790 kW (Fig. V.8)). Le spectre

obtenu est donc large, même avec un pompage loin du ZDW dans le régime de dispersion normale. Le creux dans le spectre entre 10 et 11 μm est dû à la formation de solitons au-delà du ZDW, renforçant notre valeur estimée à 11 μm . La puissance couplée importante (506 kW) permet de maximiser les différents effets non-linéaires et de transférer assez d'énergie de l'autre côté du ZDW [35]. Pour cette mesure, une lentille de 20 mm de focale a été utilisée mais nous avons relevé des dommages significatifs sur plusieurs échantillons avec l'usage de cette optique.

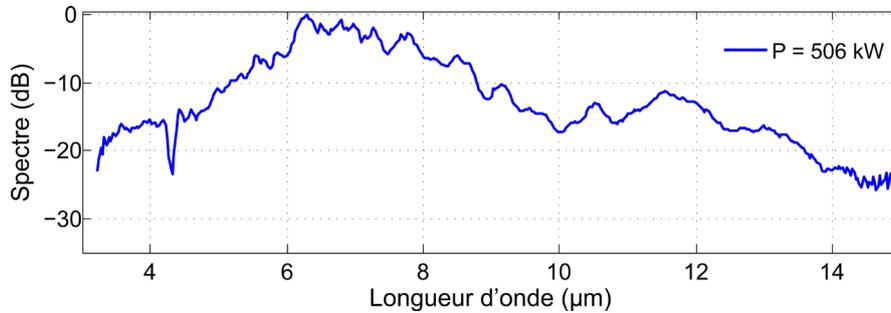


Figure V.10 - Spectre SC mesuré expérimentalement le plus optimisé en pompant à 7 μm dans une fibre Ge-Te-AgI de 150 μm de diamètre externe.

La même fibre que pour l'étude en puissance crête (Fig. V.9) a été utilisée pour une nouvelle étude, cette fois en fonction de la longueur d'onde de pompe laser (cadence de 50 kHz). Les résultats obtenus sont illustrés par la Figure V.11. Nous constatons que la largeur totale du SC n'évolue pas significativement avec l'augmentation de la longueur d'onde de la pompe laser. Cette faible variation peut s'expliquer par le fait que la puissance de la pompe laser diminue lorsque la longueur d'onde augmente, comme nous pouvons le constater avec la puissance crête estimée à partir de la puissance moyenne en sortie de fibre (272 kW, 130 kW et 80 kW).

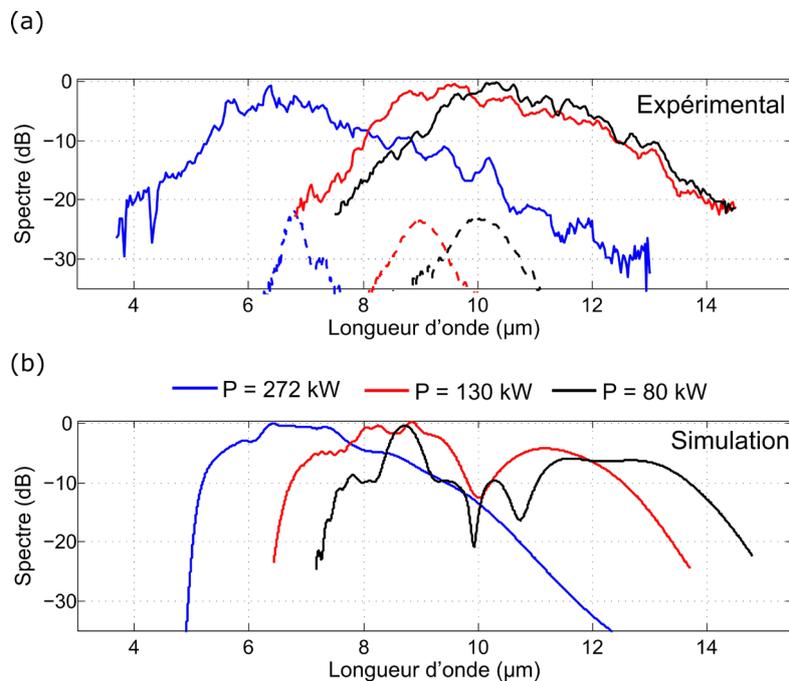


Figure V.11 – (a) Spectres SC mesurés expérimentalement en pompant à différentes longueurs d'onde ($\lambda_p = 7, 9$ et $10 \mu\text{m}$) la fibre Ge-Te-AgI de 4 cm de long et de diamètre externe 150 μm . (b) Spectres SC calculés dans les mêmes conditions. Les puissances crêtes utilisées en simulation sont également indiquées.

Les élargissements spectraux numériques sont en accord avec les résultats expérimentaux. Nous pouvons identifier avec nos mesures que la différence de largeur spectrale entre la pompe à 9 μm et celle à 10 μm n'est pas significative. Un bon compromis pour pomper nos fibres plus proches du ZDW, tout en couplant une puissance crête importante, serait de travailler avec la longueur d'onde pompe de 9 μm .

Les résultats obtenus dans les fibres non effilées sont encourageants car les spectres obtenus vont loin dans l'infrarouge au-delà de 12 μm , en comparant par exemple avec le spectre obtenu dans une fibre mono-indice non effilée Te-As-Se de 150 μm de diamètre en pompant à 7 μm (Fig. IV.11 (a)). Pour rappel, le SC dans la fibre TAS non effilée allait de 3 μm à 12 μm . L'élargissement est donc comparable à celui obtenu avec la fibre Ge-Te-AgI, malgré un pompage loin du ZDW.

L'utilisation de fibre effilée avec ce verre est toute indiquée pour générer un spectre le plus loin dans l'infrarouge. Nous avons donc tenté de fabriquer des fibres effilées avec différents diamètres de waist, mais sans résultats significatifs. En effet, nous n'avons pas pu obtenir une longueur de fibre importante pour établir les différents paramètres nécessaires à l'étirement de la fibre (vitesse d'étirement ou encore puissance du filament). Il semble également que ce verre soit sensible à la cristallisation avec le chauffage, rendant compliqué le post-traitement d'étirement de la fibre. Une étude plus approfondie avec une quantité plus importante de fibre permettrait probablement de fabriquer des fibres effilées de façon optimale.

2.4 Perspectives avec des fibres effilées Ge-Te-AgI

Cette partie a pour but de se projeter sur les perspectives possibles dans la génération de SC dans des fibres Ge-Te-AgI effilées. Après avoir validé que le modèle basé sur GNLSE associé aux paramètres opto-géométriques des fibres Ge-Te-AgI (n_1 , n_2 , ZDW), donnait des résultats en bon accord avec l'expérience, nous nous sommes intéressés aux cas des fibres effilées. Nous étudions donc numériquement l'optimisation des caractéristiques d'une fibre effilée en utilisant la source femtoseconde, travaillant jusqu'au MHz, en particulier la largeur spectrale du SC ainsi que son extension dans l'infrarouge moyen et lointain.

Dans un premier temps, la pompe est fixée à 7 μm (comme pour les résultats expérimentaux de la Figure V.9 et V.10) et la puissance crête utilisée est de 150 kW. Au vu des résultats précédents dans les fibres effilées Ge-Se-Te et Te-As-Se, une différence de 50 % est généralement obtenue en comparaison à la fibre non effilée (cela dépend du caractère multimode de la fibre effilée). Le couplage de 150 kW dans une fibre effilée Ge-Te-AgI semble raisonnable vu le couplage obtenu dans la fibre non effilée (Fig. V.9 et Fig. V.10)). Pour les simulations suivantes, le profil de la fibre effilée est basé sur celui fabriqué généralement dans ce manuscrit de thèse, c'est-à-dire des longueurs de transition de 12,5 mm.

La Figure V.12 présente une cartographie de l'évolution du SC en faisant évoluer le diamètre du waist, mais également la longueur du waist. Notre étude considère des diamètres de waist entre 20 et 50 μm (diamètres fabriqués de façon usuelle au laboratoire sur d'autres fibres) et des longueurs de waist entre 10 et 40 mm. La plus grande largeur spectrale dans le domaine des fréquences ne correspondant pas obligatoirement au décalage le plus important dans l'infrarouge moyen, les Figures V.12 (a) & (c) illustrent ces deux paramètres respectivement pour une dynamique de 20 dB. La Figure V.12 (b) présente le critère de planéité du spectre qui est une autre propriété fondamentale de caractérisation d'un SC, représentant une densité spectrale de puissance constante le long du spectre). Une valeur de planéité spectrale au-delà de 0,6 correspond à des fluctuations de puissances faibles ou inférieures à 20 dB sur la largeur spectrale.

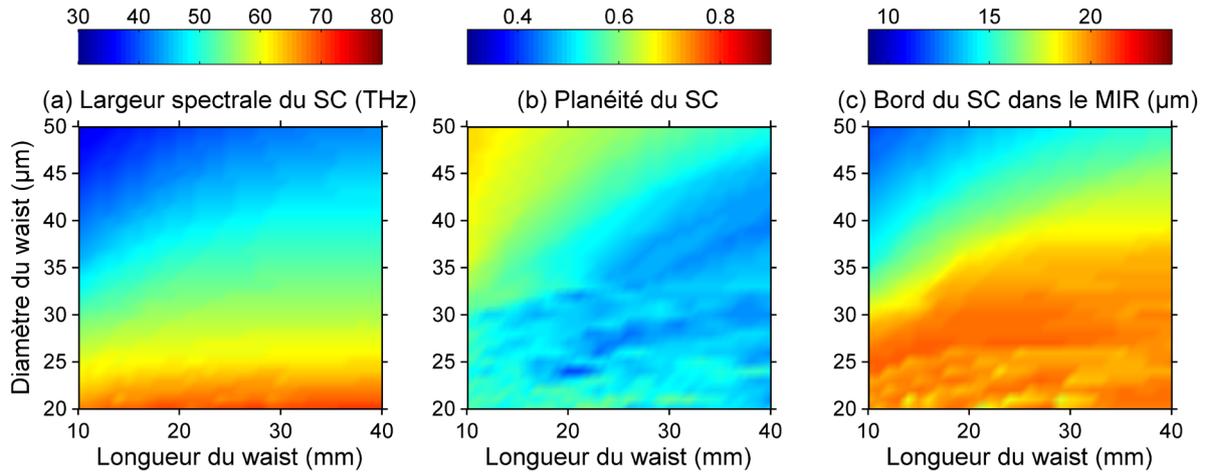


Figure V.12 – Étude numérique de l'impact du diamètre de waist en fonction de la longueur du waist sur (a) la largeur spectrale du SC à -20 dB en THz, (b) la planéité du SC et (c) le bord du spectre dans l'infrarouge moyen.

D'après la Fig. V.12 (a), nous déduisons que lors du pompage dans des fibres effilées avec des diamètres de waist importants ($\varnothing_{\text{waist}} > 35 \mu\text{m}$), l'élargissement spectral est plutôt limité à moins de 50 THz, avec un bord dans l'infrarouge aux alentours de $16 \mu\text{m}$ avec une légère amélioration si la longueur de waist est grande. C'est pour ces différentes valeurs de diamètres de waist ($\varnothing_{\text{waist}} > 35 \mu\text{m}$), que la planéité est globalement la plus haute ($> 0,6$) (Fig. V.12 (b)). La zone pour les diamètres compris entre 25 et 35 μm est intéressante car elle permet de générer des spectres plus loin dans l'infrarouge. Nous remarquons que si la longueur de waist est plus longue (jusqu'à 40 mm), nous pouvons avoir un bord de spectre franchissant la longueur d'onde de 20 μm , au détriment cependant de la planéité du spectre. Nous notons que pour des diamètres inférieurs à 25 μm , l'élargissement n'est pas plus conséquent. Nous pouvons attribuer cette différence probablement aux pertes élevées pour des longueurs d'onde au-delà de 20 μm , provoquant la dégradation de l'élargissement et de la planéité du spectre pour des longueurs de waist jusqu'à 40 mm (Fig. V.12 (b)).

Ces simulations numériques laissent donc penser qu'il y a une forte amélioration du SC possible, atteignant 20 μm en longueur d'onde, en fabriquant des fibres effilées. De plus, les diamètres utilisés (entre 50 et 20 μm) sont des diamètres que nous avons pu obtenir pour les autres verres présentés dans ce manuscrit. La puissance crête utilisée semble raisonnable au vu des résultats obtenus avec les fibres Ge-Te-AgI non effilées.

Nous pouvons prendre en exemple deux profils intéressants de fibres effilées. Une première fibre possède un diamètre de waist de 40 μm et une longueur du waist de 25 mm. Dans ce cas, la simulation indique un élargissement spectral s'approchant de 18 μm (voir Fig.V.13 (a)). Ce profil de fibre correspond au profil typique fabriqué dans les autres verres de ce manuscrit. La seconde fibre effilée est caractérisée par un diamètre de waist de 25 μm pour une longueur de waist de 10 mm. Avec ce profil, le spectre numérique est très large avec un bord dans l'infrarouge au-delà de 20 μm , permettant d'aller jusqu'à l'absorption multiphonon du verre, aux alentours de 22 μm .

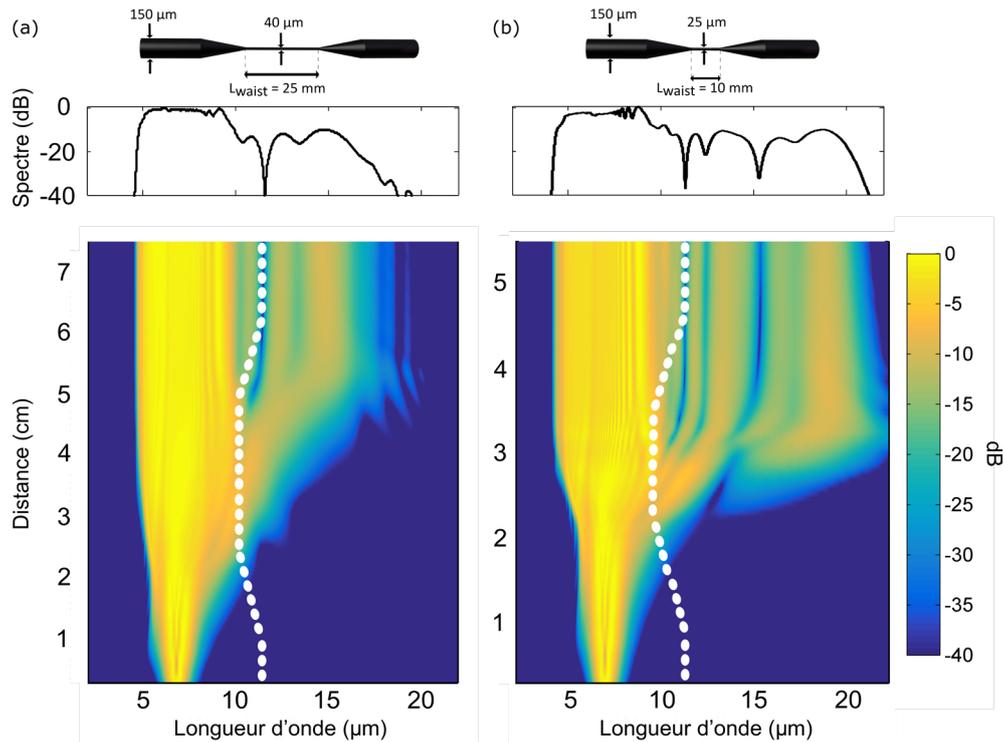


Figure V.13 – (a) Évolution de l’élargissement spectral avec la distance pour une pompe laser à 7 μm ($P_0 = 150 \text{ kW}$) dans une fibre effilée de 40 μm de diamètre de waist et de 25 mm de longueur de waist. (b) Évolution de l’élargissement spectral pour la même pompe laser dans une fibre effilée de 25 μm de diamètre de waist et de 10 mm de longueur de waist. Les profils, ainsi que les spectres en sortie de fibre sont présentés avec le cadran supérieur. La position du ZDW le long de la fibre est illustrée avec les ronds blancs.

Une nouvelle cartographie est effectuée avec un pompage à 9 μm et une puissance crête injectée de 100 kW. Cette configuration nous permet de pomper de façon plus proche du ZDW. Cependant la dynamique générale obtenue est équivalente à celle de la Figure V.12. Nous décidons donc pour la suite d’illustrer deux résultats obtenus avec des fibres effilées (Figure V.14). La première fibre simulée a un diamètre de waist de 50 μm et une longueur de 30 mm. La génération de SC est efficace avec un bord dans l’infrarouge moyen (à -20 dB) vers 20 μm , un spectre avec une valeur de planéité de 0,52, et une largeur spectrale totale de près de 15 μm . Un pompage dans une fibre de ce type faciliterait des mesures de spectroscopie d’absorption sur toute la gamme spectrale d’intérêt (voir Fig. V.14 (a)). La deuxième fibre effilée présentée a un diamètre de waist de 30 μm et une longueur de waist de 20 mm. Cette fois, la planéité du spectre est plus faible avec une valeur de 0,43, mais l’élargissement spectral est plus conséquent. En effet, nous notons une amélioration du côté grandes longueurs d’onde, jusqu’à 21 μm mais également une amélioration côté courtes longueurs d’onde. Nous pouvons donc probablement obtenir une source avec une largeur spectrale de 17 μm dans une fibre de ce type avec un pompage à 9 μm . Les résultats obtenus par simulation numérique permettent de confirmer l’intérêt de la fabrication de fibres effilées avec le verre Ge-Te-AgI. En effet, nous pourrions envisager la génération d’un spectre très large dans l’infrarouge, avec le franchissement de la longueur d’onde de 20 μm dans une fibre optique pompée directement par des impulsions fs situées entre 7 et 9 μm .

Les premières mesures effectuées dans nos fibres Ge-Te-AgI non effilées permettent d’identifier la forte non-linéarité de ces verres. En effet, malgré un pompage laser loin du ZDW, nous avons pu générer des spectres allant loin dans l’infrarouge (> 14 μm). Pour continuer cette étude, il faudrait maintenant réussir à fabriquer des fibres effilées et les tester avec nos sources lasers.

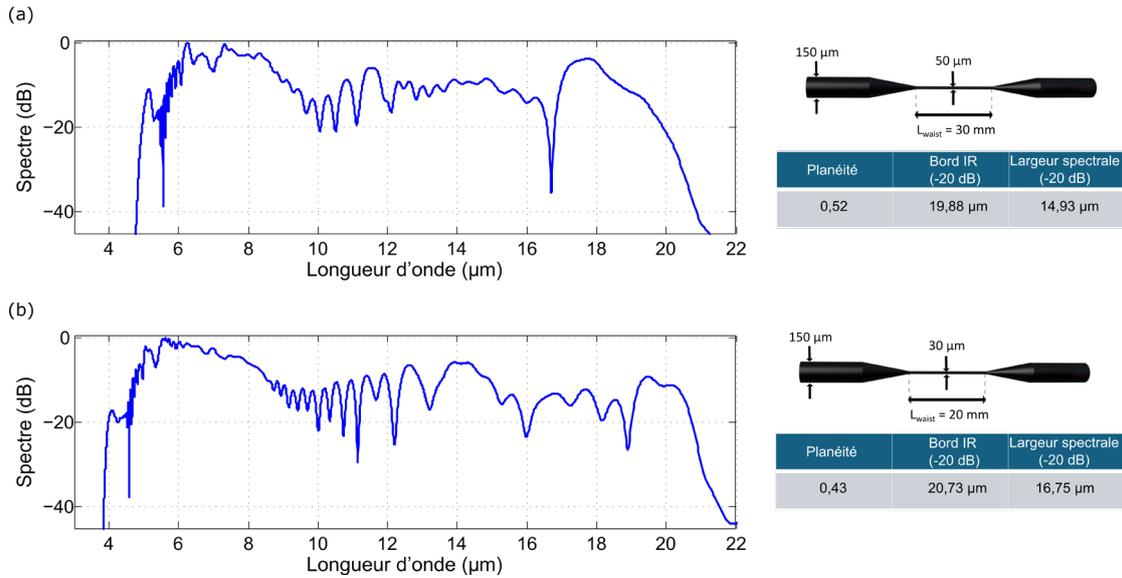


Figure V.14 – (a) Spectre SC numérique obtenu en pompant à 9 μm ($P_0 = 100$ kW) dans une fibre effilée de 50 μm de diamètre de waist et de longueur de waist 30 mm. (b) Spectre SC numérique obtenu pour la même pompe laser mais dans une fibre effilée de 30 μm de diamètre de waist et de longueur de waist 20 mm.

3) Applications en spectroscopie d'absorption dans l'infrarouge moyen

Nous avons pu montrer au cours de ce manuscrit, que l'utilisation d'une fibre effilée mono-indice permettait de générer efficacement un spectre SC dans l'infrarouge moyen et donc de réaliser une fonction non-linéaire. Dans cette partie, nous nous intéressons à des mesures de spectroscopie d'absorption par ondes évanescentes (FEWS) avec des fibres effilées avec une fonction linéaire. Nous avons décidé de travailler avec les fibres chalcogénures Te-As-Se présentées au Chapitre IV. Ces verres ayant déjà été étudiés dans la littérature dans différents dispositifs de spectroscopie. Le but est de combiner les fonctions non-linéaire (SC) et linéaire (FEWS) dans une seule fibre chalcogénure.

3.1 Spectroscopie d'absorption par ondes évanescentes (FEWS)

La spectroscopie d'absorption par ondes évanescentes (FEWS) dans l'infrarouge moyen est une méthode d'analyse en plein essor. Cette méthode est basée sur l'acquisition du spectre d'absorption d'une fibre en contact avec un analyte (liquide, poudre ou gaz). En effet, dans le cas d'une fibre mono-indice (l'air jouant le rôle de gaine) le champ évanescent, qui accompagne la propagation guidée, se forme à l'interface entre le guide d'onde et le milieu environnant (analyte). Ce phénomène va ainsi mener à des absorptions sélectives du milieu (voir Fig. V.15). Les premières études menées avec des fibres optiques datent des années 1980 [36–38]. Depuis, plusieurs travaux ont utilisés des fibres chalcogénures pour faire des mesures de spectroscopie d'absorption [11,12,16,39–41].

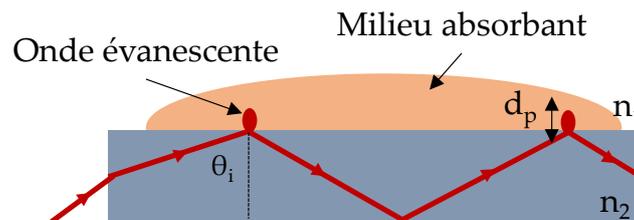


Figure V.15 – Schéma d'ondes évanescentes dans un guide d'indice n_2 en contact avec un milieu d'indice n_1 .

Le montage expérimental pour ce type de mesure nécessite, une source de lumière infrarouge, une fibre optique et enfin un détecteur sensible dans l'infrarouge (FT-IR, MCT, analyseur de spectre optique...). Le principe consiste à enregistrer le spectre initial avant la mise en contact du milieu absorbant. Ensuite, un nouveau spectre est enregistré avec le milieu absorbant, permettant d'obtenir la transmission relative. Le spectre d'absorption de l'analyte est obtenu par le calcul suivant, avec I_s l'intensité avec le milieu absorbant et I_0 la référence :

$$A(\lambda) = -\log(I_s/I_0) \quad (V.4)$$

La sensibilité de la mesure peut être augmentée en jouant sur certains paramètres. Le premier paramètre est la distance de pénétration de l'onde évanescente d_p [42]. En effet, le champ électrique E décroît de façon exponentielle dans le milieu absorbant, en suivant la relation $E = E_0 e^{-z/d_p}$ avec d_p la distance de pénétration. Cette distance est liée à l'indice n_2 du guide, n_1 l'indice du milieu absorbant, θ_i l'angle d'incidence du rayon et λ la longueur d'onde de la façon suivante :

$$d_p = \frac{\lambda}{2\pi\sqrt{n_2^2 \sin^2 \theta_i - n_1^2}} \quad (V.5)$$

Globalement, d_p est de l'ordre de la longueur d'onde incidente. Ceci signifie que la fibre présente une meilleure sensibilité avec l'augmentation de la longueur d'onde, due à l'augmentation de la distance de pénétration et donc de la partie évanescente des modes d'ordre supérieur guidés. Il est donc intéressant de travailler loin dans l'infrarouge, d'autant que les résonances fondamentales des liaisons chimiques des espèces organiques sont situées dans l'infrarouge moyen.

En raisonnant avec de l'optique géométrique, une autre façon d'augmenter la sensibilité est d'augmenter le nombre de réflexions internes N , permettant plus d'absorptions aux interfaces guide/milieu absorbant [43]. Ce nombre de réflexions N est lié à L , la longueur de contact entre la fibre et le milieu absorbant, θ_i l'angle d'incidence du rayon et d le diamètre de la fibre :

$$N = \frac{L \times \tan(90 - \theta_i)}{d} \quad (V.6)$$

Nous pouvons identifier avec cette formule que la sensibilité du système varie de façon proportionnelle avec la longueur d'immersion L et $1/d$. La réduction du diamètre de la fibre avec une section effilée permettra d'améliorer la sensibilité du système.

Plusieurs études ont été menées pour concevoir les fibres optiques avec le plus de sensibilité possible dans l'infrarouge moyen [41,42]. Les principaux profils utilisés sont des fibres effilées, des fibres en « U » ou encore des fibres effilées enroulées. Comme présenté au Chapitre IV, les fibres Te-As-Se ont été étudiées dans la littérature dans de nombreuses applications, dont notamment pour la détection d'éléments comme du sang ou encore de l'éthanol [44–47]. Dans les travaux cités, les fibres sont généralement effilées avec un diamètre de waist autour de 100 μm . Cette valeur de diamètre représente un compromis entre exacerbation de l'évanescence et de la quantité de signal. Des travaux récents ont étudié les capteurs linéaires FEWS avec des fibres mono-indices chalcogénures multimodes pour l'infrarouge moyen [43,48–50].

3.2 Matériels et méthodes

Pour ces mesures FEWS, la source laser utilisée est celle travaillant jusqu'au MHz disponible à l'ICB. Le montage expérimental est illustré avec la Figure V.16. Les mesures ont pu être effectuées avec deux configurations. La première consiste à déposer des gouttes du liquide à analyser directement sur le support où la fibre effilée est installée (Fig. V.16 (a)). Dans un deuxième temps, nous utilisons une fibre TAS avec deux sections effilées dont une des sections est immergée dans un récipient avec le liquide analyte (Fig. V.16 (b)). La cadence du laser est fixée à 100 kHz et la longueur d'onde pompe à 7 μm , afin d'avoir en sortie de fibre une puissance moyenne détectable ($> 1 \text{ mW}$).

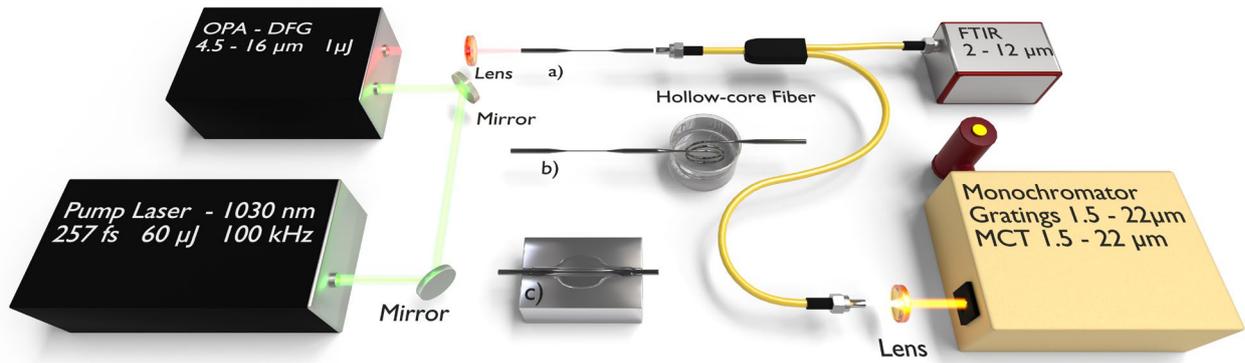


Figure V.16 – Montage expérimental utilisé pour les mesures de spectroscopie d'absorption par ondes évanescentes.

Les fibres effilées TAS ont pu être mises en forme avec la plateforme Vytran (GPX 3400), présentée au Chapitre II. Plusieurs diamètres de waist ont pu être obtenus, entre 150 μm et 25 μm généralement. Pour cette étude, deux types de fibres effilées ont été mises en forme. La première consiste en un profil « classique » avec une longueur totale de 5 cm et un diamètre de waist de 25 μm . Ce profil de fibre effilée permet de générer des SC efficacement (voir Chapitre IV).

Le deuxième profil fabriqué est lui, composé de deux sections effilées. Ce travail de mise en forme a été étudié particulièrement par D. Bailleul au sein du laboratoire. Cette conception permet d'obtenir simultanément deux fonctions optiques sur une seule et même fibre, avec un post-traitement d'étirement de la fibre approprié. Une première fonction optique est utilisée pour la conversion non-linéaire de fréquence et une deuxième fonction servant de capteur linéaire FEWS. La fabrication de cette fibre est plus complexe et doit se faire en trois temps. Dans un premier temps, nous étirons une fibre TAS (longueur de plus de 10 cm) pour obtenir une première section effilée. Ensuite, l'étape d'étirement d'une nouvelle section effilée est réalisée plus loin sur la fibre. La dernière étape consiste à venir enrouler une section effilée autour d'un élément chauffant cylindrique. Le diamètre d'enroulement est de l'ordre de 7 mm. Cet enroulement de la fibre permet d'obtenir une plus grande longueur d'interaction avec l'analyte [42,48,51].

La Figure V.17 présente une photographie d'une fibre TAS avec les deux sections effilées. Dans cet exemple, la première section effilée a un diamètre de waist de 25 μm et la deuxième, un diamètre de 100 μm .

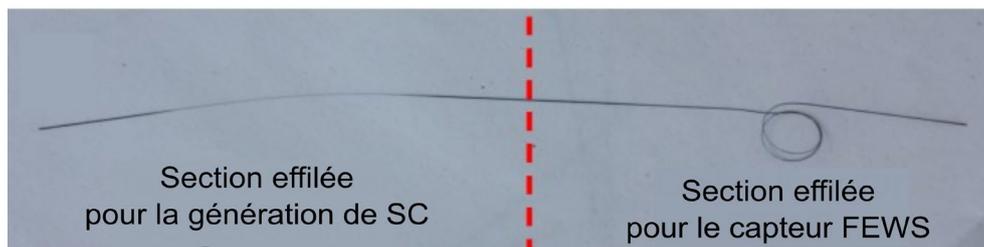


Figure V.17 – Photographie d'une fibre TAS avec deux sections effilées. La première section de 25 μm de waist est nécessaire pour la génération de SC. La deuxième section effilée (100 μm de waist) est enroulée (diamètre de 7 mm) et sert comme capteur linéaire FEWS. La longueur totale de la fibre est d'environ 10 cm.

3.3 Résultats

3.3.1 FEWS avec une fibre effilée

Les premiers tests avec l'analyte directement sur la fibre effilée ont été réalisés en utilisant de l'acétone. La fibre mesure 5 cm de long et a un diamètre de waist de 25 μm . Le spectre obtenu en sortie de fibre sans analyte est présenté avec la courbe en pointillés noirs sur la Figure V.19. Le spectre s'étend d'environ 4,5 μm à 10 μm , pour une dynamique de 20 dB, avec une puissance moyenne en sortie de fibre de l'ordre de 5 mW.

La courbe rouge représente le spectre SC enregistré directement après le dépôt d'une goutte d'acétone sur la section effilée. Nous pouvons voir que les principales absorptions de l'acétone (courbe en pointillés bleus) sont identifiables avec notre fibre effilée jouant le rôle de source MIR et de capteur FEWS. Il faut préciser que pour cette mesure, l'absorption significative la plus loin dans l'infrarouge étant située avant 8,5 μm , il n'y a pas eu un travail minutieux pour générer le spectre le plus large possible au-delà de 10 μm . La pompe laser étant située à 7 μm , nous choisissons pour la suite d'effectuer ces mesures avec un autre liquide analyte possédant une absorption caractéristique plus loin dans l'infrarouge moyen. Notre choix se porte sur un mélange eau/éthanol ($\text{C}_2\text{H}_6\text{O}$). En effet, l'éthanol présente une absorption forte et large entre 9 et 10 μm à cause des liaisons C-O au sein des alcools [13,52].

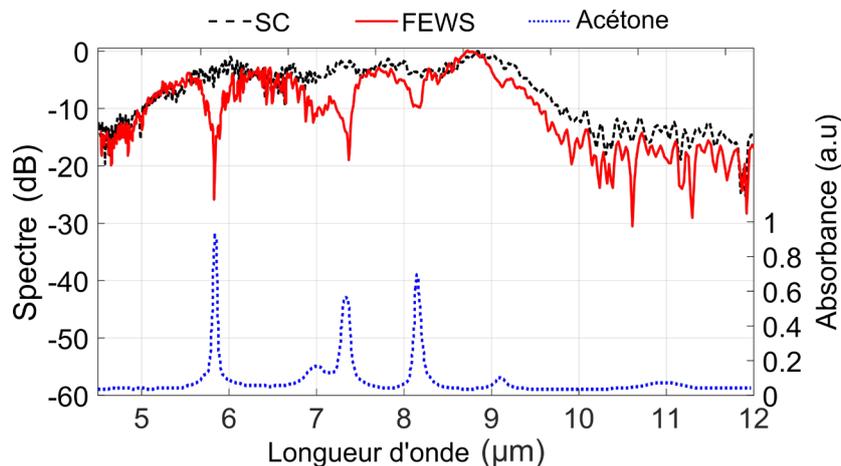


Figure V.18 – Spectres SC mesurés expérimentalement en pompant à 7 μm une fibre TAS effilée de 25 μm de diamètre de waist. La courbe noire correspond au spectre avant dépôt d'une goutte d'acétone. Le spectre en rouge est enregistré après le dépôt de la goutte. La courbe d'absorption de l'acétone (d'après la base de données *Spectrabase*) est également présentée (points bleus).

Pour cette mesure, nous utilisons une nouvelle fibre TAS effilée avec un diamètre de 25 μm . L'élargissement est cette fois plus optimisé, avec une limite du SC vers 11 μm , pour une dynamique de 10 dB (Fig. V.19). La puissance moyenne en sortie de fibre est équivalente (~ 7 mW). Le mélange utilisé est composé de 75 % en volume d'éthanol et 25 % d'eau. La double absorption entre 9 et 10 μm est clairement identifiable, contrairement à l'absorption entre 11 et 12 μm . Nous pouvons expliquer cette différence avec le rapport signal/bruit plus faible au-delà de 11 μm de notre source SC, mais également par une forte absorption du signal (notamment à 9,5 μm) provoquant la diminution de l'intensité après 10 μm .

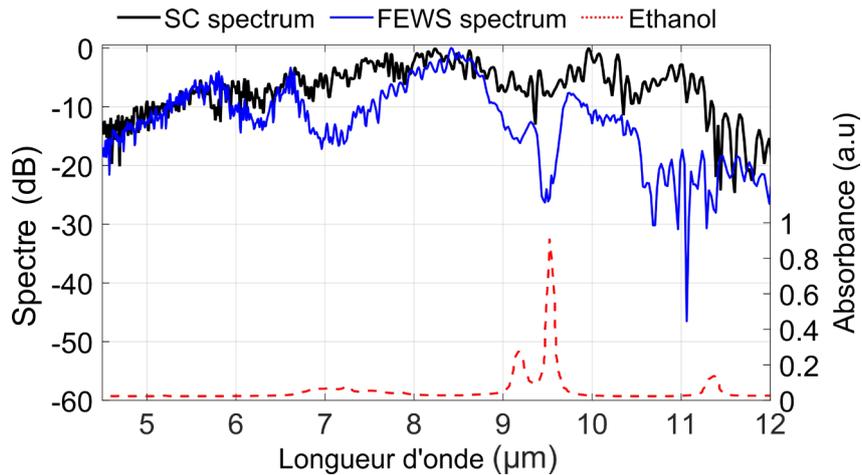


Figure V.19 - Spectres SC mesurés expérimentalement en pompant à 7 μm une fibre TAS effilée de 25 μm de diamètre de waist. La courbe noire correspond au spectre avant dépôt d'une goutte du mélange $\text{H}_2\text{O}/\text{EtOH}$ (25:75 vol.%). Le spectre en bleu est enregistré après le dépôt de la goutte. La courbe d'absorption de l'éthanol (d'après la base de données Spectrabase) est également présentée.

D'autres mesures ont été effectuées avec une concentration plus faible d'éthanol jusqu'à 25 % en volume. Cependant, les résultats n'ont pas été significatifs, la distinction des bandes d'absorption étant plus compliquée. Les inconvénients de cette méthode avec le dépôt de la goutte directement sur la fibre effilée sont nombreux. La surface de contact n'est pas la plus optimale et le SC enregistré en tant que référence peut être modifié considérablement. En effet, les conditions initiales d'injection peuvent être modifiées par l'ajout du liquide directement sur la section effilée de 25 μm .

La stabilité spectrale du SC au cours du temps est également un point important à considérer afin d'améliorer notre application à la spectroscopie. Cette question de stabilité spectrale est d'ailleurs en plein essor dans les travaux sur des sources SC fibrées [15,53–56]. Récemment, Zorin *et al.* [15] ont pu caractériser la stabilité spectrale de plusieurs sources SC (1-4 μm) commerciales, reposant sur des fibres fluorures, et les comparer à une source corps noir. Les résultats démontrent que les variations sont faibles, mais supérieures aux variations mesurées avec une source corps noir. Ces fluctuations du signal des sources SC ont tendance à diminuer avec l'augmentation de la cadence de répétition. Les principales sources commerciales permettent de travailler de 250 kHz à 50 MHz.

La Figure V.20 (a) présente les résultats tracés de manière équivalente à la Réf. [15] pour plusieurs spectres SC références avec la fibre effilée de 25 μm (Fig. V.19). Dans ce cas, nous présentons ici 15 spectres enregistrés à la suite. Les variations d'acquisition à acquisition ne sont pas négligeables. Nous pouvons identifier qu'entre 5,3 et 11 μm (largeur spectrale du SC référence pour une dynamique de 10 dB (Fig. V.20 (b)), ces variations évoluent globalement entre -0,2 et 0,2 (en unités d'absorbance). Nous notons des variations entre -0,1 et 0,1 sur la gamme spectrale située entre 6,5 et 9 μm , soit la région proche de l'impulsion pompe. Entre 9 et 10 μm , soit la zone d'intérêt pour l'absorption de l'éthanol, les variations sont plus importantes. Cette variabilité au cours du temps est une des raisons limitant la sensibilité de notre mesure, avec des concentrations plus faibles en éthanol. Les différentes régions spectrales, où le spectre SC expérimental est en-dessous de 10 dB, sont également illustrées. C'est notamment dans ces régions que les variations sont les plus élevées.

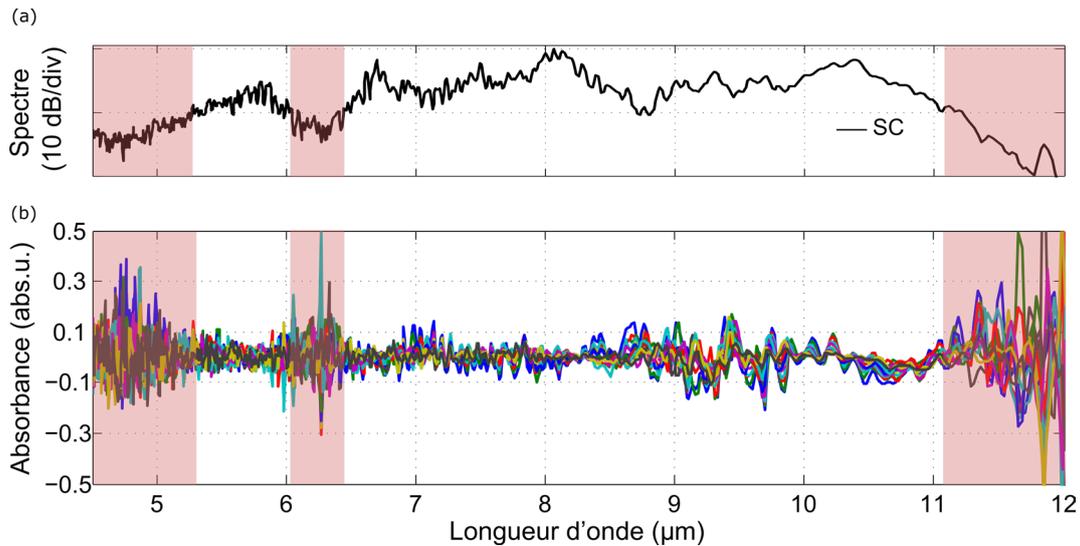


Figure V.20 – (a) Spectre SC mesuré expérimentalement en pompant à 7 μm . (b) Courbes d'absorbance déterminées à partir des mesures effectuées au FT-IR Arcoptix du SC référence (sans déposition du mélange eau/éthanol). Les zones encadrées en rose représentent les régions spectrales où le spectre SC a une dynamique au-dessus de 10 dB.

3.3.2 FEWS avec fibre double fonction

De nouvelles mesures sont effectuées avec le mélange eau/éthanol (25 :75 % vol.) mais cette fois, en utilisant une fibre à double fonction optique. Dans cette configuration, la première section effilée, servant à la génération de SC, est fixée sur un support classique. Nous supposons pour la suite que nos conditions d'injection ne sont pas modifiées, lors des mesures de spectroscopie. La deuxième section effilée peut être plongée dans un récipient contenant le liquide analyte. Une photographie du montage expérimental est présentée en Figure V.21.

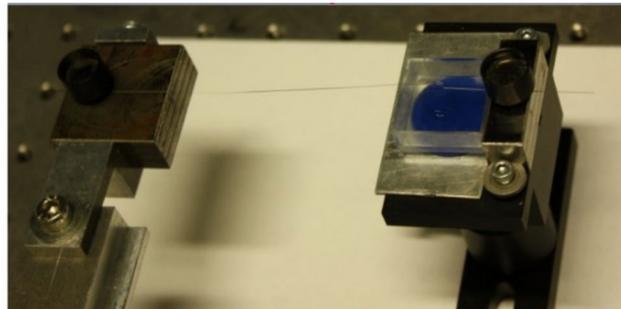


Figure V.21 – Photographie du montage expérimental avec la fibre à deux sections effilées. La première section effilée (à gauche) est fixée sur un support et permet la génération de SC. La deuxième section (à droite) peut être plongée entièrement dans un récipient contenant le liquide analyte.

L'optimisation du SC est réalisée pour les mêmes conditions de pompage que précédemment. Un spectre allant de 5 à 12 μm est obtenu pour une dynamique de 20 dB. Nous supposons donc que les pertes dues au segment effilé et enroulé sont négligeables. La partie capteur FEWS (second segment) est ensuite immergée dans le liquide pour la mesure. La transmission relative mesurée est comparée à celle théorique obtenue à partir de la base de données *Spectrabase* [57] (Figure V.22 (a)).

La Figure V.22 (b) illustre les résultats pour des diamètres de capteurs FEWS entre 50 et 150 μm . Il convient de préciser que chacune des trois courbes de la Figure V.22 (b), correspond à trois fibres différentes. Dans les trois cas, le diamètre de la section effilée pour la génération de SC est de

25 μm . Dans chaque cas, le SC obtenu en sortie de la fibre de 10 cm de longueur, est optimisé pour avoir une largeur spectrale équivalente. La comparaison est toutefois possible, car les courbes de la Figure V.22 correspondent aux transmissions relatives. Le diamètre de 50 μm pour le capteur FEWS permet également d'identifier la double absorption entre 9 et 10 μm . A l'inverse, au diamètre de 150 μm , nous pouvons voir principalement le pic d'absorption situé à 9,5 μm .

Le choix du diamètre de la section effilée du capteur linéaire FEWS, semble être une question de compromis entre le nombre de modes d'ordre supérieur et d'optimisation avec les boucles [58]. Un diamètre plus fin permet de réaliser plus de boucles mais avec moins de modes d'ordre supérieur. Or ces modes sont importants pour la détection. Romanova et al. [50] démontrent que les modes d'ordre supérieur ont des coefficients d'atténuation plus importants que les modes d'ordre inférieur, en raison de la plus grande distance de pénétration des modes d'ordre supérieur dans le milieu absorbant. Dans une autre étude, les mêmes auteurs démontrent que les modes d'ordre supérieur HE_{1m} sont plus sensibles au rayon de courbure de la fibre que les modes d'ordre inférieur [48]. Pour rappel, dans une fibre TAS de 150 μm , le nombre de modes LP_{0m} est de 59 contre 10 dans un diamètre de 25 μm (voir Chapitre IV). Le diamètre de la fibre effilée avec boucles ne doit donc pas être très fin, pour avoir toujours un nombre important de modes d'ordre supérieur améliorant la sensibilité FEWS.

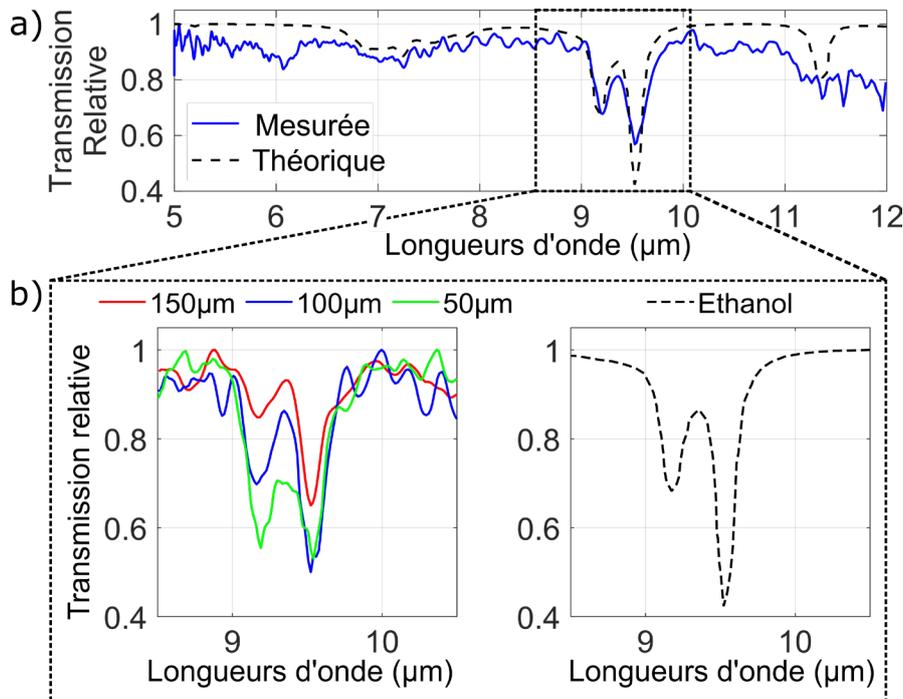


Figure V.22 – (a) Courbe de transmission relative en fonction des longueurs d'onde pour le spectre enregistré après avoir plongé la fibre effilée (100 μm de diamètre de waist) dans le mélange $\text{H}_2\text{O}/\text{EtOH}$ (25:75 vol.%). La courbe noire correspond à la transmission relative théorique. (b) Courbes des transmissions relatives pour 3 diamètres de capteurs FEWS (50, 100 et 150 μm). Ces courbes sont également comparées avec la transmission relative théorique à droite.

Une approche numérique complète, concernant la propagation des modes évanescents dans nos fibres optiques multimodes entourées d'un milieu absorbant, permettrait d'identifier plus clairement le compromis idéal entre le nombre de modes et la taille du diamètre de la partie effilée. Cette étude pourrait être associée à des mesures expérimentales, où un SC généré indépendamment avec une forte puissance (dans une fibre Ge-Se-Te par exemple) serait injecté en « butt-coupling » dans une section effilée à boucles. Dans cette configuration, il serait possible de tester encore plus de profils (diamètres, nombre de boucles, longueurs...).

3.4 Perspectives des mesures FEWS

Les résultats démontrent la possibilité de générer un SC dans l'infrarouge et d'avoir dans la continuité de la fibre, un capteur FEWS. Nos mesures permettent de détecter l'absorption de l'éthanol entre 9 et 10 μm . Bien entendu, la sensibilité de ces mesures est encore faible. Comme nous avons pu le constater, la stabilité spectrale de nos SC n'est pas optimale. Une des raisons peut être la relative faible puissance moyenne en sortie de fibre ($P_{\text{moy}} < 10 \text{ mW}$). En effet, l'augmentation de la cadence de répétition du laser pourrait être une solution pour améliorer le rapport signal/bruit [15]. Cependant, nos mesures de spectroscopie ont été réalisées avec les fibres en Te-As-Se. Nous avons noté les mêmes problèmes d'endommagements, avec l'augmentation de la puissance moyenne, qu'au Chapitre IV. Nous pourrions par la suite, réaliser des mesures FEWS équivalentes mais avec les fibres Ge-Se-Te, avec lesquelles, de fortes puissances moyennes ont pu être obtenues. Concernant la stabilité spectrale, une étude en fonction de la longueur d'onde de pompe pourrait être effectuée. En effet, en dispersion normale, les dynamiques d'auto-modulation de phase (SPM) et d'optical wave breaking (OWB), sont moins sensibles à l'amplification du bruit, conduisant à un SC avec une cohérence ainsi qu'une stabilité plus élevée [55]. Une autre solution possible serait de fonctionnaliser la surface de la fibre. Ce revêtement permettrait de favoriser l'adhésion à la surface de la fibre, des molécules que l'on cherche à détecter. Il y a donc une augmentation de la concentration au voisinage de la fibre, ce qui permet de détecter ces molécules avec une très bonne sensibilité.

La méthode de détection pourrait également être améliorée. Ici, notre mesure est assez sommaire. Un spectre référence au temps t_0 est comparé au spectre avec analyte, à un temps $t_0 + t$ (t en secondes). Une solution possible serait d'avoir deux détecteurs et de comparer en parallèle chaque acquisition (soit au même temps t_0). Nous pourrions ainsi nous affranchir de l'évolution du SC dans le temps. L'utilisation de coupleurs permettrait également de réaliser cette méthode d'acquisition [59–61]. Plusieurs travaux font état de différents systèmes, comme une détection balancée pour Abbas *et al.* [54], ou un système interférométrique comme celui présenté récemment par Zorin *et al.* [62].

4) Conclusion

Nous avons vu dans ce chapitre qu'il était possible de générer des spectres SC, dans des fibres non effilées en Ge-Te-AgI. Ce verre ayant un indice linéaire élevé ($n > 3$), la longueur d'onde de dispersion nulle est située loin dans l'infrarouge, vers 11 μm . Malgré un pompage en fort régime de dispersion normale, nos fibres ont permis d'obtenir des spectres SC s'étendant jusqu'à 14 μm . Nous n'avons pas pu obtenir expérimentalement des fibres effilées avec ce verre, faute de la faible stabilité thermique de cette composition (forte tendance à cristalliser) et du faible nombre d'échantillons dont nous disposions. Néanmoins, des simulations numériques ont été effectuées. Nous démontrons ainsi que l'effilement des fibres Ge-Te-AgI permet de générer des SC qui présentent un fort potentiel en terme d'élargissement spectral dans le MIR, en particulier pour atteindre des longueurs d'onde situées au-delà de 20 μm .

Dans une deuxième partie, nous avons mis en place des mesures de spectroscopie d'absorption par ondes évanescentes, via des fibres effilées multimodes en Te-As-Se. La fabrication d'une fibre optique avec deux sections effilées pour deux fonctions optiques différentes a été étudiée, avec notamment, l'absorption de l'éthanol entre 9 et 10 μm . Ces résultats fournissent une preuve de concept, avec une fibre qui permet à la fois de générer un SC et de fonctionner en tant que capteur FEWS. Pour parvenir à une sensibilité plus importante de notre système, un travail est nécessaire sur la stabilité spectrale du SC dans le temps mais également à la puissance moyenne du SC généré. Une concaténation d'une fibre Ge-Se-Te pour générer un SC avec une puissance moyenne de l'ordre de $\sim 100 \text{ mW}$, et d'une fibre enroulée Ge-Te-AgI ou Te-As-Se serait également un moyen pour réaliser des mesures de spectroscopie.

Bibliographie

1. K. H. Michaelian, Q. Wen, B. E. Billingham, J. M. Shaw, and V. Lastovka, "Far- and mid-infrared photoacoustic spectra of tetracene, pentacene, perylene and pyrene," *Vibrational Spectroscopy* **58**, 50–56 (2012).
2. F. Cataldo, D. A. García-Hernández, and A. Manchado, "Far- and mid-infrared spectroscopy of complex organic matter of astrochemical interest: coal, heavy petroleum fractions and asphaltene," *Monthly Notices of the Royal Astronomical Society* **429**, 3025–3039 (2013).
3. W. H. Fan, A. Burnett, P. C. Upadhyaya, J. Cunningham, E. H. Linfield, and A. G. Davies, "Far-infrared spectroscopic characterization of explosives for security applications using broadband terahertz time-domain spectroscopy," *Appl Spectrosc* **61**, 638–643 (2007).
4. A. R. W. McKellar, "High-resolution infrared spectroscopy with synchrotron sources," *Journal of Molecular Spectroscopy* **262**, 1–10 (2010).
5. S. S. Dhillon, M. S. Vitiello, E. H. Linfield, A. G. Davies, M. C. Hoffmann, J. Booske, C. Paoloni, M. Gensch, P. Weightman, G. P. Williams, E. Castro-Camus, D. R. S. Cumming, F. Simoens, I. Escorcia-Carranza, J. Grant, S. Lucyszyn, M. Kuwata-Gonokami, K. Konishi, M. Koch, C. A. Schmuttenmaer, T. L. Cocker, R. Huber, A. G. Markelz, Z. D. Taylor, V. P. Wallace, J. A. Zeitler, J. Sibik, T. M. Korter, B. Ellison, S. Rea, P. Goldsmith, K. B. Cooper, R. Appleby, D. Pardo, P. G. Huggard, V. Krozer, H. Shams, M. Fice, C. Renaud, A. Seeds, A. Stöhr, M. Naftaly, N. Ridler, R. Clarke, J. E. Cunningham, and M. B. Johnston, "The 2017 terahertz science and technology roadmap," *J. Phys. D: Appl. Phys.* **50**, 043001 (2017).
6. Y. E. Khoury and P. Hellwig, "Far infrared spectroscopy of hydrogen bonding collective motions in complex molecular systems," *Chem. Commun.* **53**, 8389–8399 (2017).
7. W. Gao, W. Dai, Z. Zheng, K. Chen, Y. Chu, Q. Luo, X. Wang, K. Zhang, S. Huang, Y. Zhou, W. Fang, X. Chen, X. Ma, and M. Liao, "Simulation and analysis of supercontinuum generation in the waveband up to 25 μm ," *Appl. Opt.* **61**, 6697 (2022).
8. S. Md. Salimullah and M. Faisal, "Ultra-wideband and coherent supercontinuum generation (near and mid-infrared) in dispersion flattened ZnGeP2 photonic crystal fiber," *Alexandria Engineering Journal* **70**, 289–300 (2023).
9. M. Diouf, A. Wague, and M. Zghal, "Numerical investigation of an ultra-broadband coherent mid-infrared supercontinuum in a chalcogenide AsSe₂-As₂S₅ multimaterial photonic crystal fiber," *J. Opt. Soc. Am. B, JOSAB* **36**, A8–A14 (2019).
10. V. Ruddy, B. D. MacCraith, and J. A. Murphy, "Evanescent wave absorption spectroscopy using multimode fibers," *Journal of Applied Physics* **67**, 6070–6074 (1990).
11. S. Maurugeon, B. Bureau, C. Boussard-Plédel, A. J. Faber, P. Lucas, X. H. Zhang, and J. Lucas, "Selenium modified GeTe₄ based glasses optical fibers for far-infrared sensing," *Optical Materials* **33**, 660–663 (2011).
12. S. Korsakova, E. Romanova, A. Velmuzhov, T. Kotereva, M. Sukhanov, and V. Shiryaev, "Peculiarities of the mid-infrared evanescent wave spectroscopy based on multimode chalcogenide fibers," *Journal of Non-Crystalline Solids* **475**, 38–43 (2017).
13. P. Chevalier, M. Piccardo, G.-M. de Naurois, I. Gabay, A. Katzir, and F. Capasso, "In-water fiber-optic evanescent wave sensing with quantum cascade lasers," *Sensors and Actuators B: Chemical* **262**, 195–199 (2018).
14. D. Littlejohn, D. Lucas, and L. Han, "Bent Silica Fiber Evanescent Absorption Sensors for Near-Infrared Spectroscopy," *Appl. Spectrosc., AS* **53**, 845–849 (1999).
15. I. Zorin, P. Gattinger, A. Ebner, and M. Brandstetter, "Advances in mid-infrared spectroscopy enabled by supercontinuum laser sources," *Opt. Express* **30**, 5222 (2022).
16. S. Cui, C. Boussard-Plédel, J. Lucas, and B. Bureau, "Te-based glass fiber for far-infrared biochemical sensing up to 16 μm ," *Opt. Express* **22**, 21253 (2014).
17. C. Conseil, J.-C. Bastien, C. Boussard-Plédel, X.-H. Zhang, P. Lucas, S. Dai, J. Lucas, and B. Bureau, "Te-based chalcogenide glasses for far-infrared optical fiber," *Opt. Mater. Express* **2**, 1470 (2012).
18. D. Le Coq, S. Cui, C. Boussard-Plédel, P. Masselin, E. Bychkov, and B. Bureau, "Telluride glasses with far-infrared transmission up to 35 μm ," *Optical Materials* **72**, 809–812 (2017).

19. S. Cui, "Synthesis and characterization of tellurium based glasses for far infrared sensing and thermoelectric applications," Thèse de l'Université de Rennes 1 (2014).
20. S. Ding, Z. Liu, S. Dai, C. Liu, and Z. Cao, "Novel acousto-optic material based on Ge-Te-AgI chalcogenide glasses," *Ceramics International* **47**, 12072–12077 (2021).
21. Z. Zhao, B. Wu, X. Wang, Z. Pan, Z. Liu, P. Zhang, X. Shen, Q. Nie, S. Dai, and R. Wang, "Mid-infrared supercontinuum covering 2.0-16 μm in a low-loss telluride single-mode fiber: Mid-infrared supercontinuum covering 2.016 μm in a low-loss telluride single-mode fiber," *Laser & Photonics Reviews* **11**, 1700005 (2017).
22. V. S. Shiryayev, A. P. Velmuzhov, M. F. Churbanov, A. D. Plekhovich, C. Boussard-Plédel, J. Troles, C. Conseil, and V. G. Plotnichenko, "Preparation and investigation of high purity Ge–Te–AgI glasses for optical application," *Journal of Non-Crystalline Solids* **377**, 1–7 (2013).
23. J. Sun, Q. Nie, X. Wang, S. Dai, X. Zhang, B. Bureau, C. Boussard, C. Conseil, and H. Ma, "Structural investigation of Te-based chalcogenide glasses using Raman spectroscopy," *Infrared Physics & Technology* **55**, 316–319 (2012).
24. X. Wang, Q. Nie, G. Wang, J. Sun, B. Song, S. Dai, X. Zhang, B. Bureau, C. Boussard, C. Conseil, and H. Ma, "Investigations of Ge–Te–AgI chalcogenide glass for far-infrared application," *Spectrochimica Acta Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy* **86**, 586–589 (2012).
25. P. Jóvári, S. Cui, V. Nazabal, I. Kaban, B. Beuneu, M. Dussauze, C. Boussard-Plédel, and B. Bureau, "Network Rearrangement in AgI-Doped GeTe₄ Glasses," *J. Am. Ceram. Soc.* **98**, 1034–1039 (2015).
26. S. Cui, D. Le Coq, C. Boussard-Plédel, and B. Bureau, "Electrical and optical investigations in Te–Ge–Ag and Te–Ge–AgI chalcogenide glasses," *Journal of Alloys and Compounds* **639**, 173–179 (2015).
27. D. Hollenbeck and C. D. Cantrell, "Multiple-vibrational-mode model for fiber-optic Raman gain spectrum and response function," *J. Opt. Soc. Am. B* **19**, 2886 (2002).
28. R. W. Boyd, *Nonlinear Optics, Third Edition* (Academic Press, Inc., 2008).
29. T. Wang, X. Gai, W. Wei, R. Wang, Z. Yang, X. Shen, S. Madden, and B. Luther-Davies, "Systematic z-scan measurements of the third order nonlinearity of chalcogenide glasses," *Opt. Mater. Express* **4**, 1011 (2014).
30. F. Smektala, C. Quemard, V. Couderc, and A. Barthélémy, "Non-linear optical properties of chalcogenide glasses measured by Z-scan," *Journal of Non-Crystalline Solids* **274**, 232–237 (2000).
31. A. Couairon and A. Mysyrowicz, "Femtosecond filamentation in transparent media," *Physics Reports* **441**, 47–189 (2007).
32. O. Mouawad, P. Béjot, P. Mathey, P. Froidevaux, A. Lemièrre, F. Billard, B. Kibler, F. Désévéday, G. Gadret, J.-C. Jules, O. Faucher, and F. Smektala, "Expanding up to far-infrared filamentation-induced supercontinuum spanning in chalcogenide glasses," *Appl. Phys. B* **124**, 182 (2018).
33. B. Kibler and P. Béjot, "Discretized Conical Waves in Multimode Optical Fibers," *Phys. Rev. Lett.* **126**, 023902 (2021).
34. K. Stefańska, P. Béjot, K. Tarnowski, and B. Kibler, "Experimental Observation of the Spontaneous Emission of a Space–Time Wavepacket in a Multimode Optical Fiber," *ACS Photonics* **10**, 727–732 (2023).
35. J. M. Dudley, G. Genty, and S. Coen, "Supercontinuum generation in photonic crystal fiber," *Rev. Mod. Phys.* **78**, 1135–1184 (2006).
36. P. W. France, S. F. Carter, M. W. Moore, J. R. Williams, and C. R. Day, "Properties Of Fluorozirconate Fibres For Applications In The 0.5 To 4.5 μm Region," in *Infrared Optical Materials and Fibers V* (SPIE, 1987), Vol. 0843, pp. 56–61.
37. S. Simhony, E. M. Kosower, and A. Katzir, "Fourier transform infrared spectra of aqueous protein mixtures using a novel attenuated total internal reflectance cell with infrared fibers," *Biochemical and Biophysical Research Communications* **142**, 1059–1063 (1987).
38. D. A. C. Compton, S. L. Hill, N. A. Wright, M. A. Drury, J. Piche, W. A. Stevenson, and D. W. Vidrine, "In Situ FT-IR Analysis of a Composite Curing Reaction Using a Mid-Infrared Transmitting Optical Fiber," *Appl Spectrosc* **42**, 972–979 (1988).

39. C. Yang, X. Wang, J. Su, and S. Dai, "Spectroscopy analysis of mixed organic liquid detection with Ge₂₀Se₆₀Te₂₀ glass-tapered fiber," *Journal of Non-Crystalline Solids* **500**, 377–381 (2018).
40. B. Bureau, C. Boussard, S. Cui, R. Chahal, M. L. Anne, V. Nazabal, O. Sire, O. Loréal, P. Lucas, V. Monbet, J.-L. Doualan, P. Camy, H. Tariel, F. Charpentier, L. Quetel, J.-L. Adam, and J. Lucas, "Chalcogenide optical fibers for mid-infrared sensing," *Opt. Eng* **53**, 027101 (2014).
41. V. S. Shiryaev, A. P. Velmuzhov, T. V. Kotereva, E. A. Tyurina, M. V. Sukhanov, and E. V. Karaksina, "Recent Achievements in Development of Chalcogenide Optical Fibers for Mid-IR Sensing," *Fibers* **11**, 54 (2023).
42. Y. Raichlin and A. Katzir, "Fiber-Optic Evanescent Wave Spectroscopy in the Middle Infrared," *Appl Spectrosc* **62**, 55A-72A (2008).
43. A. P. Velmuzhov, M. V. Sukhanov, T. V. Kotereva, N. S. Zernova, V. S. Shiryaev, E. V. Karaksina, B. S. Stepanov, and M. F. Churbanov, "Optical fibers based on special pure Ge₂₀Se₈₀ and Ge₂₆As₁₇Se₂₅Te₃₂ glasses for FEWS," *Journal of Non-Crystalline Solids* **517**, 70–75 (2019).
44. S. Hocde, O. Loreal, O. Sire, B. Turlin, C. Boussard-Plédel, D. L. Coq, B. Bureau, G. Fonteneau, C. Pigeon, P. Leroyer, and J. Lucas, "Biological tissue infrared analysis by chalcogenide glass optical fiber spectroscopy," in *Biomonitoring and Endoscopy Technologies* (SPIE, 2001), Vol. 4158, pp. 49–56.
45. P. Lucas, G. J. Coleman, C. Cantoni, S. Jiang, T. Luo, B. Bureau, C. Boussard-Plédel, J. Troles, and Z. Yang, "Chalcogenide glass sensors for bio-molecule detection," in *Optical Fibers and Sensors for Medical Diagnostics and Treatment Applications XVII* (SPIE, 2017), Vol. 10058, pp. 146–159.
46. M.-L. Anne, C. Le Lan, V. Monbet, C. Boussard-Plédel, M. Ropert, O. Sire, M. Pouchard, C. Jard, J. Lucas, J. L. Adam, P. Brissot, B. Bureau, and O. Loréal, "Fiber evanescent wave spectroscopy using the mid-infrared provides useful fingerprints for metabolic profiling in humans," *J. Biomed. Opt.* **14**, 054033 (2009).
47. J. Keirsse, C. Boussard-Plédel, O. Loréal, O. Sire, B. Bureau, P. Leroyer, B. Turlin, and J. Lucas, "IR optical fiber sensor for biomedical applications," *Vibrational Spectroscopy* **32**, 23–32 (2003).
48. E. A. Romanova, S. V. Korsakova, A. G. Rozhnev, A. P. Velmuzhov, T. V. Kotereva, M. V. Sukhanov, and V. S. Shiryaev, "Chalcogenide fiber loop probe for the mid-IR spectroscopy of oil products," *Opt. Express* **28**, 5267 (2020).
49. S. V. Korsakova, E. A. Vinogradova, E. A. Romanova, and V. S. Shiryaev, "Using Higher-Order Modes of Chalcogenide Optical Fibers for the Optimization of Evanescent Wave Mid-IR Spectroscopy," *Tech. Phys. Lett.* **45**, 489–493 (2019).
50. E. A. Romanova, S. Korsakova, M. Komanec, T. Nemecek, A. Velmuzhov, M. Sukhanov, and V. S. Shiryaev, "Multimode Chalcogenide Fibers for Evanescent Wave Sensing in the Mid-IR," *IEEE J. Select. Topics Quantum Electron.* **23**, 289–295 (2017).
51. P. Houizot, M.-L. Anne, C. Boussard-Plédel, O. Loréal, H. Tariel, J. Lucas, and B. Bureau, "Shaping of Looped Miniaturized Chalcogenide Fiber Sensing Heads for Mid-Infrared Sensing," *Sensors* **14**, 17905–17914 (2014).
52. E. K. Plyler, "Infrared spectra of methanol, ethanol, and n-propanol," *J. RES. NATL. BUR. STAN.* **48**, 281 (1952).
53. I. Zorin, J. Kilgus, K. Duswald, B. Lendl, B. Heise, and M. Brandstetter, "Sensitivity-Enhanced Fourier Transform Mid-Infrared Spectroscopy Using a Supercontinuum Laser Source," *Appl Spectrosc* **74**, 485–493 (2020).
54. M. A. Abbas, K. E. Jahromi, M. Nematollahi, R. Krebbers, N. Liu, G. Woyessa, O. Bang, L. Huot, F. J. M. Harren, and A. Khodabakhsh, "Fourier transform spectrometer based on high-repetition-rate mid-infrared supercontinuum sources for trace gas detection," *Opt. Express, OE* **29**, 22315–22330 (2021).
55. M. Klimczak, G. Soboń, R. Kasztelanic, K. M. Abramski, and R. Buczyński, "Direct comparison of shot-to-shot noise performance of all normal dispersion and anomalous dispersion supercontinuum pumped with sub-picosecond pulse fiber-based laser," *Sci Rep* **6**, 19284 (2016).
56. U. Møller, S. T. Sørensen, C. Jakobsen, J. Johansen, P. M. Moselund, C. L. Thomsen, and O. Bang, "Power dependence of supercontinuum noise in uniform and tapered PCFs," *Opt. Express, OE* **20**, 2851–2857 (2012).
57. "Spectrabase," <https://spectrabase.com/>.

58. Y. Zhao, "Infrared tapered fiber ring sensor for environmental detection of organic pollutants," *Sensors and Actuators* (2024).
59. M. Rezaei and M. Rochette, "All-chalcogenide single-mode optical fiber couplers," *Opt. Lett.*, OL **44**, 5266–5269 (2019).
60. M. Rezaei, M. H. M. Shamim, M. E. Amraoui, Y. Messaddeq, and M. Rochette, "Nonlinear chalcogenide optical fiber couplers," *Opt. Express*, OE **30**, 20288–20297 (2022).
61. O. Benderov, I. Nechepurenko, B. Stepanov, T. Tebeneva, T. Kotereva, G. Snopatin, I. Skripachev, M. Spiridonov, and A. Rodin, "Broadband mid-IR chalcogenide fiber couplers," *Appl. Opt.* **58**, 7222 (2019).
62. I. Zorin, P. Gattinger, G. Ricchiuti, B. Lendl, B. Heise, and M. Brandstetter, "All-mirror wavefront division interferometer for mid-infrared spectrometry," *Pré-Publication Arxiv* (May 28, 2024).

Conclusion générale

Conclusion générale

Ce manuscrit rapporte les travaux de recherche effectués dans le cadre de cette thèse portant sur la génération de supercontinuum (SC) dans des fibres optiques, pour l'infrarouge moyen. Les principales expériences de ce manuscrit ont été dédiées à la génération de SC dans des fibres effilées multimodes. Le but étant de coupler le maximum de puissance possible dans la fibre pour maximiser les effets non-linéaires. Les résultats de ce dispositif simple sont concluants et confirmés dans plusieurs systèmes vitreux et sur des gammes spectrales différentes.

Les généralités concernant les fibres optiques pour la génération de SC dans l'infrarouge moyen ont pu être présentées avec le Chapitre I. Au cours du Chapitre II, nous avons présenté les différentes techniques et dispositifs expérimentaux utilisés dans ces travaux de recherche. Ainsi, les caractérisations du banc de mesure de SC ont été présentées, de même que la fabrication et la mise en forme d'une fibre effilée chalcogénure. Enfin, les outils numériques nécessaires pour modéliser nos SC ont été énoncés.

Une première série de mesures a été effectuée avec des fibres Ge-Se-Te (GST). Ces fibres ont permis d'obtenir des SC jusqu'à plus de 15 μm , avec une source laser de forte puissance crête mais également avec une forte puissance moyenne. Le dispositif avec une fibre effilée GST, ainsi qu'une source de forte puissance moyenne, permet de générer des spectres facilitant des mesures de spectroscopie dans l'infrarouge moyen. Nous avons pu travailler jusqu'au MHz avec les fibres GST, permettant de délivrer une puissance moyenne supérieure à 100 mW. Ces travaux réalisés avec les fibres GST remettent à jour l'état de l'art international de ce domaine. La deuxième composition de chalcogénure utilisée (Te-As-Se (TAS)) permet de bénéficier d'une non-linéarité plus importante. Cependant, au vu des expériences menées sur plusieurs échantillons de fibres, cette composition semble plus sensible à l'augmentation de la puissance moyenne. L'utilisation de simples fibres effilées mono-indices a été testée également avec des fibres tellurites ou de silice (moins non-linéaires que les fibres chalcogénures). Les résultats vont également dans le même sens, avec des SC couvrant toute la fenêtre de transmission des différentes fibres. Il est à noter, que la source laser utilisée dans le cas des fibres tellurites ou de silice, est une source avec une puissance crête élevée ($P_0 > 1 \text{ MW}$). Les perspectives sont donc plus limitées avec des sources laser commerciales moins puissantes.

Les résultats expérimentaux obtenus dans les différentes fibres multimodes utilisées au cours des chapitres III et IV, ont été comparés à des simulations numériques basées sur l'équation de Schrödinger non-linéaire généralisée. Bien que cette modélisation repose sur la seule propagation du mode fondamental, nous avons pu obtenir un bon accord avec nos fibres multimodes, lorsque le couplage était optimisé dans le mode fondamental de la fibre. Des analyses plus approfondies sur le comportement multimode pourraient être obtenues en utilisant une modélisation du type MM-UPPE.

Dans le dernier chapitre, nous avons présenté des premiers résultats de génération de SC dans des fibres non effilées multimodes en Ge-Te-AgI (TGAgI). Il a été montré que nous pouvions obtenir des spectres allant au-delà de 12 μm , malgré un ZDW très loin dans l'infrarouge, situé à 11 μm . Ces verres fortement non-linéaires semblent être une voie de recherche intéressante pour recouvrir la gamme spectrale totale de l'infrarouge moyen (2-20 μm). Comme nous avons pu identifier avec les chapitres précédents, l'utilisation d'une fibre effilée multimode permettrait de coupler la même puissance tout en maximisant les effets non-linéaires. Cependant, il n'a pas été possible pour l'instant de mettre en forme les fibres TGAgI en fibres effilées pour mener d'avantage d'investigations, suite à un très faible stock de ces fibres difficiles à fabriquer et à étirer. Une étude numérique a donc été menée pour estimer l'élargissement spectral possible avec ces fibres effilées TGAgI et la source laser disponible. Les résultats semblent indiquer que, pour des diamètres de waist en dessous de 50 μm , en fonction du profil et de la longueur d'onde pompe, des élargissements spectraux importants peuvent être obtenus afin d'atteindre la longueur d'onde de 20 μm , ouvrant de nouvelles possibilités intéressantes en spectroscopie.

Dans une dernière partie, nous avons mis en place des expériences de spectroscopie d'absorption par ondes évanescentes (FEWS). Les fibres utilisées sont des fibres effilées en Te-As-Se. Deux configurations ont été testées. Une première configuration correspond à un liquide analyte qui est directement déposé sur la section effilée de la fibre. Bien que les principales absorptions soient identifiables avec de l'acétone ou un mélange eau/éthanol, cette méthode n'est pas la plus appropriée.

Conclusion générale

En effet, les conditions initiales d'injection peuvent être perturbées après le dépôt du liquide, la surface de contact n'est pas optimale et l'enchaînement des mesures avec des concentrations différentes est compliqué. Une deuxième configuration a donc été mise en place avec une fibre effilée à deux fonctions optiques. Une première section effilée sert à la génération de SC, alors qu'une deuxième section effilée et enroulée sert de capteur linéaire FEWS. Dans cette configuration, nous pouvons immerger directement le capteur dans le liquide, avec une interaction améliorée avec le milieu absorbant. Des premières mesures permettent de distinguer clairement l'absorption entre 9 et 10 μm pour le mélange eau/éthanol (25:75 % vol.). La sensibilité de la mesure reste faible, mais des voies d'amélioration sont possibles notamment sur la stabilité du SC. Enfin, pour des mesures plus précises avec nos SC, un système de détection plus optimisé, que ce soit par un montage interférométrique ou avec deux détecteurs en parallèle, permettrait d'améliorer sensiblement la robustesse de nos mesures [1,2].

La liste des différents travaux publiés est présentée à la suite de cette conclusion générale.

En conclusion de ces travaux de recherche, plusieurs perspectives sont envisageables. Une première voie de recherche pourrait se focaliser sur la caractérisation des matériaux. Citons notamment les mesures d'indice de réfraction linéaire pour la composition Ge-Te-AgI, qui n'ont pas été encore effectuées sur la composition utilisée. De plus, la caractérisation de l'indice non-linéaire pour la composition Te-As-Se et Ge-Te-AgI, par la méthode du Z-scan [3] permettrait de confirmer ou infirmer nos estimations de n_2 par la relation de Miller.

Une deuxième voie de recherche concerne la mise en forme de fibres optiques spéciales. La fibre Ge-Te-AgI a un très fort potentiel pour générer un SC loin dans l'infrarouge moyen, sous la forme de fibre effilée. La possibilité d'obtention d'une longueur plus importante de fibre permettrait la fabrication de fibre effilée pour ces verres. Il pourrait également être intéressant de mettre en forme des fibres à saut d'indice avec un grand diamètre de cœur. Cette configuration serait ainsi équivalente à la fibre silice (Chapitre IV), c'est-à-dire, un diamètre de cœur de plus de 100 μm . Le confinement serait moins élevé mais permettrait de limiter le nombre de modes au niveau de la section initiale, mais également au niveau du waist. Les pertes par le filtrage spatial au sein de la fibre effilée seraient limitées, menant à une amélioration de la transmission et du profil spatial en sortie de fibre. Les problèmes liés à l'augmentation de la puissance pourraient également être étudiés de façon équivalente au développement des fibres à large aire effective [4]. Ce type de fibres permet de garder un comportement monomode ou faiblement multimode sur une gamme spectrale restreinte, par un contrôle adéquat de la différence d'indice, tout en réduisant les intensités optiques [5]. Par conséquent, un seuil d'endommagement plus élevé est atteint mais également une non-linéarité plus faible [6-8]. La mise en forme d'une fibre LMA effilée pourrait permettre d'augmenter les effets non-linéaires nécessaires à la génération de SC [9]. Cependant la fabrication de ces fibres LMA présente certaines difficultés techniques [10].

Une troisième voie de recherche concerne la caractérisation spatiotemporelle plus approfondie de la source SC dans nos fibres multimodes effilées. L'acquisition de la caméra IR (2-16 μm) pourrait servir à caractériser de manière plus avancée, le contenu spatial des SC générés. Une étude avec différents filtres dans l'infrarouge permettrait d'identifier les différents modes excités dans nos fibres multimodes chalcogénures. De plus, il pourrait également être intéressant d'étudier la cohérence spatiale du SC dans nos fibres multimodes [11]. Le montage expérimental utilisé fait intervenir une mesure interférométrique liée au front d'onde avec un SC provenant d'une fibre multimode. Les récentes études sur des fibres en silice à saut d'indice ou à gradient d'indice (GRIN) indiquent que la cohérence est réduite avec l'augmentation de la puissance injectée, bien que l'intensité spatiale du faisceau présente un profil quasi-gaussien [11]. Des études plus poussées sur la stabilité de nos SC permettraient de faciliter les mesures de spectroscopie et d'optimiser le choix de la détection nécessaire.

Une dernière voie de recherche concerne des tests de spectroscopie d'absorption plus loin dans l'infrarouge notamment sur la fenêtre 9-15 μm . Différentes molécules peuvent être détectées dans cette région spectrale, c'est notamment le cas du cholestérol, qui est une molécule complexe d'intérêt dans le domaine médical [12]. D'autres molécules, comme les composés organiques volatils (COV), peuvent être identifiées par spectroscopie d'absorption par ondes évanescentes dans des milieux d'eau de

Conclusion générale

mer [13]. La forte utilisation de ces COV dans différents secteurs d'industrie comme la pharmaceutique, la production de carburants ou encore la fabrication de peintures, ont entraîné des rejets importants dans l'environnement.

Par conséquent, étant donné les futures applications possibles, il serait intéressant de poursuivre l'étude du développement de sources SC dans l'infrarouge moyen avec de fortes puissances moyennes.

Bibliographie

1. I. Zorin, P. Gattinger, G. Ricchiuti, B. Lendl, B. Heise, and M. Brandstetter, "All-mirror wavefront division interferometer for mid-infrared spectrometry," Pré-Publication Arxiv (May 28, 2024).
2. M. A. Abbas, K. E. Jahromi, M. Nematollahi, R. Krebbers, N. Liu, G. Woyessa, O. Bang, L. Huot, F. J. M. Harren, and A. Khodabakhsh, "Fourier transform spectrometer based on high-repetition-rate mid-infrared supercontinuum sources for trace gas detection," *Opt. Express*, OE **29**, 22315–22330 (2021).
3. F. Smektala, C. Quemard, V. Couderc, and A. Barthélémy, "Non-linear optical properties of chalcogenide glasses measured by Z-scan," *Journal of Non-Crystalline Solids* **274**, 232–237 (2000).
4. N. G. R. Broderick, H. L. Offerhaus, D. J. Richardson, R. A. Sammut, J. Caplen, and L. Dong, "Large Mode Area Fibers for High Power Applications," *Optical Fiber Technology* **5**, 185–196 (1999).
5. F. Kong, C. Dunn, J. Parsons, M. T. Kalichevsky-Dong, T. W. Hawkins, M. Jones, and L. Dong, "Large-mode-area fibers operating near single-mode regime," *Opt. Express* **24**, 10295 (2016).
6. Y. Zhu, M. Leich, M. Lorenz, T. Eschrich, C. Aichele, J. Kobelke, H. Bartelt, and M. Jäger, "Yb-doped large mode area fiber for beam quality improvement using local adiabatic tapers with reduced dopant diffusion," *Opt. Express* **26**, 17034 (2018).
7. S. Février, R. Jamier, J.-M. Blondy, S. L. Semjonov, M. E. Likhachev, M. M. Bubnov, E. M. Dianov, V. F. Khopin, M. Y. Salganskii, and A. N. Guryanov, "Low-loss singlemode large mode area all-silica photonic bandgap fiber," *Opt. Express* **14**, 562 (2006).
8. Y. Gu, C. Lei, H. Yang, H. Xiao, J. Leng, and Z. Chen, "High-beam-quality signal and pump combiner with large-mode-area fiber for high-power fiber laser and amplifier," *Appl. Opt.*, AO **58**, 1336–1340 (2019).
9. C. R. Petersen, R. D. Engelsholm, C. Markos, L. Brilland, C. Caillaud, J. Trolès, and O. Bang, "Increased mid-infrared supercontinuum bandwidth and average power by tapering large-mode-area chalcogenide photonic crystal fibers," *Opt. Express* **25**, 15336 (2017).
10. S. Ghosh, S. Dasgupta, R. K. Varshney, David. J. Richardson, and B. P. Pal, "Design of a Bragg fiber with large mode area for mid-infrared applications," *Opt. Express* **19**, 21295 (2011).
11. J. Li, P. Ryzkowski, and G. Genty, "Full-beam spatial coherence measurements of supercontinuum generation in multimode fibers," *EPJ Web Conf.* **287**, 06025 (2023).
12. M. M. Paradkar and J. Irudayaraj, "Determination of cholesterol in dairy products using infrared techniques: 1. FTIR spectroscopy," *Int J Dairy Tech* **55**, 127–132 (2002).
13. C. Dettenrieder, Y. Raichlin, A. Katzir, and B. Mizaikoff, "Toward the Required Detection Limits for Volatile Organic Constituents in Marine Environments with Infrared Evanescent Field Chemical Sensors," *Sensors* **19**, 3644 (2019).

Liste des travaux publiés

Articles

- D. Bailleul, E. Serrano, C. Boussard-Plédel, D. Le Coq, F. Désévéday, P. Mathey, G. Gadret, , C. Strutynski, Y. Messaddeq, F. Smektala and B. Kibler, "Integrated mid-infrared frequency conversion and sensing in a multimode tapered chalcogenide fiber," Manuscrit en preparation (2024)
- R. Bizot, I. Tiliouine, F. Désévéday, G. Gadret, C. Strutynski, E. Serrano, P. Mathey, B. Kibler, S. Février and F. Smektala, "All-fiber supercontinuum absorption spectroscopy for mid-infrared gas sensing," *APL Photonics* **9**, 111303 (2024)
- E. Serrano, D. Bailleul, F. Désévéday, P. Béjot, G. Gadret, P. Mathey, F. Smektala and B. Kibler, "High-power ultra-broadband supercontinuum generation in tapered multimode glass rods," Soumission sur ArXiv (2024)
- E. Serrano, D. Bailleul, F. Désévéday, G. Gadret, P. Mathey, P. Béjot, A. Nakatani, T. Cheng, Y. Ohishi, B. Kibler, and F. Smektala, "Multi-octave mid-infrared supercontinuum generation in tapered chalcogenide-glass rods," *Optics Letters* **48**, 5479–5482 (2023).
- B. Kibler, E. Serrano, A. Maldonado, L.-R. Robichaud, S. Duval, M. Bernier, R. Bizot, F. Désévéday, R. Vallée, Y. Messaddeq, and F. Smektala, "All-fiber 2–6 μm coherent supercontinuum source based on chalcogenide fibers pumped by an amplified mid-IR soliton laser," *Optics Communications* **129568** (2023).
- M. Evrard, E. Serrano, C. Strutynski, F. Désévéday, G. Gadret, J. C. Jules, B. Kibler, and F. Smektala, "(INVITED)Dispersion-shifted tellurite fibers for nonlinear frequency conversion," *Optical Materials: X* **15**, 100183 (2022).
- A. Maldonado, M. Evrard, E. Serrano, A. Crochetet, F. Désévéday, J. C. Jules, G. Gadret, C. H. Brachais, C. Strutynski, Y. Ledemi, Y. Messaddeq, and F. Smektala, "TeO₂-ZnO-La₂O₃ tellurite glass system investigation for mid-infrared robust optical fibers manufacturing," *Journal of Alloys and Compounds* **867**, 159042 (2021).

Chapitre de livre

- F. Smektala, E. Serrano, D. Bailleul, and B. Kibler, "Mid-infrared fibers and their applications to supercontinuum generation," in *Specialty Optical Fibers* (Elsevier, 2024), pp. 231–253.

Communications dans des congrès (orateur souligné)

- Journée de l'école doctorale CP 2024 (oral) : E. Serrano, D. Bailleul, F. Smektala, B. Kibler, « Tapered chalcogenide-glass rods for multi-octave mid-infrared supercontinuum generation », **Prix de la meilleure communication orale.**
- GDR CHALCO 2024 (Oral) : E. Serrano, D. Bailleul, C. Boussard-Plédel, D. Le Coq, F. Désévéday, F. Smektala, B. Kibler, « Mid-infrared supercontinuum generation with tapered chalcogenide-glass rods for spectroscopy applications ».

- PIERS 2024 : B. Kibler, K. Stefanska, E. Serrano, D. Bailleul, F. Smektala, K. Tarnowski, P. Béjot, « Emerging trends in multimode fiber optics ».
- CLEO Munich 2023 (Oral) : E. Serrano, D. Bailleul, F. Désévéday, A. Nakatani, T. Cheng, Y. Ohishi, B. Kibler, F. Smektala, « Tapered chalcogenide-glass rods for multi-octave mid-infrared supercontinuum generation ».
- EOSAM Dijon 2023 (Oral) : E. Serrano, D. Bailleul, F. Désévéday, A. Nakatani, T. Cheng, Y. Ohishi, B. Kibler, F. Smektala, « Towards full mid-infrared supercontinuum generation with tapered chalcogenide-glass rods ».
- EOSAM Dijon 2023 (Poster) : E. Serrano, M. Evrard, C. Strutynski, F. Désévéday, G. Gadret, J-C. Jules, B. Kibler, F. Smektala, « Dispersion-shifted tellurite fibers for the 2-3 μm waveband ».
- EOSAM Dijon 2023 (Poster) : D. Bailleul, E. Serrano, F. Désévéday, C. Boussard-Plédel, D. Le Coq, B. Kibler, F. Smektala, « Mid-infrared evanescent wave spectroscopy using a supercontinuum generated in a tapered optical fibre ».
- EOSAM Dijon 2023 (Poster) : C-H. Brachais, M. Evrard, A. Maldonado, E. Serrano, C. Strutynski, F. Désévéday, V. Couderc, G. Gadret, M. Colas, S. Danto, T. Cardinal, F. Smektala, « Multimodal imaging using tellurite highly nonlinear multimode fibers ».
- EOSAM Dijon 2023 (Oral) : R. Bizot, F. Désévéday, A. Lemièrre, E. Serrano, D. Bailleul, C. Strutynski, G. Gadret, P. Mathey, B. Kibler, I. Tiliouine, S. Février, F. Smektala, « Mid-Infrared supercontinuum absorption spectroscopy beyond 7 μm based on free Arsenic chalcogenide fiber ».
- Photonics North Montréal 2023 (Oral) : D. Bailleul, E. Serrano, F. Désévéday, A. Nakatani, T. Cheng, Y. Ohishi, B. Kibler, F. Smektala, « Tapered chalcogenide-glass rods for multi-octave mid-infrared supercontinuum generation ».
- GDR CHALCO 2023 (Oral) : E. Serrano, D. Bailleul, F. Désévéday, A. Nakatani, T. Cheng, Y. Ohishi, F. Smektala, B. Kibler, « Fibres optiques multimodes effilées en verre de chalcogénure pour la génération de supercontinuum dans l'infrarouge moyen ».
- GDR Chalco 2022 (Poster) : E. Serrano, R. Bizot, F. Désévéday, B. Mahlovanyi, C. Boussard-Plédel, D. Le Coq, P. Béjot, B. Kibler, F. Smektala, « Mid-infrared supercontinuum generation in multimode chalcogenide glass optical fiber ».
- GDR Elios 2022 (Poster) : E. Serrano, D. Bailleul, F. Désévéday, B. Mahlovanyi, C. Boussard-Plédel, D. Le Coq, P. Béjot, B. Kibler, F. Smektala, « Mid-infrared supercontinuum generation in multimode chalcogenide glass optical fiber ».

Annexe 1

Supercontinuum dans des fibres
Ge-Se-Te avec un système tout-
fibré

Table des matières

1. Introduction	149
2. Méthodes	150
2.1 Laser de pompe et montage expérimental pour la génération de supercontinuum	150
2.2 Fabrication et propriétés des fibres chalcogénures	151
2.3 Simulations numériques.....	153
3. Résultats	153
3.1 Génération de SC dans des fibres à saut d'indice	153
3.2 Génération de supercontinuum dans des fibres à larges cœurs suspendus.....	154
3.3 Génération de supercontinuum dans des fibres à petits cœurs suspendus	155
4. Discussion	156
5. Conclusion.....	158

Un premier travail de simulation numérique a été réalisé au début de ce projet de thèse. Une campagne de mesures avec la chaîne laser femtoseconde de l'entreprise *Femtum* à Québec a été effectuée quelques mois avant le début de cette thèse par le Dr. Kibler, sur différentes fibres Ge-Se-Te. Le but était, par la suite, d'effectuer les simulations numériques des spectres SC obtenus expérimentalement. Ce travail est tiré de la publication suivante : « *All-fiber 2-6 μm coherent supercontinuum source based on chalcogenide fibers pumped by an amplified mid-IR soliton laser* », *Optics Communications* 129568 (2023). Cette première annexe va donc présenter ces résultats.

1. Introduction

Au cours de la dernière décennie, les systèmes de fibres en cascade sont apparus comme des solutions attrayantes et prometteuses pour des sources supercontinuum (SC) pratiques, de table et robustes dans l'infrarouge moyen avec une densité de puissance spectrale élevée [1]. La plupart de ces sources supercontinuum sont basées sur des systèmes en cascade de fibres en silice et de fibres de verre infrarouge (IR). Généralement des segments de quelques mètres de long seulement sont utilisés. Ces sources permettent une extension progressive dans l'infrarouge moyen à partir d'un laser initial, avec des impulsions longues (ns-ps) dans l'infrarouge proche [2-4]. Cela implique une procédure d'optimisation du décalage en fréquence Raman d'un soliton dans l'IR, en sélectionnant des segments de fibre non-linéaires avec une dispersion optimale. Par conséquent, il est possible de construire des systèmes robustes à fibres. Ces systèmes sont basés sur des lasers/amplificateurs à fibres dopées à l'erbium et au thulium, largement disponibles et fiables, ainsi que sur d'autres composants passifs à fibres issus de la technologie du proche infrarouge. De telles sources SC, qui permettent d'améliorer les applications de spectroscopie et d'imagerie [5-7], sont déjà commercialement disponibles.

En tant qu'alternative aux systèmes de fibres en cascade, pompés par des lasers dans le proche IR, nous pouvons noter un intérêt significatif pour les sources SC fibrées directement pompées par un laser à fibre ultrarapide dans l'IR moyen. Cela permet d'étudier la génération de SC avec une redistribution plus facile de la puissance dans l'IR moyen, mais surtout dans le régime de pompage à impulsions courtes (femtosecondes). Ainsi le contrôle des propriétés de cohérence temporelle est amélioré avec des fibres à dispersion adaptée [8-9]. Parmi les quelques démonstrations expérimentales existantes, qui sont compétitives en termes de largeur spectrale avec les systèmes de fibre en cascade, nous pouvons citer les travaux de Hudson et al. [10]. Dans ces travaux, un laser à fibre (basé sur une fibre ZBLAN dopée à l'holmium) à 2,9 μm a été combiné avec une fibre effilée à saut d'indice en chalcogénure. Le SC résultant s'étend de 1,8 à 9,5 μm , avec plus de 30 mW de puissance moyenne à un taux de répétition de 42 MHz. Plus récemment, un autre travail de Robichaud et al. a rapporté une puissance record de 825 mW atteinte pour un SC de 2,5 à 5 μm , basé sur une fibre standard à saut d'indice As_2S_3 [11]. La fibre est pompée par un laser à fibre amplifié $\text{Er}^{3+}:\text{ZrF}_4$ fournissant des impulsions femtosecondes à haute puissance de crête à 3,6 μm avec un taux de répétition de 58 MHz.

Notre analyse est limitée aux sources SC compactes à fibre ciblant la fenêtre atmosphérique de l'IR moyen 2-5 μm et les applications potentielles de télédétection. Il convient de mentionner que des sources SC similaires, entièrement à fibre dans le régime femtoseconde, ont été développées à l'aide de lasers à fibre vers 2 μm . Salem et al. ont pompé une fibre à saut d'indice InF_3 , ce qui a permis d'obtenir un SC allant de 1,25 μm à 4,6 μm , avec une puissance moyenne totale de 250 mW (à un taux de répétition de 50 MHz) et un degré élevé de cohérence sur toute la largeur spectrale générée [12]. Plus récemment, Kibler et al. ont fait état d'une largeur spectrale de 1,3 à 4,3 μm dans une fibre tellurite présentant deux longueurs d'onde de dispersion nulle (ZDW), avec une puissance de sortie de 33 mW à un taux de répétition de 19 MHz [13].

Dans ce travail, nous étudions le potentiel de différentes fibres de verre Ge-Se-Te à dispersion modifiée pour la génération cohérente de SC, dans la fenêtre de l'IR moyen de 2 à 5 μm . Un laser à fibre $\text{Er}^{3+}:\text{ZrF}_4$ ultrarapide amplifié, fournissant des impulsions de soliton de 175 fs à taux de répétition élevé à 3,37 μm , a été utilisé. Parmi plusieurs fibres chalcogénures à saut d'indice et à cœur suspendu testées,

nous démontrons une source de SC cohérente optimisée, s'étendant de 2 à 6 μm avec une puissance moyenne maximale de 50 mW à un taux de répétition de 25 MHz. Tous les résultats expérimentaux sont confirmés par des simulations numériques, basées sur l'équation de Schrödinger non-linéaire généralisée (GNLSE), pour différentes puissances de pompage. Notre système SC tout fibré n'implique que le choix approprié de segments de 4 cm de long de fibre chalcogénure, avec un laser à fibre amplifié. Nous nous attendons à ce que ces performances stimulent d'autres améliorations de cette architecture SC cohérente dans l'IR moyen, et puissent conduire à des applications pratiques en spectroscopie.

2. Méthodes

2.1 Laser de pompe et montage expérimental pour la génération de supercontinuum

Nous avons utilisé une configuration simple et compacte du dispositif expérimental de génération de SC, illustrée à la Figure A.1.1 (a). Ce dispositif consiste en un laser amplifié commercial, basé sur des fibres de fluorure dopées à l'erbium (FEMTUM UltraTune 3400), combiné à un segment approprié de fibre de chalcogénure à dispersion modifiée. La source d'alimentation est un oscillateur à fibre femtoseconde à 2,8 μm verrouillés à modes, à un taux de répétition de 25 MHz [14]. Ce signal est amplifié et décalé à 3,37 μm par décalage auto-fréquence du soliton (SSFS), comme cela a été récemment démontré dans la Réf. [15]. Un filtre (LPF : long-pass filter) est utilisé à 2,9 μm , avant la lentille de couplage, pour éliminer la pompe résiduelle après le processus SSFS. Après filtrage de la sortie de l'amplificateur à fibre, nous avons alors deux solitons décalés dans l'IR moyen, à savoir S1 et S2, pour une puissance moyenne de 280 mW. La Figure A.1.1 (b) montre le spectre correspondant mesuré, en utilisant une procédure d'ajustement simple. Nous avons trouvé que S1 pouvait être modélisé avec précision par une impulsion sécante hyperbolique en limite de Fourier, avec une durée (FWHM) de 175 fs (c'est-à-dire une largeur spectrale de 1,8 THz). Ce soliton principal (S1) centré à 3,37 μm contient environ 90 % de l'énergie disponible au-delà de 2,9 μm . Le soliton secondaire (S2) avec l'énergie restante est situé à 3 μm . Ensuite, notre étude a été réalisée en espace libre, c'est-à-dire avec faisceau laser de sortie collimaté. Cependant, pour des SC plus robustes, des soudures pourraient être étudiées pour connecter directement la fibre de chalcogénure la plus appropriée à la sortie de la fibre de la source de pompage. Avant le couplage dans la fibre de chalcogénure, la polarisation linéaire et la puissance d'entrée des impulsions de pompe sont contrôlées par la combinaison d'une lame demi-onde et d'une densité optique. Le couplage de la fibre a ensuite été effectué au moyen de plusieurs lentilles en ZnSe, avec un revêtement spécifique sur la gamme 3-5 μm , et des longueurs focales distinctes (de 4 à 6 mm) en fonction du diamètre du cœur de la fibre. Dans l'ensemble, l'optique en espace libre a réduit la puissance incidente totale disponible de $\sim 15\%$. En conséquence, la puissance moyenne disponible de la principale pompe (S1) est maintenant de 213 mW, correspondant à une puissance de crête de ~ 50 kW. Nos fibres chalcogénures ont été coupées au moyen d'une lame de scalpel. La qualité des interfaces a été soigneusement vérifiée au microscope avant de disposer un échantillon de fibre de quelques centimètres de long sur un support à 3 axes. Les impulsions de pompe sont alors couplées dans le mode fondamental guidé. Notre efficacité de couplage totale est plutôt faible en raison d'une réflexion de Fresnel significative (près de 20%). Nous avons obtenu un facteur de couplage d'environ 15-40% dans nos fibres, avec des diamètres de cœur variant de 4 à 13 μm (voir Sec. 2.2). Par conséquent, la génération de SC peut être étudiée avec une puissance maximale injectée d'environ 15 kW. En sortie de nos fibres, la lumière SC générée est directement collectée par une fibre multimode en fluorure (InF_3) de 1 m de long. Cette fibre multimode (cœur de 100 μm) présente une excellente transmission sur la gamme spectrale 0,35-5,5 μm . Le spectre SC est caractérisé au moyen d'un analyseur de spectre optique (Yokogawa, AQ6377) sur la gamme 1,9-5,5 μm . Pour le signal SC au-delà de 5,5 μm , nous collectons la lumière SC au moyen d'une lentille ZnSe. Puis un miroir parabolique hors axe guide la lumière dans un monochromateur combiné à un détecteur refroidi HgCdTe (MCT) fonctionnant jusqu'à 12 μm . Pour chaque mesure de SC, la puissance moyenne correspondante a été mesurée au moyen d'un capteur de puissance thermique. Il est à noter que nous n'avons pas pu pomper toutes les fibres chalcogénures, avec

la puissance de pompage maximale disponible, en raison de certains problèmes d'endommagement discutés par la suite.

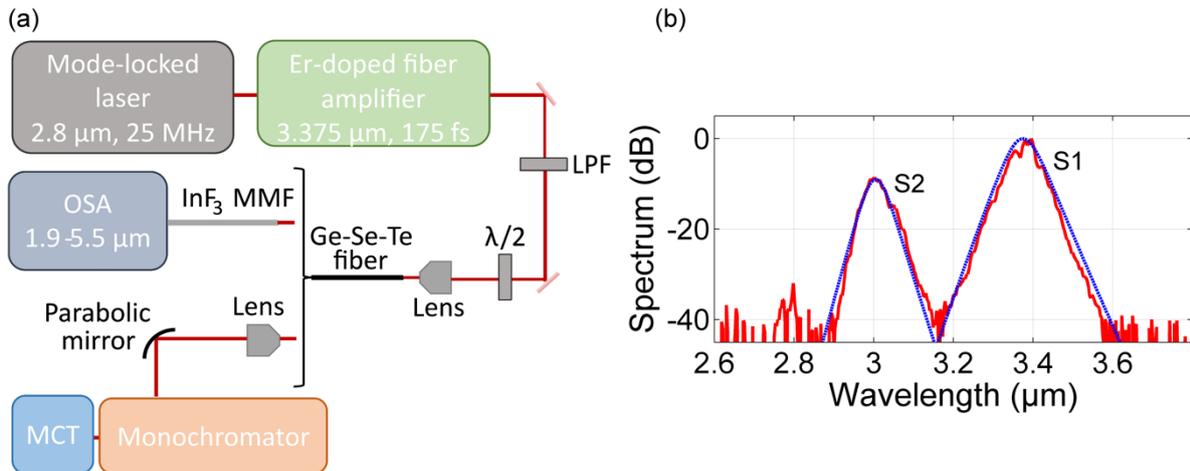


Figure A.1.1 – (a) Montage expérimental pour la génération de SC dans nos fibres GST. LPF: filtre passe-haut. (b) Spectre mesuré en sortie du laser amplifié (en rouge). S1 : 1^{er} soliton décalé contenant 90% de la puissance. S2 : 2^{ème} soliton décalé. Les courbes pointillées en bleu correspondent aux modélisations avec des impulsions de forme sécante hyperbolique.

2.2 Fabrication et propriétés des fibres chalcogénures

Nous avons développé deux types de fibres chalcogénures, basées sur le système de verre ternaire Ge-Se-Te pour la génération de SC avec le laser à soliton amplifié, à savoir des fibres à saut d'indice (SIF) et des fibres à cœur suspendu (microstructurées) (SCF). La fabrication de fibres optiques monoindice (avec ou sans cœur suspendu) ainsi que des fibres à saut d'indice basées sur un verre exempt d'éléments hautement toxiques tels que l'arsenic et l'antimoine, est décrite en détails les références [16-17]. L'utilisation d'une fibre à saut d'indice Ge-Se-Te a déjà permis de générer un SC allant de 1,7 μm à 18 μm [18]. Cependant la source laser utilisée travaille à une cadence de répétition de 1 kHz et une longueur d'onde de pompe vers 8 μm. Bien que le spectre obtenu soit conséquent dans l'infrarouge moyen, la puissance moyenne en sortie est faible, limitant ainsi les potentielles applications.

Pour les fibres à saut d'indice, les compositions de la gaine et du cœur sont respectivement Ge₂₀Se₇₀Te₁₀ et Ge₂₀Se₆₀Te₂₀. La différence d'indice entre les deux compositions est d'environ 0,09 dans l'infrarouge moyen [16]. Les préformes de verre sont synthétisées par la méthode standard de trempe par fusion. Des quantités stœchiométriques d'éléments de haute pureté (5N) sont pesées et insérées dans des ampoules de silice. Ensuite cet ensemble est mis sous vide pendant plusieurs heures et chauffé pour éliminer les oxydes superficiels, ainsi que l'eau libre adsorbée à la surface. Ensuite, les précurseurs sont rassemblés dans la même ampoule, dans laquelle sont ajoutés les éléments Al et TeCl₄ pour une purification plus poussée. Le tout est ensuite chauffé jusqu'à la fusion et trempé, avant d'être distillé sous vide dynamique. Les impuretés volatiles sont évacuées et piégées. Ensuite, l'ampoule de silice, dans laquelle le verre distillé s'est condensé, est scellée et placée dans un four à deux zones pour une seconde distillation statique. Le but est de séparer les traces restantes de particules réfractaires responsables de la diffusion optique. Enfin, le verre est inséré dans un four à bascule pour le dernier processus d'affinage, puis trempé et enfin recuit. Des préformes à saut d'indice ont été fabriquées au moyen de la technique de « rod-in-tube », puis étirées en fibres à saut d'indice dont les différents diamètres sont contrôlables. Un exemple de SIF avec un diamètre de cœur de 10-μm est illustré à la Figure 1a. Dans le cas des fibres à cœur suspendu, nous avons utilisé une tige de verre Ge₂₀Se₇₀Te₁₀ purifiée. Trois trous sont percés autour du centre avec 1 mm de diamètre et 30 mm de longueur. Pendant le processus d'étirage, ces trous

permettent la formation de la structure suspendue dans l'air, avec trois ponts fins soutenant le cœur. Une pression d'azote gazeux permet de contrôler la taille des trous. Nous avons pu obtenir plusieurs mètres de fibre, avec des diamètres de cœur suspendus distincts (voir la Figure 1a qui représente une fibre SCF avec un diamètre de cœur de 9- μm).

La Figure A.1.2 (b) compare les pertes linéaires mesurées (méthode cutback) sur la plage de longueurs d'onde 2-7 μm , pour une fibre à saut d'indice et une fibre à cœur suspendu, avec de grands diamètres de cœur dans les deux cas. Typiquement, nos fibres présentent des pertes de fond de l'ordre de 1-6 dB/m au-delà de 3 μm , sauf au niveau du pic d'absorption lié au Se-H près de 4,6 μm qui reste inférieur à 10-15 dB/m. Notons que ces pertes seront négligeables sur les propagations de l'ordre de quelques cm pour la génération de SC. Ensuite, nous avons effectué des simulations numériques des propriétés modales, sur la base de la géométrie de la fibre obtenue au microscope électronique à balayage (MEB) et à l'aide d'un logiciel commercial (BeamPROP) utilisant une méthode de propagation de faisceau. Nous avons ensuite constaté qu'une variété de propriétés dispersives pouvait être explorée pour la génération de SC à notre longueur d'onde de pompage $\lambda = 3,37 \mu\text{m}$. Les courbes de dispersion calculées du mode fondamental guidé, en fonction de la longueur d'onde et pour des diamètres de cœur distincts des fibres SIF et SCF, sont présentées à la Figure 1c. Les aires effectives correspondantes sont indiquées à la Figure 1d, fournissant ainsi des informations sur le confinement de la lumière et le coefficient non-linéaire résultant calculé comme $\gamma = 2\pi n_2 / (\lambda A_{\text{eff}})$, avec un indice de réfraction non-linéaire $n_2 = 8,3 \times 10^{-18} \text{ m}^2/\text{W}$ [17]. La conception simple d'une SIF (pour un diamètre de cœur compris entre 7 et 13 μm) avec une différence d'indice modérée ne fournit qu'une forte dispersion normale ($\beta_2 > 0$) à la longueur d'onde pompe. En effet, elle est éloignée de la longueur d'onde intrinsèque de dispersion nulle (ZDW) du verre massif (située au-delà de 6,5 μm). Le principal intérêt ici, est que le régime de dispersion normale peut être atteint avec un diamètre de cœur modéré, ainsi qu'un confinement amélioré. En revanche, la conception d'une fibre SCF offre une flexibilité évidente dans les propriétés dispersives, à la longueur d'onde de la pompe. Avec des diamètres de cœur similaires à ceux de la SIF, nous pouvons fortement réduire la dispersion normale, puisque le ZDW peut être déplacé en dessous de 4 μm , grâce à la forte différence d'indice. En choisissant des diamètres de cœur plus petits, inférieurs à 6 μm , nous pourrions également étudier la génération de SC dans le régime de dispersion anormale ($\beta_2 < 0$).

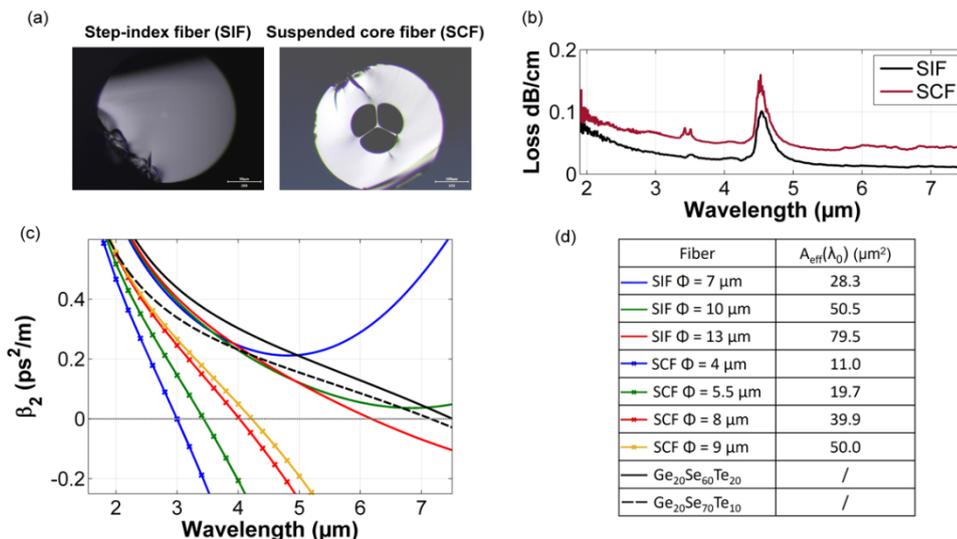


Figure A.1.2 – (a) Coupes transversales de la fibre à saut d'indice (SIF) et de la fibre à cœur suspendu (SCF) prises au microscope. (b) Pertes linéaires mesurées pour la SIF et la SCF. (c) Variation du coefficient de dispersion de vitesse de groupe β_2 du mode fondamental guidé pour les différents diamètres de cœur des fibres SIF ou SCF. (d) Aire effective calculée à la longueur d'onde de pompe pour ces différents diamètres.

2.3 Simulations numériques

Par la suite, nous présentons également des simulations numériques de la propagation non-linéaire d'impulsions dans nos fibres, afin de confirmer la largeur de nos SC expérimentaux. Notre modélisation est basée sur l'équation de Schrödinger non-linéaire généralisée couramment utilisée. Elle inclut la courbe de dispersion complète du mode fondamental guidé de chaque fibre testée (comme le montre la Figure A.1.2), les réponses non-linéaires Kerr (instantanée) et Raman (retardée) [8]. Cette équation régit l'évolution de l'enveloppe complexe du champ électrique. Pour la fonction de réponse Raman, nous avons utilisé un modèle d'élargissement intermédiaire, via des convolutions de lorentziennes et de gaussiennes adaptées aux spectres de diffusion Raman spontanée et au coefficient de gain Raman estimé (voir les Réfs. [19- 20]). Nos simulations incluent également les pertes de fibre mesurées dans la Figure 2.

La dépendance de la stabilité du SC, aux caractéristiques d'impulsion d'entrée et aux paramètres de la fibre, a été largement étudiée au cours de la dernière décennie [8,21]. Le régime de dispersion anormale est connu pour favoriser la compétition entre les mécanismes d'élargissement spectral cohérents (dynamique des solitons) et incohérents (instabilité de modulation). Il est accepté de considérer un nombre de solitons de pompe $N < 10$ comme une règle générale, afin de maintenir une cohérence élevée et une stabilité d'impulsion à impulsion. Rappelons que N est défini comme suit : $N^2 = L_D / L_{NL} = \gamma P_0 T_0^2 / |\beta_2|$, où P_0 est la puissance de crête, T_0 est la largeur (à 1/e) de l'impulsion, et β_2 la dispersion de la vitesse de groupe à la longueur d'onde de la pompe. $L_D = T_0^2 / |\beta_2|$ correspond à la longueur de dispersion et $L_{NL} = 1 / \gamma P_0$ la longueur non-linéaire. Au contraire, les fibres avec une dispersion normale permettent de concevoir des SC hautement cohérents pour une valeur initiale de N allant jusqu'à quelques centaines. Nous analysons ainsi les propriétés de cohérence associées au spectre SC, d'une manière similaire à la Réf. [8]. Nous effectuons 200 simulations avec différents bruits d'entrée aléatoires imposés à l'impulsion d'entrée pour chaque fibre. L'ensemble des SC de sortie permet de calculer le degré complexe de cohérence de premier ordre g_{12} défini à chaque longueur d'onde dans le SC, typiquement utilisé pour caractériser la stabilité des sources SC [8].

3. Résultats

3.1 Génération de SC dans des fibres à saut d'indice

Nous étudions d'abord la génération de SC dans trois fibres Ge-Se-Te à saut d'indice avec des diamètres de cœur de 7, 10 et 13 μm . La Figure A.1.3 illustre les résultats expérimentaux (panneaux de gauche) et numériques (panneaux de droite) obtenus pour deux puissances P_0 . Pour la puissance d'entrée la plus faible ($P_0 = 1,8 \text{ kW}$), nous observons clairement que la génération de SC est améliorée dans les fibres à petit cœur en raison d'une plus forte non-linéarité. En augmentant P_0 jusqu'à 6,7 kW, nous constatons que la largeur du SC peut couvrir la gamme de longueurs d'onde de 2,5 à 5 μm dans la fibre SIF à cœur de 10- μm .

Nous n'avons pas été en mesure d'observer la génération de SC avec la même puissance dans le plus petit cœur, à cause de dommages sur la face d'entrée de la fibre. Des problèmes similaires ont été relevés à une puissance de pompe plus élevée pour toutes les SIF. Nous confirmons nos expériences SC avec des simulations numériques, en prenant en compte le soliton principal S1 comme pompe. L'accord est excellent sur l'ensemble du spectre SC. Nous pouvons seulement noter quelques divergences, tels qu'un petit creux autour de 4,2-4,3 μm dans le spectre expérimental (non présent dans la simulation) dû à l'absorption commune du CO_2 dans l'atmosphère, et une petite bosse autour de 3 μm due au soliton secondaire restant du pompage. Le pompage dans le régime de dispersion normal fort implique que la génération de SC est ici pilotée par l'automodulation de phase et le phénomène de wave breaking [22]. Ainsi le spectre reste presque symétrique autour de la longueur d'onde de pompage et plus étroit que dans le régime de dispersion anormale. Les caractéristiques typiques sont donc (i) la bonne planéité spectrale, (ii) la préservation d'un chirp quasi-linéaire et (iii) la stabilité au bruit d'entrée, qui garantit une cohérence totale du SC, comme le montre la Figure 3 (panneaux de droite). Pour obtenir le spectre

le plus large avec une grande planéité spectrale, il est pratique de propager l'impulsion jusqu'à ce que la *wave breaking* se produise (voir Chapitre I). En utilisant l'échelle empirique L_D/N pour la distance de *wave breaking*, une estimation de l'élargissement spectral maximal (largeur de bande de -3dB), pour les impulsions hyperboliques sécantes, peut être trouvée à $1,7 N$ [22] (en négligeant les dispersions d'ordre supérieur et l'effet d'auto-raïdissement de l'impulsion). Dans nos trois configurations expérimentales, β_2 se situe entre $0,31$ et $0,34 \text{ ps}^2 \cdot \text{m}^{-1}$ et $\gamma = 0,54, 0,30$ et $0,19 \text{ W}^{-1} \cdot \text{m}^{-1}$, respectivement. Nous constatons que tous nos spectres SC enregistrés après 4 cm de propagation, quelle que soit la puissance crête d'entrée, sont bien obtenus à un élargissement spectral maximal, même avec des nombres de solitons aussi modérés ($N < 10$). À $P_0 = 6,7 \text{ kW}$, le facteur d'élargissement spectral dans le cœur de $10\text{-}\mu\text{m}$ devrait être 13 fois supérieur à la largeur spectrale initiale de $1,8\text{-THz}$ (c'est-à-dire 23 THz). Expérimentalement et numériquement, le spectre SC correspondant s'étend de 3 à $3,8 \mu\text{m}$, corroborant la prédiction ci-dessus. Nous avons également obtenu une largeur à -20 dB de $2,7$ à $4,7 \mu\text{m}$ (soit 50 THz). A cette puissance de crête de $6,7 \text{ kW}$, nous pourrions nous attendre à une largeur SC plus importante à la puissance maximale disponible (voir section 4).

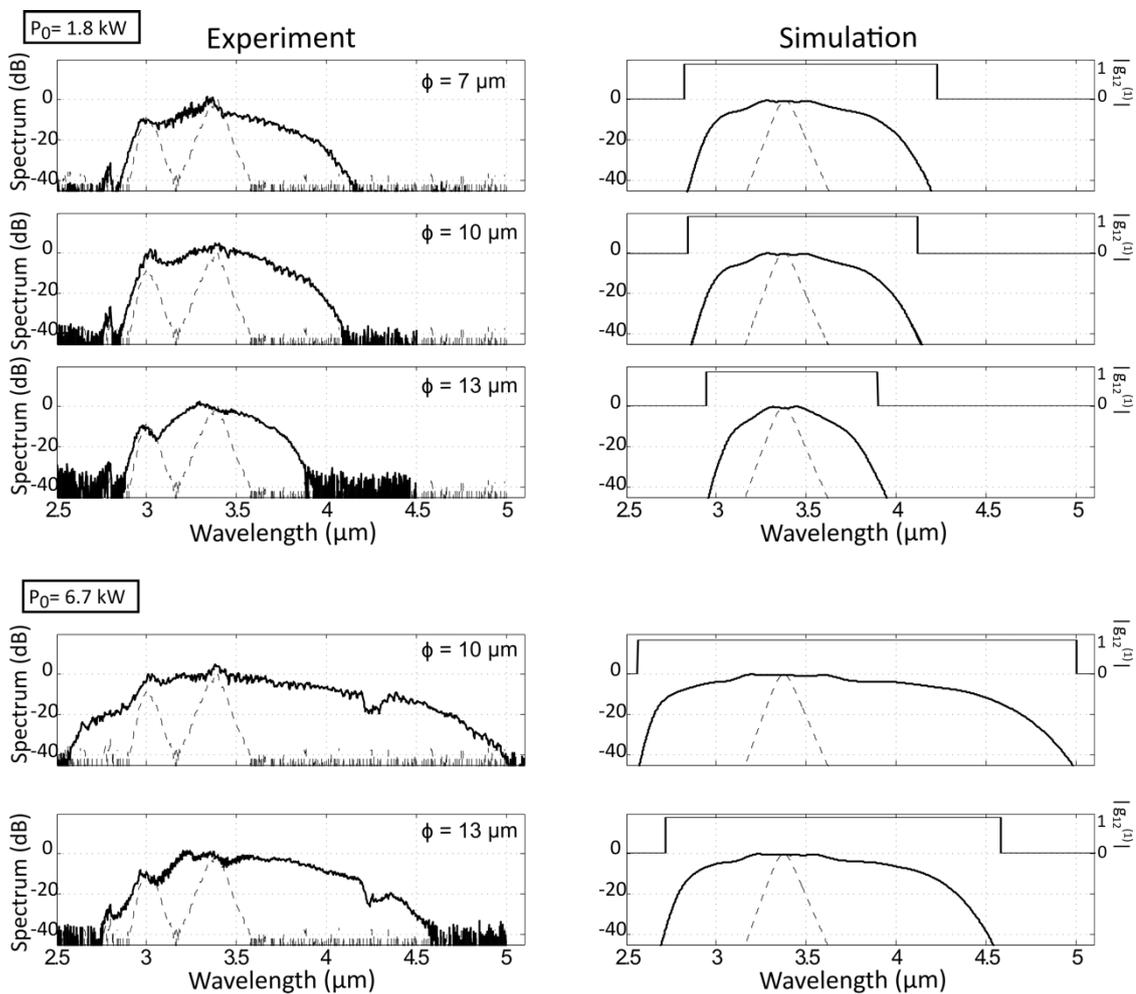


Figure A.1.3 – Spectres SC obtenus dans des fibres à saut d'indice avec des diamètres de cœur de (7, 10 et $13 \mu\text{m}$) pour deux puissances crêtes distinctes (1,8 et $6,7 \text{ kW}$). Panneau de gauche : Résultats expérimentaux. Les spectres en pointillés représentent la pompe initiale. Panneau de droite : Simulations numériques correspondantes. L'axe de gauche présente le résultat moyenné pour 200 spectres. Axe droit : Module du degré de cohérence calculé pour ces 200 spectres.

3.2 Génération de supercontinuum dans des fibres à larges cœurs suspendus

Dans une deuxième série d'expériences, nous étudions la génération de SC dans deux fibres Ge-Se-Te à cœur suspendu, avec des diamètres de cœur de 8 et $9 \mu\text{m}$. Ces fibres présentent toujours une

dispersion normale à la longueur d'onde de la pompe (voir la Figure A.1.2, β_2 se situe entre 0,15 et 0,18 ps².m⁻¹), mais le ZDW est maintenant aux environs de 4,0-4,2 μ m.

La Figure A.1.4 présente les résultats expérimentaux (panneaux de gauche) et numériques (panneaux de droite) obtenus pour des puissances d'entrée distinctes. L'élargissement spectral est à nouveau initialement entraîné par l'automodulation de phase (voir le pompage à faible puissance), jusqu'à ce qu'il atteigne et traverse le ZDW pour des puissances d'entrée plus élevées. Dans ce cas, des solitons se forment au-delà de 4 μ m et subissent un auto-décalage en fréquence Raman vers les grandes longueurs d'onde. Nous obtenons alors des spectres SC couvrant la bande passante 2-6 μ m dans les deux SCF. Nous avons également rencontré ici quelques problèmes d'endommagement avec la fibre SCF à cœur de 8 μ m pour la puissance maximale. Cependant, pour tous les spectres SC enregistrés, nous sommes en mesure de confirmer une telle dynamique spectrale avec des simulations numériques. L'excellente concordance corrobore la génération de spectres SC cohérents sur toute la bande passante, même si la dynamique des solitons se produit au-delà de 4 μ m (seul un nombre réduit de solitons émerge de cette propagation non-linéaire).

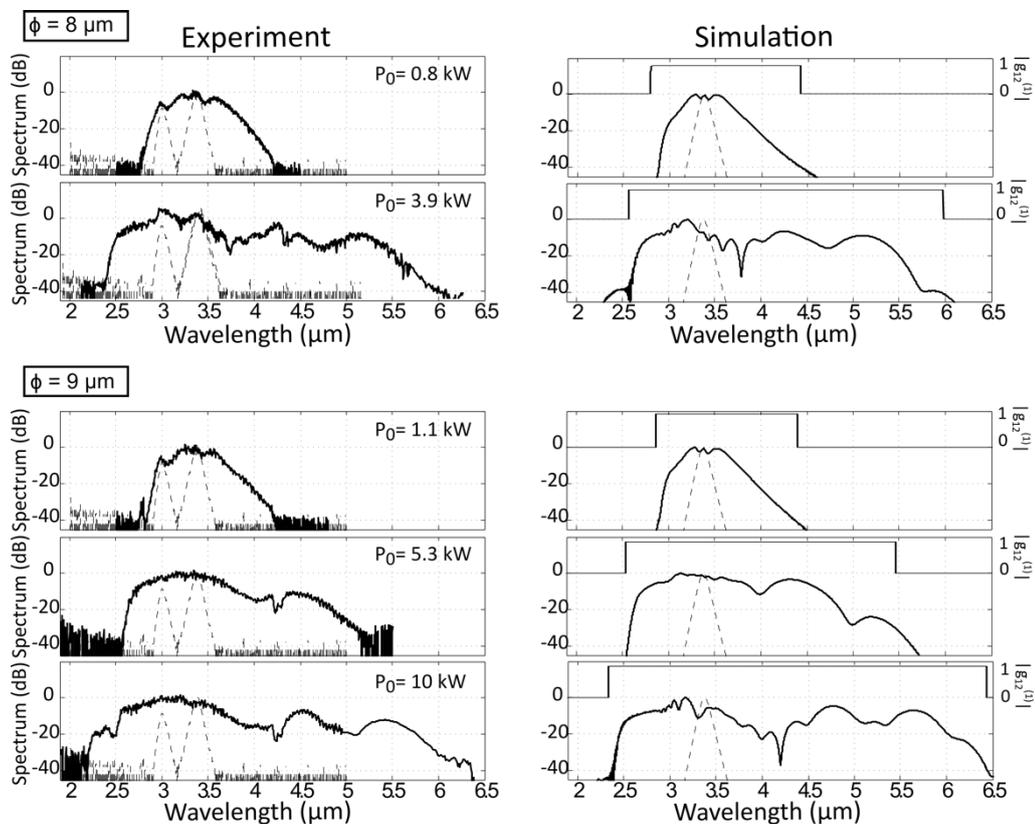


Figure A.1.4 – Spectres SC obtenus dans des fibres à cœur suspendu avec des larges diamètres de cœur de (8 et 9 μ m) pour différentes puissances crêtes. Panneau de gauche : Résultats expérimentaux. Les spectres en pointillés représentent la pompe initiale. Panneau de droite : Simulations numériques correspondantes. L'axe de gauche présente le résultat moyenné pour 200 spectres. Axe droit : Module du degré de cohérence calculé pour ces 200 spectres.

3.3 Génération de supercontinuum dans des fibres à petits cœurs suspendus

Enfin, nous étudions la génération de SC dans deux fibres Ge-Se-Te à cœur suspendu, avec des diamètres de cœur plus petits, à savoir 4 et 5,5 μ m. Ces fibres présentent maintenant une dispersion anormale ou proche d'une dispersion nulle à la longueur d'onde de pompe (voir Figure A.1.2, β_2 est de -0,17 et 0,02 ps².m⁻¹, respectivement). Le ZDW est situé à 3,0 ou 3,4 μ m, respectivement. La Figure A.1.5 montre les résultats expérimentaux (panneaux de gauche) et numériques (panneaux de droite) obtenus pour différentes puissances crête d'entrée. L'élargissement spectral est entièrement gouverné par

la dynamique solitonique et la formation d'ondes dispersives en dessous du ZDW. Les résultats numériques confirment à nouveau nos expériences. Même à de faibles puissances d'entrée, l'élargissement spectral est très efficace en raison de la faible dispersion et du coefficient non-linéaire élevé. Plus le ZDW est proche de la longueur d'onde de pompe, plus le spectre SC résultant est plat (voir cœur de 5,5- μm SCF). Cependant, l'augmentation de la puissance crête d'entrée dégrade significativement la cohérence puisque nous atteignons facilement un nombre de solitons d'entrée $N > 10$ pour les deux fibres (sensibilité plus élevée au bruit d'entrée pour de telles valeurs de N). Pour la fibre SCF à cœur de 4 μm , la valeur N calculée est de 14 lorsque $P_0 = 2,5$ kW. De même, pour le cœur de 5,5 μm , la valeur N calculée est de 37 lorsque $P_0 = 3,6$ kW. En outre, nous pouvons noter que, pour des fibres à cœur aussi petit, nous n'avons pas été en mesure d'atteindre la puissance d'entrée maximale, en raison de problèmes d'endommagement sur la face d'entrée des fibres.

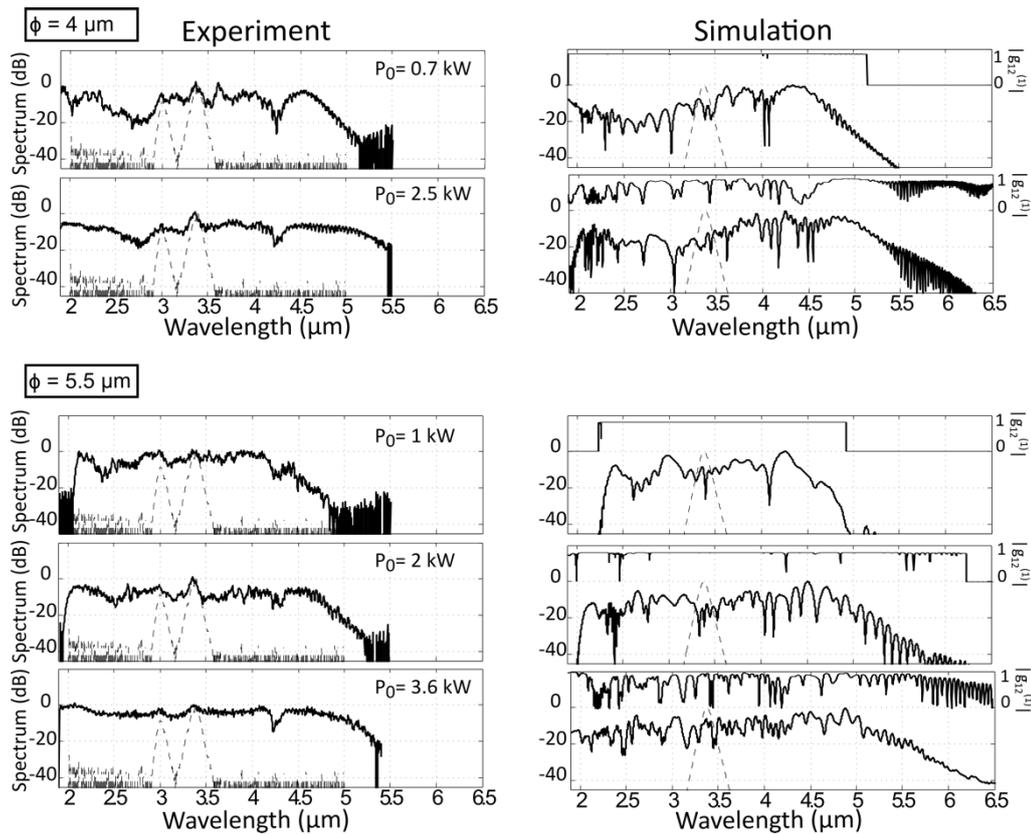


Figure A.1.5 - Spectres SC obtenus dans des fibres à cœur suspendu avec des petits diamètres de cœur de (4 et 5,5 μm) pour différentes puissances crêtes. Panneau de gauche : Résultats expérimentaux. Les spectres en pointillés représentent la pompe initiale. Panneau de droite : Simulations numériques correspondantes. L'axe de gauche présente le résultat moyenné pour 200 spectres. Axe droit : Module du degré de cohérence calculé pour ces 200 spectres.

4. Discussion

L'analyse ci-dessus nous permet de distinguer trois configurations, à savoir (i) le pompage dans le régime fort de dispersion normale (c'est-à-dire les fibres à saut d'indice), qui conduit plutôt à des élargissements spectraux plus étroits et à la préservation de la cohérence totale, (ii) le pompage dans le régime faible de dispersion normale proche du ZDW qui permet un élargissement spectral efficace avec une dynamique de soliton limitée tout en préservant la cohérence (c'est-à-dire les fibres à cœur suspendu avec un grand cœur). Enfin (iii), le pompage direct dans le régime de dispersion anormale avec les spectres SC les plus larges à des puissances modérées mais avec une dégradation de la cohérence. Ces trois dynamiques de SC sont illustrées dans les Figures A.1.6 (a-c). L'évolution correspondante du SC en fonction de la distance de propagation est représentée pour les fibres suivantes : SIF à cœur de 10-

μm , SCF à cœur de $8\text{-}\mu\text{m}$, et SCF à cœur de $5,5\text{-}\mu\text{m}$. Dans la Figure A.1.6 (d), nous traçons l'évolution correspondante du nombre de solitons calculés N pour des puissances crête croissantes. Nous notons clairement la croissance très différente du paramètre N selon les dispersions des fibres. Nous pouvons nous attendre à préserver la cohérence totale du spectre SC même à des puissances de crête plus élevées encore possibles ($\sim 10\text{-}15\text{ kW}$) pour les deux SIF à cœur de $10\text{-}\mu\text{m}$ et SCF à cœur de $8\text{-}\mu\text{m}$. Malheureusement, nous avons constaté plusieurs dommages irréversibles sur la plupart de nos fibres, comme indiqué dans la section précédente. La nature des dommages est principalement une accumulation thermique conduisant à une zone endommagée sur le cœur de la fibre d'entrée. La composition des verres chalcogénures est connue pour avoir un impact sur leur seuil d'endommagement, de même que les paramètres de l'impulsion laser (durée et taux de répétition) déterminent les mécanismes d'endommagement [23-24]. Ici, cette fusion typique induite par le laser et observée à un taux de répétition élevé (c'est-à-dire 25 MHz) se produit pour différentes puissances en fonction de la fibre testée. En particulier, nous avons remarqué que les SIF étaient moins robustes que les SCF à taille de cœur égale. Par exemple, nous avons pu tester le SCF à cœur de $9\text{-}\mu\text{m}$ jusqu'à la puissance maximale disponible, contrairement aux SIF, même avec des cœurs plus grands. Un tel comportement distinct peut être expliqué par les trous d'air environnants des SCFs, qui aident à la dissipation de l'accumulation thermique préjudiciable dans le cœur de la fibre. Ce dernier point a été confirmé avec succès par quelques tests à des puissances plus élevées dans certaines fibres mais à un taux de répétition réduit, notamment en utilisant un « chopper » optique rotatif à 15 kHz pour produire des trains d'impulsions femtosecondes.

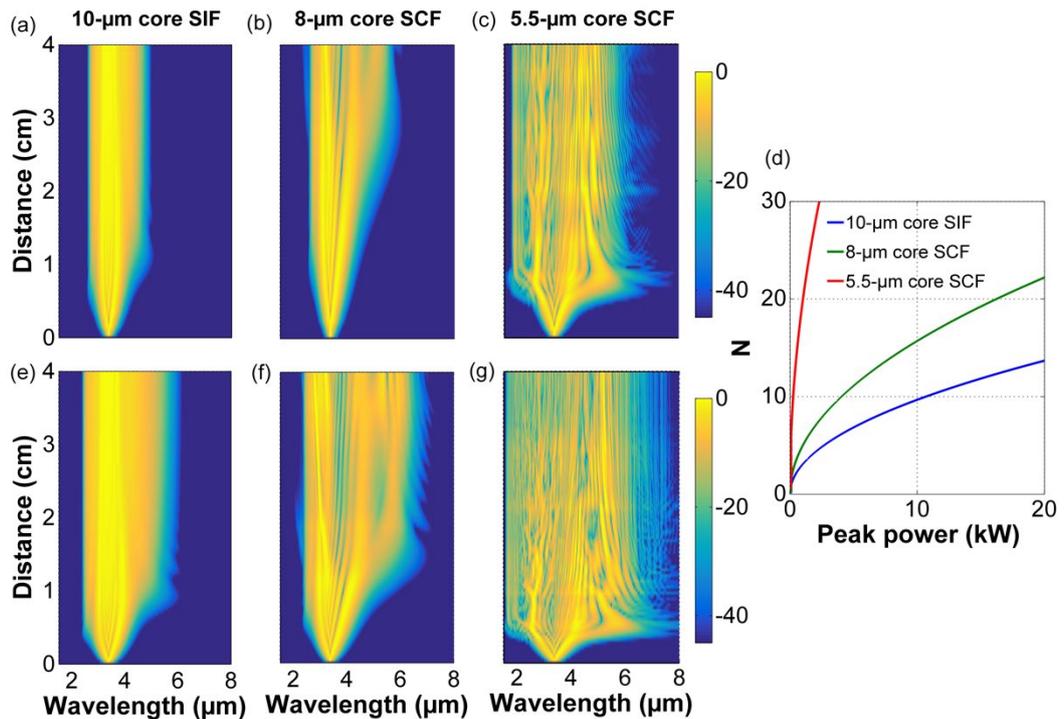


Figure A.1.6 – (a-c) Évolution du SC en fonction de la longueur de propagation pour les fibres suivantes : SIF-10 μm ($P_0=6,7\text{ kW}$), SCF-8 μm ($P_0=3,9\text{ kW}$) et SCF-5,5 μm ($P_0=3,6\text{ kW}$). (d) Calcul du nombre N de solitons en fonction de la puissance crête initiale. (e-g) Évolution du SC en fonction de la longueur de propagation pour les fibres suivantes : SIF-10 μm ($P_0=13,7\text{ kW}$), SCF-8 μm ($P_0=9\text{ kW}$) et SCF-5,5 μm ($P_0=7\text{ kW}$).

Enfin, nous avons étudié numériquement la génération de SC possible pour des puissances plus élevées. Dans la pratique, l'amélioration du seuil d'endommagement du laser ainsi que des facteurs de couplage plus élevés pour les fibres de chalcogénure peuvent être obtenus grâce à plusieurs techniques de post-traitement telles que les revêtements antireflets traditionnels ou un modelage plus complexe des surfaces d'entrée [25]. Les Figures A.1.6 (e-g) montrent les résultats numériques correspondants de la

génération de SC. Dans la fibre SIF de 10 μm de cœur, nous avons pu atteindre la longueur d'onde de 6 μm tout en restant dans le régime de SC cohérent. De même, nous avons pu couvrir la bande passante de 2 à 7 μm avec la fibre SIF de 8 μm de cœur. Au contraire, un SC incohérent s'étendant jusqu'à 8 μm sera à nouveau obtenu dans la fibre SCF avec un cœur 5,5- μm .

5. Conclusion

En résumé, nous avons étudié expérimentalement et numériquement la génération de SC dans différentes fibres Ge-Se-Te à dispersion contrôlée, pompées par une source laser à soliton dans le MIR. Notre analyse montre que des régimes distincts de propagation non-linéaire d'impulsions peuvent être obtenus en fonction des paramètres requis du spectre SC (largeur, cohérence, planéité). De plus, nous démontrons que des segments très courts (4 cm de long) de nos fibres sont suffisants pour fournir l'élargissement spectral maximal dans l'infrarouge moyen. En particulier, nous avons démontré la génération cohérente de SC dans la gamme 2-6 μm dans une fibre de 4 cm de long avec une puissance moyenne de sortie allant jusqu'à 50 mW à un taux de répétition de 25 MHz. Les futurs développements et améliorations de ce système tout-fibré et les propriétés de cohérence associées constituent une étape importante vers la disponibilité de sources SC robustes et compactes. Dans ce contexte, il convient de mentionner les travaux très récents de Tiliouine et al. qui démontrent une source tout-fibrée d'impulsions fs à haute puissance crête au-dessus de 4 μm par décalage de soliton [26].

Bibliographie

1. T. Sylvestre, E. Genier, A. N. Ghosh, P. Bowen, G. Genty, J. Troles, A. Mussot, A. C. Peacock, M. Klimczak, A. M. Heidt, J. C. Travers, O. Bang, and J. M. Dudley, "Recent advances in supercontinuum generation in specialty optical fibers," *J. Opt. Soc. Am. B* 38, F90-F103 (2021).
2. R. A. Martinez, G. Plant, K. Guo, B. Janiszewski, M. J. Freeman, R. L. Maynard, M. N. Islam, F. L. Terry, O. Alvarez, F. Chenard, R. Bedford, R. Gibson, and A. I. Ifarraguerri, "Mid-infrared supercontinuum generation from 1.6 to >11 μm using concatenated step-index fluoride and chalcogenide fibers," *Opt. Lett.* 43, 296-299 (2018).
3. S. Venck, F. St-Hilaire, L. Brilland, A. N. Ghosh, R. Chahal, C. Caillaud, M. Meneghetti, J. Troles, F. Joulain, S. Cozic, S. Poulain, G. Huss, M. Rochette, J. M. Dudley, and T. Sylvestre, "2– 10 μm mid-infrared fiber-based supercontinuum laser source: experiment and simulation," *Laser Photon. Rev.* 14, 2000011 (2020).
4. G. Woyessa, K. Kwarkye, M. K. Dasa, C. R. Petersen, R. Sidharthan, S. Chen, S. Yoo, and O. Bang, "Power stable 1.5–10.5 μm cascaded mid-infrared supercontinuum laser without thulium amplifier," *Opt. Lett.* 46, 1129-1132 (2021).
5. C. R. Petersen, P. M. Moselund, L. Huot, L. Hooper, and O. Bang, "Towards a table-top synchrotron based on supercontinuum generation", *Infrared Phys. Technol.* 91, 182-186 (2018).
6. F. Borondics, M. Jossent, C. Sandt, L. Lavoute, D. Gaponov, A. Hideur, P. Dumas, and S. Février, "Supercontinuum-based Fourier transform infrared spectromicroscopy", *Optica* 5, 378- 381 (2018).
7. I. Zorin, P. Gattering, A. Ebner, and M. Brandstetter, "Advances in mid-infrared spectroscopy enabled by supercontinuum laser sources," *Opt. Express* 30, 5222-5254 (2022).
8. G. Genty, S. Coen, and J. M. Dudley, "Fiber supercontinuum sources," *J. Opt. Soc. Am. B* 24, 1771-1785 (2007).
9. A. Rampur, D.-M. Spangenberg, B. Sierro, P. Hänzi, M. Klimczak, and A. M. Heidt, "Perspective on the next generation of ultra-low noise fiber supercontinuum sources and their emerging applications in spectroscopy, imaging, and ultrafast photonics," *Appl. Phys. Lett.* 118, 240504 (2021).
10. D. D. Hudson, S. Antipov, L. Li, I. Alamgir, T. Hu, M. El Amraoui, Y. Messaddeq, M. Rochette, S. D. Jackson, and A. Fuerbach, "Toward all-fiber supercontinuum spanning the mid- infrared," *Optica* 4, 1163-1166 (2017).
11. L-R. Robichaud, S. Duval, L-P. Pleau, V. Fortin, S. Toubou Bah, S. Châtigny, R. Vallée, and M. Bernier, "High-power supercontinuum generation in the mid-infrared pumped by a soliton self-frequency shifted source", *Opt. Express* 28, 107-115 (2020).
12. R. Salem, Z. Jiang, D. Liu, R. Pafchek, D. Gardner, P. Foy, M. Saad, D. Jenkins, A. Cable, and P. Fendel, "Mid-infrared supercontinuum generation spanning 1.8 octaves using step-index indium fluoride fiber pumped by a femtosecond fiber laser near 2 μm ," *Opt. Express* 23, 30592- 30602 (2015).
13. B. Kibler, A. Lemièrre, J.-T. Gomes, D. Gaponov, L. Lavoute, F. Désévéday, and F. Smektala, "Octave-spanning coherent supercontinuum generation in a step-index tellurite fiber and towards few-cycle pulse compression at 2 μm ", *Opt. Commun.* 488, 126853 (2021).
14. S. Duval, M. Bernier, V. Fortin, J. Genest, M. Piché, and R. Vallée, "Femtosecond fiber lasers reach the mid-infrared," *Optica* 2, 623-626 (2015).
15. S. Duval, J.-C. Gauthier, L.-R. Robichaud, P. Paradis, M. Olivier, V. Fortin, M. Bernier, M. Piché, and R. Vallée, "Watt-level fiber-based femtosecond laser source tunable from 2.8 to 3.6 μm ," *Opt. Lett.* 41, 5294-5297 (2016).
16. A Lemièrre, F Désévéday, P. Mathey, P. Froidevaux, G. Gadret, J.-C. Jules, C. Aquilina, B. Kibler, P. Béjot, F. Billard, O. Faucher, and F. Smektala, "Mid-infrared supercontinuum generation from 2 to 14 μm in arsenic- and antimony-free chalcogenide glass fibers," *J. Opt. Soc. Am. B* 36, A183-A192 (2019).
17. A Lemièrre, F Désévéday, B. Kibler, P. Mathey, G. Gadret, J.-C. Jules, C. Aquilina, P. Béjot, F. Billard, O. Faucher, and F. Smektala, "Mid-infrared two-octave spanning supercontinuum generation in a Ge–Se–Te glass suspended core fiber," *Las. Phys. Lett.* 16, 075402 (2019).

18. A Lemière, R. Bizot, F Désévéday, G. Gadret, J.-C. Jules, P. Mathey, C. Aquilina, P. Béjot, F. Billard, O. Faucher, B. Kibler, and F. Smektala, “1.7–18 μm mid-infrared supercontinuum generation in a dispersion-engineered step-index chalcogenide fiber,” *Res. Phys.* 26, 104397 (2021).
19. A. H. Moharram, M. A. Hefni, and A. M. Abdel-Baset, “Short and intermediate range order of $\text{Ge}_{20}\text{Se}_{80-x}\text{Te}_x$ glasses,” *J. Appl. Phys.* 108, 073505 (2010).
20. L. Sun, F. Chen, Y. Xu, Y. Huang, S. Liu, Z. Zhao, X. Wang, P. Zhang, S. Dai, and X. Zhang, “Investigation of the third-order nonlinear property of Ge–Se–Te glasses at mid-infrared,” *Appl. Phys. A* 122, 816 (2016).
21. A. M. Heidt, J. S. Feehan, J. H. V. Price, T. Feurer, “Limits of coherent supercontinuum generation in normal dispersion fibers,” *J. Opt. Soc. Amer. B* 34, 764-775 (2017).
22. C. Finot, B. Kibler, L. Provost, S. Wabnitz, “Beneficial impact of wave-breaking for coherent continuum formation in normally dispersive nonlinear fibers”, *J. Opt. Soc. Amer. B* 25, 1938-1948 (2008).
23. C. You, S. Dai, P. Zhang, Y. Xu, Y. Wang, D. Xu, and R. Wang, “Mid-infrared femtosecond laser-induced damages in As_2S_3 and As_2Se_3 chalcogenide glasses,” *Sci. Rep.* 7, 6497 (2017).
24. M. Zhang, T. Li, Y. Yang, H. Tao, X. Zhang, X. Yuan, and Z. Yang, "Femtosecond laser induced damage on Ge-As-S chalcogenide glasses," *Opt. Mater. Express* 9, 555-561 (2019).
25. V. Fortin, Y. Ozan Aydin, M. Bernier, R. Vallée, M. Rochette, F. Chenard, O. Alvarez, L. E. Busse, L. B. Shaw, R. R. Gattass, and J. S. Sanghera, “Chapter 5 - Post-processing soft glass optical fibers,” Eds: S. Jackson, M. Bernier, R. Vallée, In *Woodhead Publishing Series in Electronic and Optical Materials, Mid-Infrared Fiber Photonics*, Woodhead Publishing, 2022, Pages 233-302.
26. I. Tiliouine, G. Granger, Y. Leventoux, C. E. Jimenez, J. Melek, V. Couderc, and S. Février, "Two-octave mid-infrared supercontinuum pumped by a 4.5 μm femtosecond fiber source," in *Conference on Lasers and Electro-Optics, Technical Digest Series* (Optica Publishing Group, 2022), paper JM3E.5.

Annexe 2

Fibres tellurites à dispersion décalée et applications

Table des matières

1. Introduction	163
2. Caractérisation expérimentale des verres tellurites	164
2.1 Synthèse du verre et mise en forme en fibre optique	164
2.2 Spectres de transmission et mesures des indices de réfraction linéaires.....	164
3. Étude numérique des propriétés des fibres optiques	166
3.1 Propriétés du mode fondamental guidé.....	166
3.2 Application pour la compensation de dispersion	168
3.3 Application pour la conversion de fréquence non-linéaire	168
4. Conclusion.....	170

Nous présentons une étude numérique détaillée des propriétés de fibres tellurite à saut d'indice basée sur une caractérisation fine de la variation d'indice de réfraction linéaire de deux systèmes vitreux. Ces résultats sont tirés de la publication suivante : «*Dispersion-shifted tellurite fibers for nonlinear frequency conversion*», *Optical Materials*: X, 100183 (2022).

1. Introduction

Les fibres monomodes à dispersion décalée (DSF) ont été développées pour la première fois dans les années 80, sur la base de verres de silice [1-2], afin d'offrir des avantages significatifs pour les systèmes de télécommunication longue distance. L'objectif principal était de déplacer la longueur d'onde de dispersion nulle de 1,3 μm à 1,55 μm , et de tirer parti d'une atténuation intrinsèquement plus faible. Contrairement aux fibres monomodes à saut d'indice standard, une conception particulière du profil de l'indice de réfraction est nécessaire avec un niveau de dopage plus élevé dans le cœur, ce qui implique un diamètre de champ de mode réduit. Par la suite, une autre génération de fibres optiques a été mise au point avec une dispersion optimisée pour les systèmes d'amplification paramétrique et Raman [3-6]. L'amplification ou la conversion de longueur d'onde tout-optique, basée sur le mélange à quatre ondes dans une fibre, est apparue comme une solution attrayante en raison de la réponse quasi-instantanée de la non-linéarité Kerr de la silice. Pour élargir la gamme des amplificateurs optiques, il faut des fibres avec une dispersion optimisée couvrant une large gamme de longueurs d'onde autour de 1,5 μm . Le principal défi, pour gérer les dispersions d'ordre supérieur des fibres en silice, repose principalement sur la réalisation de profils d'indice complexes basés sur des structures multicouches. Par la suite, les fibres hautement non-linéaires à dispersion décalée ont amélioré les propriétés de ces amplificateurs paramétriques à fibre optique et convertisseurs de longueurs d'onde [7-10]. L'efficacité de conversion atteinte est relativement élevée avec des fibres de faible longueur.

Généralement, l'accord de phase pour un gain paramétrique efficace nécessite un pompage dans le régime de dispersion anormale faible. Cependant, une pompe dans le régime de dispersion normale faible peut permettre un accord de phase entre des fréquences éloignées grâce à une dispersion de vitesse de groupe d'ordre supérieur approprié [11-12]. De nos jours, les amplificateurs/convertisseurs paramétriques à fibre optique autour de la fenêtre de 1,55 μm reposent sur des fibres conventionnelles en silice (grâce à une combinaison appropriée de dopage GeO_2 du cœur, d'un diamètre de cœur réduit et d'un profil d'indice de réfraction en forme de W)[13]. L'utilisation de fibres optiques microstructurées ou effilées a fait l'objet de nombreux travaux [14-17]. La transition entre proche infrarouge et l'infrarouge moyen reste un défi pour la conversion paramétrique avec une architecture à base de fibres. Seuls les verres mous, tels que les fluorures et les tellurites, présentent une dispersion globale et des pertes de transmission adéquates dans cette gamme spectrale [18]. Cependant, lorsqu'il s'agit de dispositifs non-linéaires, les verres de tellurite apparaissent comme une alternative plus pertinente, en raison de leur fenêtre transparente du visible jusqu'à $\sim 6,5 \mu\text{m}$ et de leurs propriétés non-linéaires plus élevées [19].

Plusieurs applications non-linéaires des fibres tellurites ont déjà été reportées dans la littérature, tels que les sources SC [20-22], les lasers Raman et Brillouin [23-25] et les peignes de fréquence [26]. Il convient de mentionner que la conversion de longueur d'onde, basée sur le processus de mélange à quatre ondes, a déjà été étudiée dans une fibre saut d'indice en tellurite d'une longueur de 1 m [27]. Cependant, la largeur restait limitée à la bande 1,4-2,4 μm . Le pompage est opéré dans ce cas, autour de 1,8 μm , près de la longueur d'onde de dispersion nulle du mode fondamental. Un contrôle fin de la longueur d'onde de dispersion nulle (ZDW), ainsi que du profil de dispersion, est alors crucial pour gérer la condition d'accord de phase sur une bande passante plus large, en fonction du pompage laser et de la bande de signal à convertir. En ce qui concerne les fibres à saut d'indice et les verres tellurites dont le ZDW global se situe généralement entre 2 et 2,5 μm [28], la plupart des études ont fait état du développement de fibres qui présentent un ZDW inférieur à 2 μm , même en utilisant un profil d'indice de type W plus complexe ou une structure à double gaine [29-30]. Ce n'est que récemment que nous

avons démontré que la position du ZDW pouvait être facilement modulée, en modifiant le diamètre du cœur d'une simple fibre tellurite à saut d'indice [31-32]. Cependant, en général, le profil total de dispersion sur la fenêtre de transparence de la fibre n'est pas connu avec une précision suffisante pour répondre aux exigences de développement de convertisseurs/amplificateurs de longueur d'onde précis au-delà de 2 μm .

Dans ce travail, nous présentons l'analyse numérique de fibres tellurites à saut d'indice à dispersion décalée, basée sur des mesures précises de l'indice de réfraction des verres purifiés $\text{TeO}_2\text{-ZnO-Na}_2\text{O}$ (TZN) et $\text{TeO}_2\text{-ZnO-La}_2\text{O}_3$ (TZL). Les mesures d'indice sont ici effectuées par ellipsométrie dans la plage 0,5-4,0 μm sur des échantillons massifs de compositions de verre de cœur et de gaine. Les courbes de dispersion complètes du mode fondamental des fibres correspondantes sont calculées. En particulier, nous montrons que la position du ZDW décalé peut être finement contrôlée sur la plage 2,0-2,5 μm . Deux profils d'indice distincts sont étudiés, à savoir une différence d'indice faible ($\sim 1,2 \times 10^{-2}$) et élevée ($\sim 1,2 \times 10^{-1}$) dans la gamme spectrale étudiée. Ces résultats ouvrent de nouvelles perspectives pour les fibres tellurites à saut d'indice en tant que solutions prometteuses pour la prochaine génération de dispositifs photoniques linéaires/non linéaires, dans la région spectrale couvrant la transition entre le proche infrarouge et l'infrarouge moyen. Ces fibres pourraient être combinées aux sources lasers récentes basées sur des fibres dopées au thulium/holmium.

2. Caractérisation expérimentale des verres tellurites

2.1. Synthèse du verre et mise en forme en fibre optique

Nous avons récemment présenté le processus de fabrication et de purification des verres TZL et TZN dans les références [33-36]. Les synthèses des préformes sont réalisées à partir de la méthode classique de trempe par fusion. Les compositions des combinaisons de verres cœur/gaine sont respectivement $70\text{TeO}_2\text{-}25\text{ZnO}\text{-}4.25\text{La}_2\text{O}_3\text{-}0.75\text{La}_2\text{F}_6$ (TZLF) / $65\text{TeO}_2\text{-}30\text{ZnO}\text{-}5\text{La}_2\text{O}_3$ (TZL) et $80\text{TeO}_2\text{-}5\text{ZnO}\text{-}10\text{Na}_2\text{O}\text{-}5\text{ZnF}_2$ (TZNF) / $60\text{TeO}_2\text{-}20\text{Na}_2\text{O}\text{-}15\text{GeO}_2\text{-}5\text{ZnO}$ (TNaGZ). L'introduction de fluor dans la composition du cœur permet de réduire considérablement la contamination par les OH dans l'infrarouge moyen.

2.2. Spectres de transmission et mesures des indices de réfraction linéaires

Les spectres de transmission des verres de cœur sont enregistrés dans les régions UV-Visible et proche IR avec un spectromètre Perkin-Elmer Lambda 900, et avec un spectromètre infrarouge à transformée de Fourier Perkin-Elmer (Spectrum One), pour la gamme d'IR moyen (voir **Figure A.2.1** (a)). Pour les deux compositions de cœur, les spectres de transmission sont comparables. Grâce au processus de purification, les absorptions indésirables entre 3 et 5 μm , dues aux groupes OH, sont considérablement réduites. Pour les deux compositions, la coupure aux courtes longueurs d'onde est observée à 0,37 μm . Quant à la coupure d'absorption multiphonon, elle est mesurée à 6,20 μm pour la composition TZLF et à 6,17 μm pour la composition TZNF. Nous notons que le taux de transmission sur le domaine spectral 0.5-4.5 μm est de 78% pour les deux verres.

L'évolution de l'indice de réfraction des compositions du cœur et de la gaine, en fonction de la longueur d'onde, est mesurée à l'aide d'un ellipsomètre spectroscopique à angle variable (VASE) de J. A. WOOLLAM, avec une configuration standard de polariseur rotatif. Une source de lumière au xénon est utilisée pour l'émission, puis dirigée vers le monochromateur (modèle HS-190) par une fibre optique en ZrF_4 . Les mesures sont ensuite effectuées dans la gamme 0,5 - 4,0 μm , pour la transmission de la fibre ZrF_4 , en maintenant un angle d'incidence constant. Deux détecteurs sont utilisés pour effectuer des mesures sur l'ensemble de la gamme spectrale, allant du visible à 4 μm . Un premier détecteur standard composé de deux éléments de détection est utilisé jusqu'à 2,5 μm .

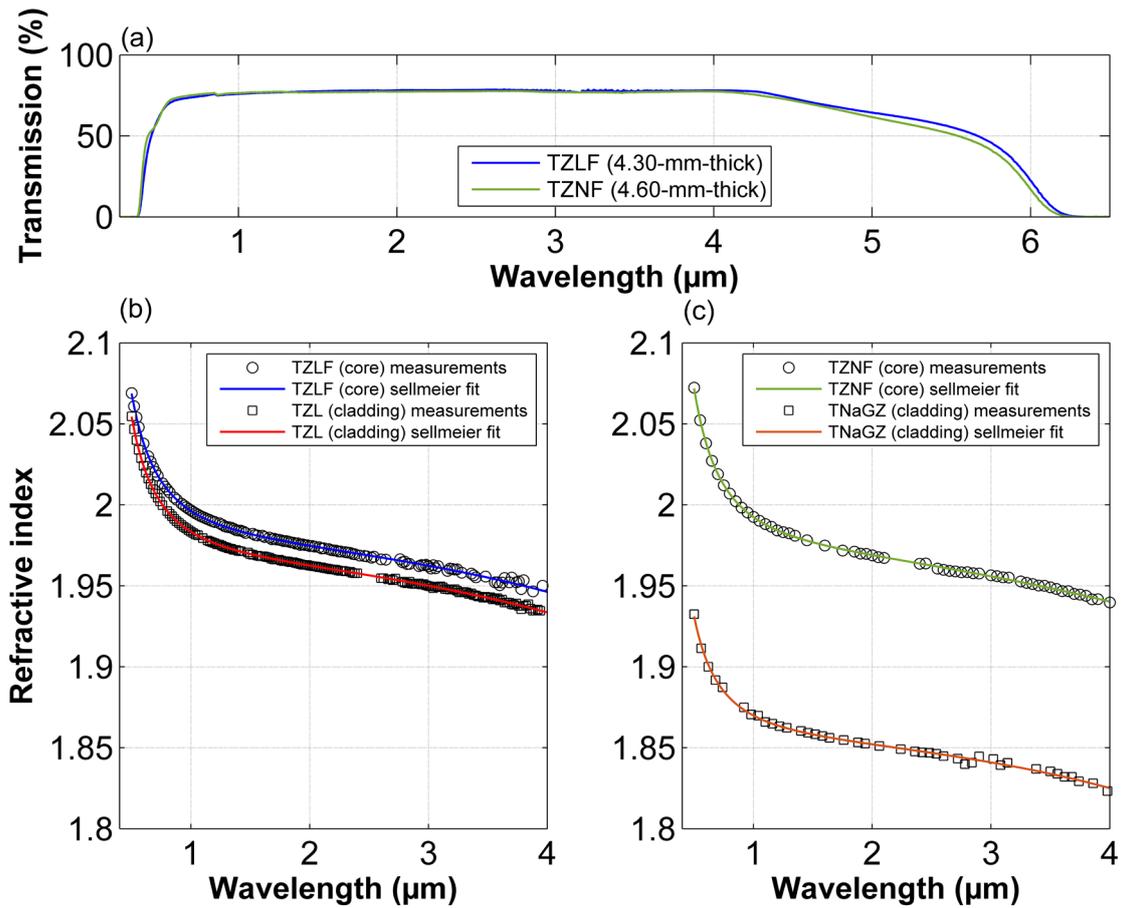


Figure A.2.7 – (a) Spectres de transmission des compositions de cœur des verres tellurites. (b,c) Évolution de l'indice linéaire de réfraction avec la longueur d'onde pour les couples TZLF/TZL et TZNF/TNaGZ.

Les mesures dans le visible et jusqu'à 1 μm sont effectuées à l'aide d'un détecteur au silicium, et grâce à un détecteur InGaS pour la gamme 1,0-2,5 μm. Au-delà de 2,5 μm, un détecteur InSb est utilisé. L'étalonnage de l'ellipsomètre a été soigneusement effectué sur des échantillons standards, tels que la silice pour laquelle des mesures ont été collectées de manière intensive depuis 1965 [37]. Après les mesures, les variations de l'indice de réfraction avec la longueur d'onde pour chaque combinaison cœur/gaine sont déterminées en ajustant les données obtenues par ellipsométrie avec une équation de Sellmeier à deux pôles (1) [28,38] :

$$n^2(\lambda) = A + \frac{B\lambda^2}{\lambda^2 - C^2} + \frac{D\lambda^2}{\lambda^2 - E^2} \quad (1)$$

Tableau A.2.1 – Coefficients de Sellmeier obtenus pour les différentes compositions tellurites.

Rôle	Verre	A	B	C (μm)	D	E (μm)
Cœur	TZLF	0.67321	3.23196	0.16139	0.63972	9.97791
Gaine	TZL	1.60069	2.25886	0.18598	0.6976	10.22841
Cœur	TZNF	0.94476	2.93952	0.175	2.36655	17.82988
Gaine	TNaGZ	1.84459	1.5929	0.1971	0.38494	8.46607

3. Étude numérique des propriétés des fibres optiques

3.1. Propriétés du mode fondamental guidé

La courbe de l'indice de réfraction en fonction de la longueur d'onde, obtenue pour chaque verre de tellurite, permet maintenant de calculer la fréquence normalisée V pour un profil de fibre à saut d'indice, avec un rayon de cœur variable grâce à la relation (2). Dans la relation, $\phi_{\text{cœur}}$ est le diamètre du cœur, λ est la longueur d'onde de la lumière qui se propage et $n_{\text{cœur}}$ et n_{gaine} les indices de réfraction du cœur et de la gaine, respectivement.

$$V = \frac{\pi \phi_{\text{cœur}}}{\lambda} \sqrt{n_{\text{cœur}}^2 - n_{\text{gaine}}^2} \quad (2)$$

Les calculs correspondants pour les fibres sont présentés dans la Figure A.2.2. Pour les fibres TZL, nous observons qu'un diamètre de cœur maximal de 7 μm est nécessaire pour présenter un comportement monomode au-delà de la longueur d'onde de 2 μm . Cette taille de cœur apparaît alors comme une solution intéressante pour faire correspondre les fibres de silice monomodes à 2 μm (par exemple, les fibres SM1950 et SM2000). En revanche, nos fibres de verre TZN montrent qu'un comportement monomode dans la même gamme spectrale ne serait possible que pour un diamètre de cœur maximal de 3 μm . Néanmoins, nous avons déjà démontré que des larges diamètres de cœur peuvent être utilisés pour des applications non-linéaires, avec un couplage à la fois facile et efficace dans le mode fondamental [22]. En outre, ces fibres tellurites à petits cœurs seraient compatibles avec les fibres de silice avec un fort taux de dopage GeO_2 [25].

Ensuite, sur la base de ce profil à saut d'indice simple, nous avons évalué les courbes de dispersion du mode fondamental pour tous les diamètres de cœur et toutes les compositions de verre. Pour cela, nous résolvons numériquement l'équation de dispersion (également appelée équation des valeurs propres) pour un guide d'ondes à symétrie cylindrique à saut d'indice. Les courbes de dispersion présentées sont donc basées sur les mesures d'indice effectuées sur les matériaux massifs.

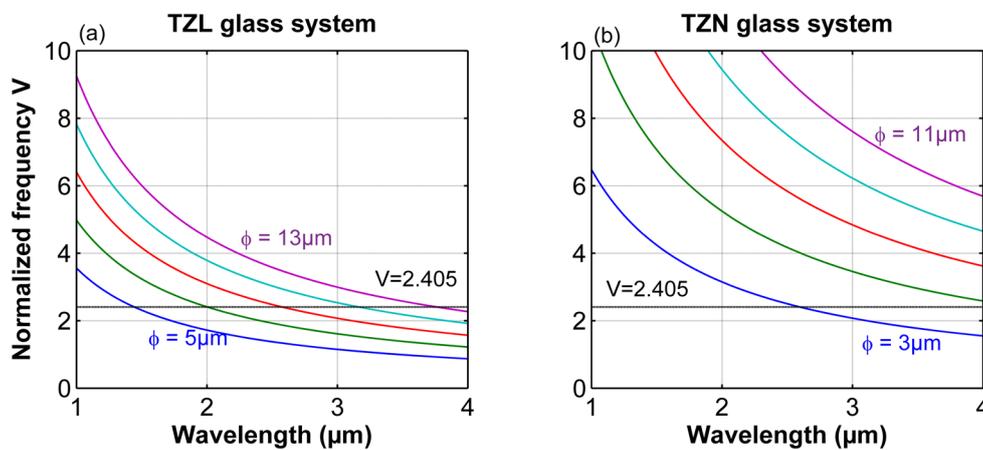


Figure A.2.8 – Paramètre de fréquence normalisée V calculé pour les fibres à saut d'indice tellurites pour (a) des cœurs de 5, 7, 9, 11 et 13 μm dans le système TZL et (b) pour des diamètres de 3, 5, 7, 9 et 11 μm dans le système TZN. La ligne en pointillés indique la limite de régime monomode ($V=2,405$).

Les Figures A.2.3 (a-b) présentent les courbes de dispersion calculées pour les systèmes de verre TZL et TZN. Nous constatons qu'un régime de dispersion normale est toujours présent dans les deux systèmes de verre, pour les longueurs d'onde inférieures à 2 μm . En revanche, la dispersion anormale est obtenue au-delà de 3 μm , dès que les diamètres de cœur sont supérieurs à ~ 5 μm . Les principales différences se produisent dans le domaine spectral (2-3 μm) autour du ZDW des verres (situé ici à environ 2,3-2,4 μm). Les Figures 3c-3d montrent clairement des comportements distincts, concernant

l'évolution du ZDW en fonction de la taille du cœur de la fibre, pour les deux systèmes de verre. Pour une petite différence cœur/gaine (système de verre TZL), le ZDW est déplacé vers des longueurs d'onde plus grandes avec des diamètres de cœur décroissants. La position du zéro de dispersion peut être facilement modifiée de 2,3 à 2,6 μm . Ce changement est similaire à celui qui se produit dans les fibres de silice monomodes DSF pour décaler le ZDW de 1,3 à 1,55 μm . Au contraire, pour notre système de verre TZN, le ZDW est décalé vers des longueurs d'onde plus faibles pour des diamètres de cœur décroissants, typiquement de 2,3 à moins de 2,1 μm . Avec deux combinaisons simples de verre, nous sommes en mesure de contrôler le décalage du ZDW sur une large gamme spectrale d'intérêt de 2 à 2,6 μm .

Les courbes de variation de l'aire effective A_{eff} en fonction de la longueur d'onde sont également calculées et présentées dans la Figure A.2.3 (e-f). En comparant les deux systèmes de verre, nous remarquons que, pour une longueur d'onde donnée, la surface effective est beaucoup plus petite pour les fibres à saut d'indice TZN que pour les fibres TZL, ce qui s'explique simplement par la grande différence d'indice entre le cœur et la gaine. Par exemple, pour une longueur d'onde de 2 μm et un diamètre de cœur de 5 μm , l'aire effective d'une fibre TZL est presque trois fois plus grande que celle d'une fibre TZN. Le coefficient non-linéaire correspondant ($\gamma=2\pi n_2/\lambda A_{\text{eff}}$) des fibres à saut d'indice semble donc être nettement plus élevé pour notre composition TZN que pour le système TZL. Par conséquent, nos fibres TZN avec une grande différence d'indice sont clairement adaptées aux applications non-linéaires, comme cela a déjà été souligné dans les références [31-33], tandis que nos fibres TZL pourraient être utilisées pour des dispositifs linéaires.

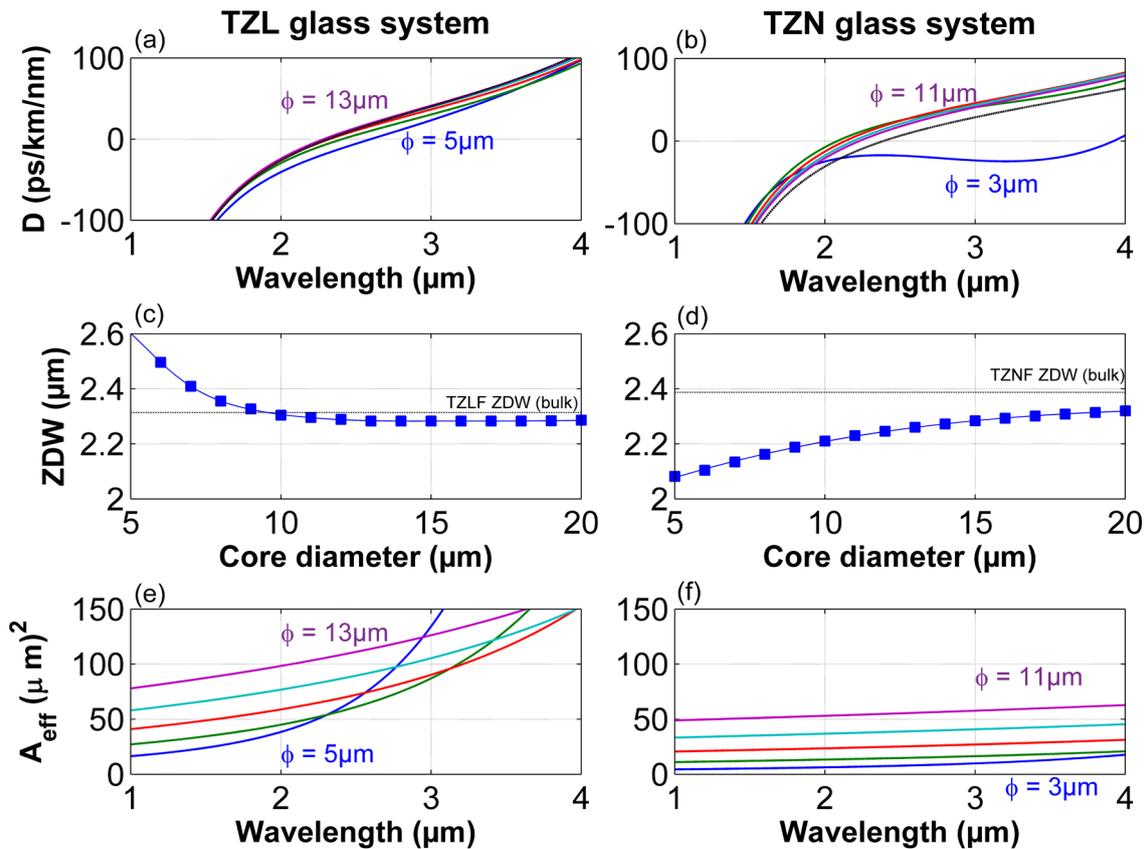


Figure A.2.9 – Courbes de dispersion du mode fondamental guidé calculées pour les fibres à saut d'indice (a) TZL de 5, 7, 9, 11 et 13 μm de diamètre de cœur et (b) de 3, 5, 7, 9 et 11 μm dans le système TZN. (c-d) Évolution du ZDW en fonction du diamètre de cœur pour les fibres TZL et TZN

respectivement. (e-f) Évolution de l'aire effective du mode fondamental guidé pour ces mêmes fibres. Les diamètres étudiés sont les mêmes qu'en (a) et (b).

3.2. Application pour la compensation de dispersion

Les fibres monomodes standards en silice et en fluor présentent une dispersion anormale ($D > 0$) dans la bande de longueur d'onde de $2 \mu\text{m}$ et au-delà [39]. Par la suite, des fibres à petit cœur en germanosilicate ont été utilisées pour la compensation de dispersion vers $2 \mu\text{m}$, par exemple avec une application aux systèmes laser/amplificateur à fibre couvrant l'émission du thulium et d'holmium [40]. Nous proposons ici notre combinaison de fibre TZL avec une faible différence d'indice comme une alternative intéressante. Une analyse détaillée de la dispersion dans la fenêtre $1,8\text{-}2,3 \mu\text{m}$ (voir Figure A.2.4) montre qu'il est possible d'adapter la dispersion à des valeurs négatives par une simple variation de la taille du cœur. Ces fibres présenteront des coefficients non-linéaires similaires à ceux des fibres à base de silice à petit cœur, l'aire effective plus importante étant compensée par le n_2 plus élevé des fibres TZL [19]. Nous soulignons également qu'il n'est généralement pas suffisant de compenser uniquement la dispersion de second ordre. Les futures conceptions de fibres tellurites pour la compensation de dispersion devraient également être étudiées pour la dispersion d'ordre supérieur.

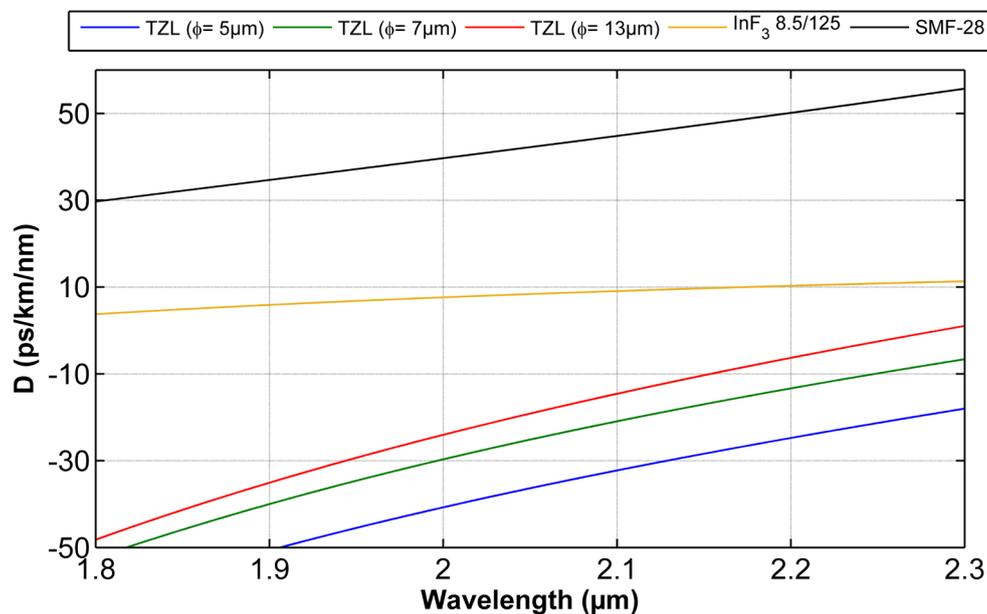


Figure A.2.10 – Courbes de dispersion des fibres à saut d'indice TZL pour différents diamètres de cœur dans la région spectrale $1,8\text{-}2,3 \mu\text{m}$. Nous présentons pour une comparaison les courbes de dispersion de fibres commerciales en silice (SMF-28) et en fluorure (InF_3) [39].

3.3. Application pour la conversion de fréquence non-linéaire

Le fort confinement optique et les propriétés dispersives variables de nos fibres TZN à saut d'indice avec une grande différence d'indice ont déjà permis des applications non-linéaires intéressantes autour de $2 \mu\text{m}$. Nous pouvons citer par exemple les lasers Brillouin ou la génération de supercontinuum avec des longueurs de fibre très courtes [22,25]. Ces études démontrent la possibilité de guider des longueurs d'onde au-delà de $4,5 \mu\text{m}$ dans ces fibres tellurites. Nous étudions ici le potentiel de nos fibres TZN en tant que futurs convertisseurs de fréquence de l'infrarouge proche à l'infrarouge moyen vers la bande $4 \mu\text{m}$. Cette conversion de fréquence est due au processus d'instabilité de modulation (MI) induit par la dispersion de quatrième ordre principalement. Dans le domaine des fréquences, cela conduit à l'émergence de deux bandes latérales désaccordées placées symétriquement par rapport à la fréquence de la pompe. Pour que ces deux bandes latérales émergent loin de la pompe, la dispersion de vitesse de groupe β_2 doit être positive (régime de dispersion normale) et le terme de dispersion du quatrième ordre

β_4 négatif [12]. Ce phénomène a été étudié pour plusieurs types de fibres en pompant dans le régime de dispersion normale près du ZDW. La dérivation de la condition d'accord de phase doit inclure les termes d'ordre supérieur de l'expansion de Taylor de la constante de propagation $\beta(\omega)$ lorsque β_2 est relativement petit. La relation d'accord de phase complète prend la forme suivante [11] :

$$\sum_{m=2,4,\dots}^{\infty} \frac{\beta_m \Omega^m}{m!} + \gamma P = 0 \quad (3)$$

Avec Ω le décalage de fréquence des bandes latérales symétriques Stokes et anti-Stokes de la pompe, β_m les coefficients de dispersion calculés à la fréquence de la pompe, et P la puissance crête initiale. Le coefficient Kerr non linéaire γ est calculé à partir de l'aire effective du mode et de l'indice de réfraction non linéaire $n_2 = 3,8 \cdot 10^{-19} \text{ m}^2 \cdot \text{W}^{-1}$ [19].

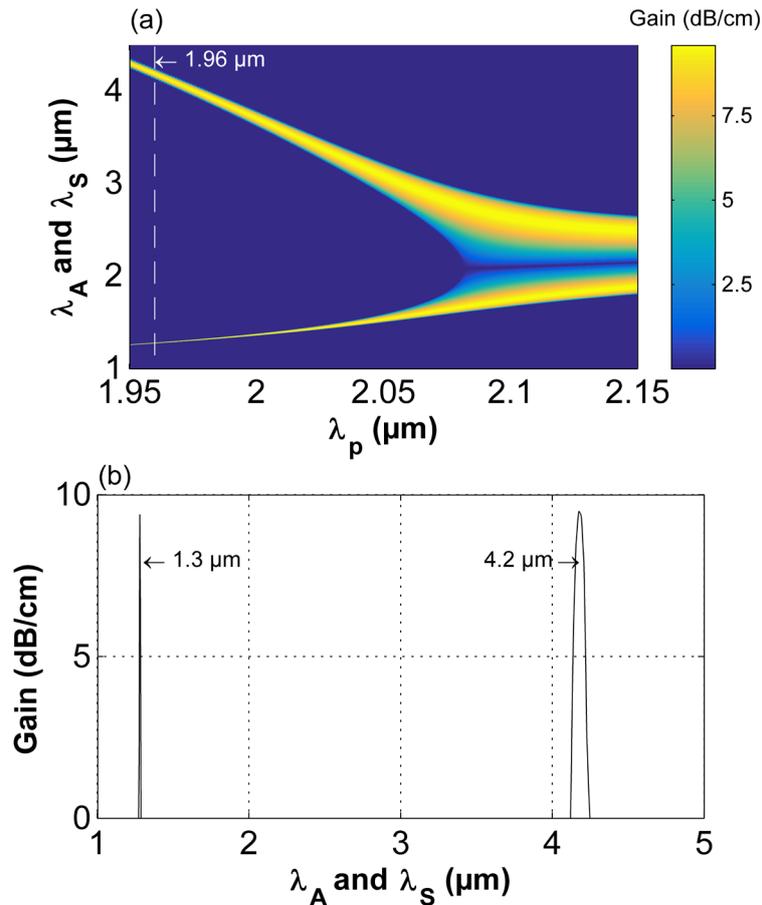


Figure A.2.11 – (a) Diagramme d'accord de phase MI pour une fibre à saut d'indice TZN de diamètre de cœur 5 μm . L'échelle de couleur indique la puissance spectrale du gain en dB/cm. (b) Profil du gain sélectionné à la longueur d'onde de pompe (1,96 μm) qui permet la génération de longueur d'onde vers 4,2 μm .

À titre d'exemple, ce processus non-linéaire a été récemment utilisé pour convertir deux peignes de fréquence mutuellement cohérents, générés avec des modulateurs électro-optiques à 1,55 μm dans la bande de 2 μm [41]. Ce convertisseur de bande était conçu sur l'instabilité de modulation, induite par la dispersion du quatrième ordre ayant lieu dans le régime de dispersion normale d'une fibre de silice hautement non-linéaire. Les chercheurs ont ainsi mis au point un spectromètre à double peigne stable et accordable en longueur d'onde, fonctionnant dans la bande 2 μm , pour étudier les spectres d'absorption du CO_2 . Grâce aux caractéristiques intrinsèques des fibres TZN, nous proposons ici d'évaluer la conversion de fréquence bien au-delà de la bande 2 μm , vers 4,2 μm , où l'absorption moléculaire est significativement plus forte et où une longueur d'absorption très courte serait suffisante. À cette fin, nous

considérons une longueur d'onde de pompage autour de 2-2,5 μm pour convertir un signal dans les bandes de télécommunications proches de 4,2 μm . Pour une description précise de la courbe de dispersion de la fibre sur une large gamme spectrale, les coefficients de Taylor jusqu'à β_{10} sont pris en compte dans la relation (3). La Figure A.2.@ présente le diagramme d'accord de phase calculé des bandes latérales MI en fonction de la longueur d'onde de pompage pour une fibre TZN avec un diamètre de cœur de 5 μm . Des bandes latérales étroitement espacées sont observées pour un pompage au-delà de 2,08 μm dans le régime de dispersion anormale. Cette configuration correspond à un gain MI commun induit par la dispersion du second ordre uniquement. En revanche, lors du pompage dans le régime de dispersion normale (en dessous de 2,08 μm), nous notons clairement des bandes latérales avec la caractéristique typique de bande étroite [12]. En pompant près de 1,96 μm avec des lasers à fibre dopée au thulium d'une puissance crête de 1 kW, nous pouvons imaginer l'utilisation de cette fibre comme convertisseur de bande de 1,3 à 4,2 μm . Le décalage en fréquence est de 160 THz, avec une efficacité significative (le gain spontané atteint presque ici 10 dB/cm). Ceci confirme que les fibres tellurites à saut d'indice de seulement quelques cm de long sont des candidates idéales pour des convertisseurs de fréquence entre le proche infrarouge et l'infrarouge moyen.

4. Conclusion

Dans ce travail, nous avons étudié la gestion spectrale de la dispersion dans les fibres tellurites à saut d'indice, en particulier dans la gamme proche de 2 μm . Ceci a été rendu possible par la caractérisation expérimentale des indices de réfraction pour deux systèmes de verre tellurite, récemment utilisés dans la fabrication des fibres. Ensuite, nous avons effectué une analyse numérique détaillée des propriétés des fibres basées sur deux combinaisons de verre, qui présentent respectivement une différence d'indice de réfraction faible et élevée. Des caractéristiques distinctes des fibres à dispersion décalée ont été révélées, ouvrant ainsi la voie au développement futur de dispositifs à fibres linéaires et non-linéaires. Enfin, nous avons prêté attention au potentiel des fibres tellurite de courte longueur en tant que convertisseurs de fréquence non-linéaires, entre le proche infrarouge et l'infrarouge moyen.

Bibliographie

1. H. Shang, T. A. Lenahan, P. F. Glodis, and D. Kalish, "Dispersion-shifted depressed-clad triangular-profile single-mode fiber," in *Optical Fiber Communication*, 1985 OSA Technical Digest Series (Optica Publishing Group, 1985), paper WD1.
2. T. D. Croft, J. E. Ritter, and V. A. Bhagavatula, "Low-loss dispersion-shifted single-mode fiber manufactured by the OVD process," in *Optical Fiber Communication*, 1985 OSA Technical Digest Series (Optica Publishing Group, 1985), paper WD2.
3. K. Inoue and H. Toba, "Wavelength conversion experiment using fiber four-wave mixing," *IEEE Photon. Technol. Lett.*, vol. 4, pp. 69–72 (1992).
4. F. S. Yang, M. E. Marhic, and L. G. Kazovsky, "CW fiber optical parametric amplifier with net gain and wavelength conversion efficiency >1 ," *Electron. Lett.*, vol. 32, pp. 2336–2338 (1996).
5. F. Koch, S. V. Chernikov, S. A. E. Lewis, and J. R. Taylor, "Characterisation of single stage, dual-pumped Raman fibre amplifiers for different gain fibre lengths," *Electron. Lett.*, vol. 36, pp. 347–348 (2000).
6. C. J. S. de Matos, D. A. Chestnut, P. C. Reeves-Hall, and J. R. Taylor, "Continuous-wave-pumped Raman-assisted fiber optical parametric amplifier and wavelength converter in conventional dispersion-shifted fiber," *Opt. Lett.*, vol. 26, pp. 1583–1585 (2001).
7. G. A. Nowak, Y.-H. Kao, T. J. Xia, and M. N. Islam, "Low-power high-efficiency wavelength conversion based on modulational instability in high-nonlinearity fiber," *Opt. Lett.*, vol. 23, pp. 936–938 (1998).
8. O. Aso, Shin-ichi Arai, T. Yagi, M. Tadakuma, Y. Suzuki, and S. Namiki, "Broadband four-wave mixing generation in short optical fibres," *Electron. Lett.*, vol. 36, pp. 709–711 (2000).
9. W. Imajuku, A. Takada, and Y. Yamabayashi, "Inline coherent optical amplifier with noise Figure lower than 3dB quantum limit," *Electron. Lett.*, vol. 36, pp. 63–64 (2000).
10. J. Hansryd and P. A. Andrekson, "Broad-band continuous-wave-pumped fiber optical parametric amplifier with 49-dB gain and wavelength-conversion efficiency," *IEEE Phot. Tech. Lett.*, vol. 13, pp. 194–196 (2001).
11. G. P. Agrawal, *Nonlinear Fiber Optics*, 6th Ed. (Academic Press, London, 2019).
12. S. Pitois and G. Millot, "Experimental observation of a new modulational instability spectral window induced by fourth-order dispersion in a normally dispersive single-mode optical fiber," *Opt. Commun.*, vol. 226, pp. 415–422 (2003).
13. P. A. Andrekson and M. Karlsson, "Fiber-based phase-sensitive optical amplifiers and their applications," *Adv. Opt. Photon.*, vol. 12, pp. 367–428 (2020).
14. A. Chen, G. Wong, S. Murdoch, R. Leonhardt, J. Harvey, J. Knight, W. Wadsworth, and P. Russell, "Widely tunable optical parametric generation in a photonic crystal fiber," *Opt. Lett.*, vol. 30, pp. 762–764 (2005).
15. M. W. Lee, T. Sylvestre, M. Delqué, A. Kudlinski, A. Mussot, J.-F. Gleyze, A. Jolly, and H. Maillotte, "Demonstration of an all-fiber broadband optical parametric amplifier at 1 μm ," *IEEE J. Lightwave Technol.*, vol. 28, pp. 2173–2178 (2010).
16. T. Godin, Y. Combes, R. Ahmad, M. Rochette, T. Sylvestre, and J. M. Dudley, "Far-detuned mid-infrared frequency conversion via normal dispersion modulation instability in chalcogenide microwires," *Opt. Lett.*, vol. 39, pp. 1885–1888 (2014).
17. S. Xing, D. Grassani, S. Kharitonov, L. Brilland, C. Caillaud, J. Trolès, and C.-S. Brès, "Mid-infrared continuous-wave parametric amplification in chalcogenide microstructured fibers," *Optica*, vol. 4, pp. 643–648 (2017).
18. G. Tao, H. Ebendorff-Heidepriem, A. M. Stolyarov, S. Danto, J. V. Badding, Y. Fink, J. Ballato, and A. F. Abouraddy, "Infrared fibers," *Adv. Opt. Photon.*, vol. 7, pp. 379–458 (2015).
19. M. Deroh, J.-C. Beugnot, K. Hammani, C. Finot, J. Fatome, F. Smektala, H. Maillotte, T. Sylvestre, and B. Kibler, "Comparative analysis of stimulated Brillouin scattering at 2 μm in various infrared glass-based optical fibers," *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 37, pp. 3792–3800 (2020).
20. P. Domachuk, N. A. Wolchover, M. Cronin-Golomb, A. Wang, A. K. George, C. M. B. Cordeiro, J. C. Knight, and F. G. Omenetto, "Over 4000 nm bandwidth of mid-IR supercontinuum generation in sub-centimeter segments of highly nonlinear tellurite PCFs," *Opt. Express*, vol. 16, pp. 7161–7168 (2008).

21. R. Thapa, D. Rhonehouse, D. Nguyen, K. Wiersma, C. Smith, J. Zong, and A. Chavez-Pirson, "Mid-IR supercontinuum generation in ultra-low loss, dispersion-zero shifted tellurite glass fiber with extended coverage beyond 4.5 μm ," *Proc. SPIE*, vol. 8898, pp. 889808 (2013).
22. S. Kedenburg, C. Strutynski, B. Kibler, P. Froidevaux, F. Désévéday, G. Gadret, J.-C. Jules, T. Steinle, F. Mörz, A. Steinmann, H. Giessen, and F. Smektala, "High repetition rate mid-infrared supercontinuum generation from 1.3 to 5.3 μm in robust step-index tellurite fibers," *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 34, pp. 601-607 (2017).
23. G. Qin, M. Liao, T. Suzuki, A. Mori, and Y. Ohishi, "Widely tunable ring-cavity tellurite fiber Raman laser," *Opt. Lett.*, vol. 33, pp. 2014–2016 (2008).
24. G. Qin, A. Mori, and Y. Ohishi, "Brillouin lasing in a single-mode tellurite fiber," *Opt. Lett.*, vol. 32, pp. 2179-2181 (2007).
25. M. Deroh, B. Kibler, A. Lemièrre, F. Désévéday, F. Smektala, H. Maillotte, T. Sylvestre, and J.-C. Beugnot, "2- μm Brillouin laser based on infrared nonlinear glass fibers," *Appl. Opt.*, vol. 58, pp. 6365-6369 (2019).
26. X. Luo, T. H. Tuan, T. S. Saini, H. P. T. Nguyen, T. Suzuki, and Y. Ohishi, "Brillouin comb generation in a ring cavity with tellurite single mode fiber," *Opt. Commun.*, vol. 426, pp. 54-57 (2018).
27. T. H. Tuan, L. Zhang, T. Suzuki, and Y. Ohishi, "Wavelength conversion performance in a tellurite step-index optical fiber," *Optics Communications*, vol. 381, pp. 282–285 (2016).
28. G. Ghosh, "Sellmeier coefficients and chromatic dispersions for some tellurite glasses," *J. Am. Ceram. Soc.*, vol. 78, pp. 2828–2830 (1995).
29. S. Kedenburg, T. Steinle, F. Mörz, A. Steinmann, D. Nguyen, D. Rhonehouse, J. Zong, A. Chavez-Pirson, and H. Giessen, "Solitonic supercontinuum of femtosecond mid-IR pulses in W-type index tellurite fibers with two zero dispersion wavelengths," *APL Photon.*, vol. 1, pp. 086101 (2016).
30. T. Cheng, F. Zhang, S. Li, X. Yan, F. Wang, X. Zhang, T. Suzuki, and Y. Ohishi, "Experimental investigation of polarization modulation instability in a double-clad single-mode tellurite optical fiber," *Appl. Phys. B*, vol. 126, pp. 180 (2020).
31. C. Strutynski, P. Froidevaux, F. Désévéday, J.-C. Jules, G. Gadret, A. Bendahmane, K. Tarnowski, B. Kibler, and F. Smektala, "Tailoring supercontinuum generation beyond 2 μm in step-index tellurite fibers," *Opt. Lett.*, vol. 42, pp. 247-250 (2017).
32. P. Froidevaux, A. Lemièrre, B. Kibler, F. Désévéday, P. Mathey, G. Gadret, J.-C. Jules, K. Nagasaka, T. Suzuki, Y. Ohishi, and F. Smektala, "Dispersion-engineered step-index tellurite fibers for mid-infrared coherent supercontinuum generation from 1.5 to 4.5 μm with sub-nanojoule femtosecond pump pulses," *Appl. Sci.*, vol. 8, pp. 1875 (2018).
33. C. Strutynski, J. Picot-Clémente, A. Lemièrre, P. Froidevaux, F. Désévéday, G. Gadret, J.-C. Jules, B. Kibler, and F. Smektala, "Fabrication and characterization of step-index tellurite fibers with varying numerical aperture for near- and mid-infrared nonlinear optics," *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 33, pp. D12-D18 (2016).
34. I. Savelii, F. Désévéday, J.-C. Jules, G. Gadret, J. Fatome, B. Kibler, H. Kawashima, Y. Ohishi, F. Smektala, "Management of OH absorption in tellurite optical fibers and related supercontinuum generation," *Opt. Mater.*, vol. 35, pp. 1595–1599 (2013).
35. A. Maldonado, M. Evrard, E. Serrano, A. Crochetet, F. Désévéday, J. Jules, G. Gadret, C. Brachais, C. Strutynski, Y. Ledemi, Y. Messaddeq, F. Smektala, "TeO₂-ZnO-La₂O₃ tellurite glass system investigation for mid-infrared robust optical fibers manufacturing," *J. Alloy. Compd.*, vol. 867, pp. 159042 (2021).
36. M. Evrard, T. Combes, A. Maldonado, F. Désévéday, G. Gadret, C. Strutynski, J. C. Jules, C. H. Brachais, and F. Smektala, "TeO₂-ZnO-La₂O₃ tellurite glass purification for mid-infrared optical fibers manufacturing," *Opt. Mater. Express*, vol. 12, pp. 136-152 (2022).
37. I. H. Malitson, "Interspecimen Comparison of the Refractive Index of Fused Silica," *J. Opt. Soc. Am.*, vol. 55, pp. 1205-1209 (1965).
38. R. El-Mallawany, M. A. Ribeiro, L. S. Lara, E. K. Lenzi, I. A. A. Alsadig, and A. Novatski, "Refractive index behavior of tellurite glasses," *Opt. Mater.*, vol. 112, pp. 110810 (2021).
39. T. Boilard, R. Vallée, and M. Bernier "Probing the dispersive properties of optical fibers with an array of femtosecond-written fiber Bragg gratings," *Sci. Rep.*, vol. 12, pp. 4350 (2022).

40. P. Ciacka, A. Rampur, A. Heidt, T. Feurer, and M. Klimczak, “Dispersion measurement of ultra-high numerical aperture fibers covering thulium, holmium, and erbium emission wavelengths,” *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 35, pp. 1301-1307 (2018).
41. A. Parriaux, K. Hammani, and G. Millot, “Two-micron all-fibered dual-comb spectrometer based on electro-optic modulators and wavelength conversion,” *Commun. Phys.*, vol. 1, pp. 17 (2018).

Titre : Nouvelles sources supercontinuum à fibre optique multimode effilée en verres de chalcogénures pour la gamme infrarouge moyen 2-20 μm

Mots-clés : Optique non-linéaire ; Fibres optiques ; Génération de supercontinuum ; Optique infrarouge moyen ; Verres de chalcogénures ; Spectroscopie d'absorption.

Résumé : Cette thèse est consacrée à l'étude et au développement d'une source supercontinuum (SC) à fibre optique recouvrant la gamme spectrale de l'infrarouge moyen 2-20 μm , pour des applications de spectroscopie. La génération de SC est basée sur la propagation non-linéaire d'impulsions ultracourtes en régime femtoseconde dans des fibres optiques en verres de chalcogénures. Afin de générer un spectre recouvrant toute la gamme spectrale visée avec une densité spectrale de puissance significative, le principe de fibres multimodes effilées est proposé. Ainsi, diverses chaînes lasers dans l'infrarouge moyen à longueur d'onde et cadence variables et plusieurs compositions de verres de chalcogénures sont testées, avec notamment des compositions de verre Ge-Se-Te, Te-As-Se ou encore Ge-Te-AgI, pour leurs propriétés remarquables de transmission infrarouge et de non-linéarité optique. Notons

que la simple utilisation d'une fibre Ge-Se-Te effilée de très courte longueur permet de démontrer la génération d'un spectre SC de 2 à 15 μm (2-14 μm), avec une puissance moyenne en sortie de fibre de 93 mW (170 mW), représentant une avancée significative de l'état de l'art. Les différents résultats expérimentaux confirmés par des simulations numériques mettent en évidence une optimisation de ces dispositifs non-linéaire par un contrôle du couplage d'entrée dans le mode fondamental guidé de la fibre. Par le biais de cette technique, la bande 2-20 μm est envisageable à court terme. Enfin des tests préliminaires de spectroscopie d'absorption par ondes évanescentes (FEWS) sont présentés avec différents liquides. Une fibre optique spéciale avec une double fonction optique a pu être développée par le biais de deux sections effilées : la première pour la génération de SC, et la deuxième pour la fonction FEWS.

Title: New supercontinuum sources with tapered multimode optical fibers based on chalcogenide glasses for the mid-infrared spectral range 2-20 μm

Keywords: Nonlinear optics; Optical fibers; Supercontinuum generation; mid-infrared optics; chalcogenide glasses; absorption spectroscopy.

Abstract: This thesis work is devoted to the study and development of a fiber-based supercontinuum (SC) source covering the mid-infrared spectral range 2-20 μm , for spectroscopy applications. SC generation is based on the nonlinear propagation of ultrashort femtosecond pulses in chalcogenide-glass optical fibers. In order to generate a SC spectrum covering the entire target spectral range with a significant power spectral density, the principle of tapered multimode fibers is proposed. Various mid-infrared laser chains with variable wavelengths and repetition rates, and several chalcogenide glass compositions are tested, including Ge-Se-Te, Te-As-Se and Ge-Te-AgI glass compositions, for their remarkable infrared transmission and optical nonlinearity

properties. Note that the simple use of a tapered Ge-Se-Te fiber enables SC generation from 2 to 15 μm (2-14 μm), with an average fiber output power of 93 mW (170 mW), that significantly advances the state-of-the-art. The various experimental results, confirmed by numerical simulations, show that these nonlinear devices can be optimized by controlling the input coupling in the guided fundamental mode of the fiber. Using this technique, the 2-20 μm spectral band can be fully covered in the short term. Finally, preliminary tests of evanescent wave absorption spectroscopy (FEWS) with different liquids are presented. A special optical fiber with a dual optical function has been developed by means of two tapered sections: the first for SC generation, and the second for FEWS.